Proyecto Integrador de la Carrera de Ingeniería Nuclear

Fechado de un testigo sedimentario del Lago Rivadavia mediante las técnicas de $^{210}\rm{Pb}$ y $^{137}\rm{Cs}$

HERNÁN FURCI

DR. SERGIO RIBEIRO GUEVARA Director

DRA. MARÍA ARRIBÉRE Co-directora

San Carlos de Bariloche Junio de 2010

Instituto Balseiro Universidad Nacional de Cuyo Comisión Nacional de Energía Atómica Argentina

A mis más queridos...

ÍNDICE

Ín	dice			III
Ín	dice o	le figur	as	VI
Ín	dice c	le tabla	IS	VIII
Re	sume	en		IX
Ał	ostrac	t		x
1.	Intro	oducció	bn	1
	1.1.	Fechae	do por técnicas radimétricas	1
	1.2.	Objetiv	vos del presente trabajo	2
	1.3.	Descri	pción del área geográfica	3
	1.4.	Algun	as definiciones	4
2.	Fech	ado de	sedimentos por técnicas radimétricas	6
	2.1.	Fechae	do por ^{210}Pb	6
		2.1.1.	El origen del ^{210}Pb en los sedimentos $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	6
		2.1.2.	Fracciones de ^{210}Pb supported y unsupported	7
		2.1.3.	Origen del desequilibrio entre ${}^{210}Pb$ y ${}^{226}Ra$	9
		2.1.4.	Modelos matemáticos aplicados al fechado de sedimentos lacustres	s 11
			2.1.4.1. Modelo CRS	12
			2.1.4.2. Modelo CIC	14
			2.1.4.3. Comentarios finales sobre los dos modelos	15
	2.2.	Fechae	do por ^{137}Cs	16
3.	Desa	arrollo	experimental	19
	3.1.	Extrac	ción del testigo	19

	3.2.	Preparación de las muestras		
	3.3.	Espect	trometría gamma	24
	3.4.	Consid	deraciones especiales	25
	3.5.	Procee	limiento de trabajo	26
4.	Efici	iencia d	le detección gamma y Autoatenuación	29
	4.1.	Conce	ptos utilizados y definiciones	30
	4.2.	Línea	de trabajo	33
5.	5. Mediciones de transmisión			35
	5.1.	Métod	lo experimental	36
	5.2.	Result	ados obtenidos	41
		5.2.1.	Patrones IAEA300 e IAEA327	41
		5.2.2.	Sedimentos del testigo del Lago Rivadavia	44
		5.2.3.	Resumen de resultados	45
6.	Cálo	culos de	e atenuación	47
	6.1.	Cálcul	o Monte Carlo	47
		6.1.1.	Geometría y materiales	47
		6.1.2.	Modelado de la fuente	49
		6.1.3.	Algoritmo general	50
		6.1.4.	Distancias recorridas entre superficies	51
		6.1.5.	El código en lenguaje C	52
	6.2.	2. Resultados del método Monte Carlo		53
		6.2.1.	Pruebas realizadas para un sedimento tipo	54
		6.2.2.	Dependencia de $P_{l/s}$ con la masa de la muestra	56
		6.2.3.	Mapas de autoatenuación	60
7.	Dete	ermina	ción de eficiencia absoluta	64
	7.1.	Patror	nes utilizados	64
	7.2.	Correc	cción de actividad por decaimiento	65
	7.3.	Obten	ción de la intensidad total de la fuente a cada energía	66
	7.4.	Medic	ión de los patrones y cálculo de áreas de los fotopicos	67
	7.5.	Result	ados	68
8.	Util	Utilización de los resultados obtenidos 7		

9.	Medición del testigo del Lago Rivadavia		74	
	9.1.	Espectrometría gamma		
	9.2.	Obtención de los perfiles de actividad específica	76	
	9.3.	Discusión sobre los resultados	79	
	9.4.	Aplicación del modelo de ${}^{210}Pb$ al perfil obtenido $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	80	
		9.4.1. Discretización del modelo	81	
		9.4.2. Resultados obtenidos	82	
	9.5.	Comentarios finales	84	
10	10. Síntesis y conclusiones			
Aj	pénd	ices	89	
A.	A. Cálculo de las probabilidades condicionales globales			
B.	Cálc	ulo por método Monte Carlo	93	
	B.1.	Obtención de distribuciones no uniformes para el cálculo Monte Carlo	93	
	B.2.	Determinación del error en la probabilidad calculada por Monte Carlo	95	
	B.3.	Código en lenguaje C para el Cálculo Monte Carlo	96	
C.	Ince	rtezas en la aplicación del modelo CRS	105	
D.	Eval	uación económica	107	
Re	Referencias			
Ag	Agradecimientos			

ÍNDICE DE FIGURAS

Ubicación del lago Rivadavia	3
Cadena natural de decaimiento del ^{238}U	8
Fallout de productos de fisión medido en Buenos Aires	17
Fotografías de un <i>corer</i>	20
Dibujos esquemáticos del cierre de un <i>corer</i>	21
Fotografías del testigo extraído del lago Rivadavia.	22
Liofilización: Diagrama de fases del agua	23
Esquema del corte de un detector de pozo.	25
Cadena de medición del detector de pozo	26
Diagrama lógico de las tareas realizadas	28
Cadena de medición utilizada para experimentos de transmisión	37
Esquema de la geometría del colimador	38
Montaje utilizado para las mediciones de transmisión	39
Geometría a partir de la cual se midió A_{\perp}	40
Espectros gamma de las fuentes de ${}^{137}Cs$ y ${}^{226}Ra$	42
$\frac{\mu}{\rho}$ medido para patrones certificados por IAEA	44
$\frac{\mu}{\rho}$ vs. <i>E</i> para estratos del Lago Rivadavia	46
Geometría utilizada para el cálculo por método Monte Carlo.	48
Variables involucradas en el nacimiento de un fotón	49
P_l vs. m_m para un sedimento tipo	54
Zoom de P_l vs. m_m para un sedimento tipo	55
Curvas ajustadas de P_l vs. m_m para un sedimento tipo	55
$P_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas	57
Histogramas de $P_{l/s}$ a distintos $\frac{\mu}{\rho}\Big _m$	59
	Ubicación del lago Rivadavia.Cadena natural de decaimiento del ${}^{238}U$.Fallout de productos de fisión medido en Buenos Aires.Fotografías de un corer.Dibujos esquemáticos del cierre de un corer.Fotografías del testigo extraído del lago Rivadavia.Liofilización: Diagrama de fases del agua.Esquema del corte de un detector de pozo.Cadena de medición del detector de pozo.Cadena de medición del detector de pozo.Cadena de medición utilizada para experimentos de transmisión.Esquema de la geometría del colimador.Montaje utilizado para las mediciones de transmisión.Geometría a partir de la cual se midió A_{\perp} .Espectros gamma de las fuentes de ${}^{137}Cs y {}^{226}Ra$. ${}^{\mu}_{\rho}$ vs. E para estratos del Lago Rivadavia. ${}^{\mu}_{\rho}$ vs. E para estratos del Lago Rivadavia. ${}^{\mu}_{\rho}$ vs. m_m para un sedimento tipo.Variables involucradas en el nacimiento de un fotón. ${}^{P}_{l}$ vs. m_m para un sedimento tipo. 20 vs. m_m para un sedimento tipo. ${}^{P}_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas. ${}^{\mu}_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas. ${}^{\mu}_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas. ${}^{\mu}_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas.

6.8.	Mapa de autoatenuación en la muestra.	61
6.9.	P_s Vs. $\frac{\mu}{\rho}\Big _m \times m_m$	62
7.1.	Picos medidos y fondos estimados para el cálculo de ε ; 47 keV \ldots	69
7.2.	Eficiencia del detector en función de la energía del fotón	71
9.1.	Esquema de las principales secuencias sedimentarias en el testigo	75
9.2.	Espectro de muestras del Lago Rivadavia	76
9.3.	Perfiles de actividad específica del testigo del Lago Rivadavia	78
9.4.	Perfiles esperables para tasas de sedimentación de variación suave	79
9.5.	Perfiles sin considerar las <i>tephras</i>	83
9.6.	Ajuste realizado para el cálculo de A_{N+1}	84
9.7.	Resultados obtenidos con el modelo por ^{210}Pb , para el perfil sin <i>tephras</i>	85

ÍNDICE DE TABLAS

5.1.	Masa y geometría de las muestras del Lago Rivadavia.	42
5.2.	Mediciones de transmisión en patrones de IAEA	43
5.3.	Masa y geometría de las muestras del Lago Rivadavia.	45
5.4.	Valores en energías significativas de $\frac{\mu}{\rho}$ de los sedimentos $\ldots \ldots \ldots$	46
6.1.	Geometría para el cálculo Monte Carlo.	48
6.2.	Valores de $\frac{\mu}{a}$ para el cálculo de P_l	54
6.3.	<i>Input</i> para el cálculo de $P_{l/s}$ vs. m_m .	56
6.4.	$\overline{P_{l/s}}$ y su desvío para distintos E y $\frac{\mu}{\rho}\Big _{m}$	58
6.5.	Intervalos de $\frac{\mu}{\rho}\Big _m$ recomendados según tipo de sedimento y energía	60
7.1.	Patrones utilizados para la medición de eficiencia.	65
7.2.	Actividad específica de los patrones corregida por decaimiento	65
7.3.	Yields para los fotones emitidos por hijos del ^{226}Ra en equilibrio y $^{137}Cs.$.	66
7.4.	Intensidad de fuente a distintas energías para los patrones	67
7.5.	Tiempos de medición de los patrones en el detector de pozo	67
7.6.	Resultados de eficiencia total del detector de pozo	70
7.7.	Resultados finales de eficiencia	71
9.1.	Masas de sedimento seco de cada nivel	75
9.2.	Intensidad medida en distintos niveles del testigo	77
9.3.	Actividad específica del testigo a distintos niveles	77
D.1.	Evaluación económica del proyecto integrador. Valores en dólares.	107
D.2.	Precios a que podría ofrecerse el servicio según expectativas	108

RESUMEN

El estudio de cuencas hidrográficas y de los factores que influyen en su formación y características requiere, entre otros trabajos experimentales, la caracterización de testigos sedimentarios de los cauces de los lagos. La secuencia de hechos contenida en ellos se convierte en un registro histórico cuando puede asignarse a las distintas profundidades de la columna una fecha de formación.

Las técnicas de fechado de testigos sedimentarios son muy variadas; entre ellas puede nombrarse a las técnicas radimétricas. Éstas se basan en medir la actividad específica de ciertos isótopos presentes –por ejemplo, ^{210}Pb y ^{137}Cs – a distintas profundidades y a partir del perfil obtenido, aplicando un modelo matemático conveniente, determinar la edad del estrato como una función de la profundidad.

Experimentalmente, la actividad puede determinarse por espectrometría gamma. La técnica basada en ^{210}Pb requiere la cuantificación del fotopico de 47keV. A tan bajas energías los coeficientes de interacción gamma con la materia son considerables y no pueden ignorarse los efectos de autoatenuación en las muestras medidas. En el presente trabajo se realizó un estudio del fenómeno de autoblindaje en las muestras y atenuación en los componentes estructurales del detector mediante cálculo por método Monte Carlo. Se sistematizó el proceso de estimación de los factores de corrección por autoatenuación.

El Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica (LAAN) del Centro Atómico Bariloche (CAB) ha adquirido recientemente un detector de germanio hiperpuro de pozo que por su alta eficiencia es muy adecuado para fechado de sedimentos. Se calibró en eficiencia el detector de pozo para la geometría utilizada en las mediciones del testigo y las energías de interés en fechado por ^{210}Pb y ^{137}Cs , teniendo en cuenta las correcciones mencionadas anteriormente.

Se estableció un procedimiento claro y ordenado para obtener las actividades específicas corregidas por autoblindaje de las muestras a partir de las áreas de los fotopicos del espectro gamma.

Por último, se obtuvo el perfil de actividad específica de ²¹⁰*Pb*, ²²⁶*Ra* y ¹³⁷*Cs* para un testigo sedimentario del Lago Rivadavia, ubicado en el Parque Nacional Los Alerces, Argentina. El fechado de este sedimento es un paso necesario en la investigación de otros miembros del laboratorio.

ABSTRACT

Dating of a sedimentary core from Lake Rivadavia using ²¹⁰Pb y ¹³⁷Cs techniques

The study of hydrographical systems and the factors which affect their formation and characteristics comprises the realization of, amongst other experimental tasks, the sampling of sedimentary cores from lakes. The sequence of facts embedded in their layers turns into a historical record when it is possible to assign a date of formation to each stratum.

There is a wide variety of sedimentary dating techniques; one of them –the one considered in this work– is radimetrical dating. The method is based on measuring the specifical activity of certain radioisotopes –for example, ^{210}Pb and ^{137}Cs – in order to obtain a profile of concentration as a function of depth, measured from the surface. The application of a convenient mathematical model allows the determination of the age of the different layers.

Regarding experimental aspects, activity can be determined by means of gamma spectrometry techniques. ²¹⁰*Pb* quantification requires the counting of photons of 47 *keV* energy. For such low energy photons, gamma interaction coefficients are considerably large and self-shielding effects in samples cannot be neglected. Part of this work consists of the study of the phenomena of self-shielding in samples and shielding caused by detector structural components, by means of Monte Carlo calculation techniques. The estimation of correction factors accounting for self-shielding has been systematized.

The Neutron Activation Analysis Laboratory (LAAN), in Centro Atómico Bariloche (CAB) has recently acquired a HPGe Well detector, whose high efficiency makes it adequate for sedimentary dating. Energy-efficiency calibration of this detector has been performed for the geometry used in the core sample measurements and the energies of interest for ^{210}Pb and ^{137}Cs dating, taking into account the correction factor mentioned above.

A clear step-by-step procedure has been established in order to obtain self-shieldingcorrected specific activity of samples parting from the areas of the full-energy peaks in the gamma spectra.

Lastly, the ²¹⁰*Pb*, ²²⁶*Ra* and ¹³⁷*Cs* specific activity profiles have been obtained for a sedimentary core extracted from Lake Rivadavia, located in Los Alerces National Park, Argentina. The dating of this core contributes to the investigation of other members of the laboratory.

CAPÍTULO 1

INTRODUCCIÓN

Los depósitos sedimentarios lacustres constituyen un registro histórico secuencial de hechos que tuvieron lugar en la región durante su formación. Las condiciones geológicas, meteorológicas, cambios en el ecosistema e incluso acciones de origen humano pueden afectar los regímenes de sedimentación o la composición de los sedimentos. El estudio de los diversos estratos en cuanto a su composición química, granulometría o cantidad de materia orgánica, entre otros, permite conocer muchos aspectos de las condiciones al momento en que se realizó el depósito.

Para poder llevar un registro histórico de toda esa información es necesario contar con algún método que permita estimar cuántos años antes del presente se produjo el estrato en estudio. Existe una amplia variedad de técnicas experimentales que sirven a tal efecto. La elección estriba, entre otras cosas, en cuál es el rango de edades que se pretende manejar –desde algunas décadas hasta millones de años–. También es de relevancia la disponibilidad de información documentada acerca de eventos capaces de afectar el régimen de sedimentación o la composición de los sedimentos.

1.1. Fechado por técnicas radimétricas

Para el estudio de secuencias sedimentarias de hasta unos 150 años resultan adecuadas ciertas técnicas radimétricas que son no destructivas y resultan de sencilla implementación. Éstas consisten en la medición de la radiación gamma emitida por algunos isótopos inestables por decaimiento β para la determinación de su actividad específica.

Una técnica radimétrica de fechado de amplio uso a partir de los años '60 es la del ^{210}Pb . Integrante de la cadena natural de decaimiento del ^{238}U , el ^{210}Pb se encuentra frecuentemente en desequilibrio con su isótopo padre ^{226}Ra –en equilibrio tendrían igual actividad específica– en el material sedimentario. Normalmente se lo encuentra en exceso, debido a que ocurren incorporaciones atmosféricas de ^{210}Pb por precipitación líquida o por adsorción en partículas sólidas. El ^{210}Pb atmosférico proviene del decaimiento radiactivo del gas noble ^{222}Rn , el cual se presenta en la atmósfera tras escapar del suelo por difusión –el ^{222}Rn es el producto del decaimiento α del ^{226}Ra –. Se han desarrollado modelos matemáticos que permiten, a partir de los perfiles de actividad específica de ^{210}Pb en desequilibrio, estimar la edad de los distintos estratos y su respectiva tasa de sedimentación.

Por otra parte, otra técnica que involucra la determinación de actividad específica de un radioisótopo es la del ¹³⁷*Cs*. Este isótopo no es de origen natural –salvo por fisión espontánea, lo cual es un fenómeno de muy baja tasa de ocurrencia–. Su presencia en sedimentos lacustres se atribuye a eventos de liberación a la atmósfera de productos de fisión en cantidades considerables. Principalmente, los eventos tenidos en cuenta son detonaciones de bombas termonucleares atmosféricas realizadas en islas del Océano Pacífico en la década del '60 y el accidente de Chernobyl –útil sólo en el hemisferio norte–. La presencia de altas concentraciones de ¹³⁷*Cs* se asocia directamente a la ocurrencia de alguno de los eventos mencionados y permite asignar una fecha al estrato en cuestión.

Estas dos técnicas son descritas con mayor profundidad en el capítulo 2.

1.2. Objetivos del presente trabajo

El laboratorio en que se realizó este trabajo, Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica (LAAN) del Centro Atómico Bariloche (CAB), adquirió recientemente una cadena de medición basada en un detector de pozo de germanio hiperpuro. Este detector, por su alta eficiencia, es muy adecuado para las mediciones que han de llevarse a cabo para realizar el fechado de un testigo sedimentario, el cual es material de muy baja actividad. Sin embargo, hasta antes de este trabajo, no se había utilizado para la obtención de perfiles de ^{210}Pb y ^{137}Cs .

Por lo tanto el primer objetivo de este trabajo incluye la *calibración del equipo* para su utilización en este tipo de mediciones. Principalmente, se desea obtener la eficiencia del detector a fotones de las energías de interés para fechado por ^{210}Pb y ^{137}Cs . Para ello es necesario realizar mediciones de patrones certificados con la misma geometría con que se miden las muestras extraídas de los testigos sedimentarios.

La técnica de fechado por ²¹⁰*Pb* requiere, por la naturaleza intrínseca de la radiación emitida por este isótopo, que se tenga especial cuidado con el fenómeno de autoatenuación de la fuente radiactiva. El fotón de interés que puede originarse tras el decaimiento β del ²¹⁰*Pb* tiene una energía muy baja –47 *keV*–, con lo cual una porción significativa de radiación emitida puede no llegar a escapar de la muestra que se quiere caracterizar.

Es un objetivo del trabajo *estudiar el fenómeno de autoatenuación* en la fuente y los efectos que éste pudiera tener en la eficiencia del detector. Para esto se propone como herra-

mienta el cálculo mediante método Monte Carlo. En base a los resultados obtenidos, se busca proponer un método de corrección por autoblindaje sistemático que pueda utilizarse a energías tan bajas como la de los fotones del ^{210}Pb como así también a energías superiores.

Finalmente, siguiendo la línea de trabajo del LAAN, se pone como objetivo del trabajo el aplicar todo lo anteriormente mencionado a la *medición de los perfiles de actividad específica de* ^{210}Pb , $^{226}Ra \ y \ ^{137}Cs \ en \ un \ testigo \ sedimentario \ extraído \ del \ Lago \ Rivadavia \ y \ la \ ulterior realización \ de \ su \ fechado.$

Los resultados obtenidos serán de utilidad para el grupo, en el cual trabajan profesionales de diferentes disciplinas, entre los cuales algunos estudian la biología y geología de la región. El fechado de testigos es una actividad que se realiza en forma rutinaria para la investigación de la región.

1.3. Descripción del área geográfica



Figura 1.1. Ubicación del lago Rivadavia.

Para el presente trabajo, se extrajo un testigo del fondo del Lago Rivadavia, ubicado en el extremo noreste del Parque Nacional Los Alerces (PNLA) en el noroeste de la provincia

de Chubut. Se presenta un mapa de la región en la figura 1.1.

El lago Rivadavia es un integrante de la Cuenca del río Futaleufú, la cual posee una superficie aproximada de 7630 km^2 . En su recorrido, el río atraviesa una serie de lagos encadenados como el Cisne, Menéndez, Rivadavia, Verde, Futalaufquen, Kruger y Amutui Quimay. Estos lagos regulan el régimen fluvial debido a las crecientes por lluvias y por deshielos.

Los asentamientos humanos pueden alterar la dinámica y concentración de elementos aportados a los cuerpos de agua. La región de estudio se encuentra alejada de grandes centros urbanos e industriales. En el Parque Nacional Los Alerces el asentamiento más grande es Villa Futalaufquen con 106 habitantes (INDEC, 2001). La principal actividad económica en la región es el turismo y la pesca deportiva de salmónidos que atrae a pescadores de la Argentina y del extranjero.

1.4. Algunas definiciones

A lo largo del trabajo se utilizaran muy frecuentemente algunos términos que son propios del trabajo con sedimentos lacustres.

Se denomina *testigo* sedimentario a una columna de sedimento extraída del fondo de un lago, en la cual la acumulación secuencial de material en sus sucesivos estratos refleja un registro continuo de la historia depositacional del lago.

Se definen en este punto dos tipos principales de sedimento a los que se hará referencia con frecuencia a lo largo de todo el trabajo. Cada uno de ellos se origina a partir de dos tipos de procesos de sedimentación bien diferenciados.[Reading y Levell (1996)]

- Sedimento *bulk*: Es el sedimento presente en estratos formados bajo un régimen *normal* de sedimentación –es el tipo de sedimento mayoritario en el testigo–. Su formación suele ser lenta y se da por la precipitación paulatina de material particulado sobre el fondo del lago, bajo procesos bioquímicos casi invariablemente estables.
- *Tephra*: (en griego, *ceniza*) Estrato sedimentario compuesto por acumulación de material piroclástico –emitido en erupciones volcánicas–, inlcuyendo depósitos de caída directa en el momento de su formación o de retrabajo y resedimentación por procesos de movilización posteriores. Su formación suele tener tasas de acumulación más altas por las características de los procesos volcánicos.

El régimen de formación de estratos de *tephra* corresponde a un subgrupo de los procesos de sedimentación llamados *catastróficos*. Éstos ocurren de manera casi instantánea e involucran niveles de energía varios órdenes de magnitud más altos que los procesos de sedimentación normal, así como también tasas de sedimentación mucho más altas que lo habitual. Incluyen tormentas muy fuertes, terremotos, erupciones volcánicas, etc.. Su ocurrencia origina en el testigo niveles considerados clave, que de ser identificados hacen referencia a instantes particulares en el tiempo.

Se denomina *material estándar de referencia (Standard Reference Material)* o *sedimentos patrones* a sedimentos naturales que han sido estudiados y caracterizados por alguna institución y cuya actividad específica de ciertos isótopos está certificada por dicho organismo. Este tipo de material es el que se utilizó para la determinación de la eficiencia absoluta del detector.

También aparecerán con frecuencia algunos términos asociados a la medición de radiación gamma.

Se define como *fotopico* a un intervalo del espectro en energía de la radiación gamma detectada en que se obtuvo un contaje más alto que en energías circundantes. Se asocia la energía del centroide geométrico del fotopico a la energía depositada por un fotón que es absorbido por el detector en un evento de deposición total de energía. Se define como *área del fotopico* a la diferencia entre el contaje total en los canales que abarca el fotopico y el fondo estimable a partir del contaje en canales cercanos a izquierda y derecha.

Se utilizará el término *eficiencia* para hacer referencia a la fracción de los fotones que, habiendo escapado de la fuente emisora, producen una cuenta en el fotopico por deposición total de energía. Es decir que la eficiencia está definida como el cociente entre el área del fotopico y la cantidad de fotones de la energía de su centroide emitidos por la fuente durante el intervalo de medición –con algunas correcciones que se presentarán en forma oportuna–.

Se define como *autoatenuación* al fenómeno por el cual un fotón nacido en una muestra es absorbido por el material de la misma antes de alcanzar la superficie que la limita.

Capítulo 2 _____ Fechado de sedimentos por técnicas radimétricas

El análisis de la composición química o la concentración de ciertos elementos o isótopos en testigos sedimentarios es uno de los métodos que permite estimar la edad del depósito a diferentes profundidades. Si además se plantea algún modelo matemático para el transporte de sustancias entre la atmósfera y el suelo y dentro del mismo suelo, es posible obtener también estimaciones del valor de tasa de sedimentación.

Como se explicará en este capítulo, un indicador de la edad del sedimento puede ser la concentración de ^{210}Pb .

Como destacan Appleby et al. en su publicación [Appleby y Nolan (1986)], existe una técnica de fechado por medición de la actividad α del ²¹⁰*Pb*, pero este método requiere realizar un tratamiento químico destructivo sobre la muestra. Una técnica no destructiva que permite cuantificar la actividad de ²¹⁰*Pb* en el suelo es el contaje gamma (γ).

A continuación se fundamentará la importancia del ²¹⁰*Pb* en el fechado de sedimentos en fondos marinos y de lagos y se describirán modelos que permiten relacionar los perfiles de concentración con la edad de los distintos estratos de sedimentos. También se fundamentará la determinación de perfiles de actividad específica de ¹³⁷*Cs* como medio para el fechado.

2.1. Fechado por ^{210}Pb

2.1.1. El origen del ²¹⁰*Pb* en los sedimentos

El uranio está presente en la mayoría de los materiales sedimentarios de la corteza terrestre. Su isótopo natural más abundante, el ^{238}U , es radiactivo por decaimiento α y es el padre de una cadena de decaimiento compuesta por nucleidos de vidas medias que van de la escala de los microsegundos a los millones de años. Se muestra dicha cadena

de decaimiento en la figura 2.1.

Los isótopos de vida media más larga –y por tanto más abundantes si la cadena está en equilibrio– son ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{226}Ra , ^{210}Pb y el estable ^{206}Pb . Por otra parte, de los nombrados, el que más notoriamente variaría su concentración en el tiempo –en escalas de entre 5 y 200 años– si se hallara en desequilibrio con sus padres o hijas es el ^{210}Pb , ya que es el que tiene la vida media más corta –22,2 años–.

Por otra parte, todos los eslabones que median entre el ^{226}Ra y el ^{210}Pb tienen vidas medias muy cortas con lo cual el estado de equilibrio secular se alcanza en períodos de tiempo breves.

De todos modos, en los sedimentos de los fondos de lagos de agua dulce y mares no es extraño que las concentraciones de ^{210}Pb excedan aquellas que lo situarían en equilibrio con los otros miembros de la cadena. Este desequilibrio se debe a incorporaciones de ^{210}Pb ajenas a los decaimientos de sus padres naturales presentes en la composición del sedimento, en ese mismo sitio.

2.1.2. Fracciones de ²¹⁰*Pb* supported y unsupported

Ante la situación de desequilibrio entre el ^{210}Pb y sus padres se definen dos cantidades que se utilizarán y a las cuales se hará referencia a lo largo de todo este trabajo.

En primer lugar, a la concentración de ^{210}Pb que está en equilibrio secular con sus padres, en particular con el ^{226}Ra , se la llamará concentración de plomo *supported*. A la porción de plomo incorporada a partir de una fuente externa se la llamará *unsupported*. El significado de los nombres en inglés hace referencia a cómo es la evolución temporal de ambas cantidades a partir de una dada condición inicial.

Supongamos que inicialmente las concentraciones de los isótopos de ^{226}Ra y ^{210}Pb se encuentran en equilibrio secular –todos los eslabones de la cadena presentan la misma actividad específica–. A instante cero se agrega una cierta cantidad P_1 de ^{210}Pb y se deja evolucionar al sistema durante unos años.

Las condiciones iniciales del sistema son entonces

$$R(0) = R_0; \ P(0) = P_0 + P_1 \tag{2.1a}$$

$$\lambda_r R_0 = \lambda_p P_0 \tag{2.1b}$$

y la ecuación a resolver es

$$\frac{\mathrm{d}P}{\mathrm{d}t} = -\lambda_p \ P + \lambda_r \ R. \tag{2.2}$$

R y P son las concentraciones en átomos por unidad de masa de sedimento de ^{226}Ra y ^{210}Pb , respectivamente, y λ_r y λ_p son sus constantes de decaimiento. R_0 y P_0 son los



Figura 2.1. *Cadena natural de decaimiento del*²³⁸*U*.

valores de equilibrio de dichas concentraciones antes de incorporar el exceso de ²¹⁰Pb.

Para la escala de tiempo que es de interés, de hasta unos 200 años, se puede hacer la aproximación de que no hay variaciones en las concentraciones de isótopos padres del ^{226}Ra y que hasta él inclusive los isótopos se encuentran en equilibrio secular –no se asegura lo mismo para los isótopos de eslabones inferiores–. Por tanto se hace la aproximación de que $\frac{dR}{dt} = 0$ para todo t > 0.

Bajo la hipótesis anterior, se resuelve en forma general la ecuación 2.2.

$$\frac{\mathrm{d}P}{\mathrm{d}t} + \lambda_p P = \lambda_r R \implies P(t) = Ae^{-\lambda_p t} + \frac{\lambda_r R_0}{\lambda_p}.$$
(2.3)

El valor de *A* sale de aplicar la condición inicial y resulta ser $A = P_0 + P_1 - \frac{\lambda_r R_0}{\lambda_p}$. Por consiguiente,

$$P(t) = \left(P_0 + P_1 - \frac{\lambda_r R_0}{\lambda_p}\right) e^{-\lambda_p t} + \frac{\lambda_r R_0}{\lambda_p}.$$
(2.4)

La actividad de ^{210}Pb se obtiene multiplicando por λ_p .

$$A_P(t) = (\lambda_p P_0 + \lambda_p P_1 - \lambda_r R_0) e^{-\lambda_p t} + \lambda_r R_0.$$
(2.5)

A partir de la hipótesis de equilibrio secular reflejada en la ecuación 2.1b se deduce que

$$A_P(t) = \underbrace{\lambda_p P_1 \ e^{-\lambda_p t}}_{unsupported} + \underbrace{\lambda_r R_0}_{supported}$$
(2.6)

La porción *supported* mantiene su magnitud en el tiempo, pues es *sostenida* por los decaimientos del ²²⁶*Ra*–justamente, $\lambda_r R_0$ es su actividad–, mientras que la porción *unsupported*, carente de sostén, decae con la constante de decaimiento del ²¹⁰*Pb*. Nótese que la porción *supported* tiene la misma actividad que el ²²⁶*Ra* y es el valor estacionario a largo plazo.

2.1.3. Origen del desequilibrio entre ²¹⁰Pb y ²²⁶Ra

Si se vuelve a mirar la figura 2.1, se puede observar que uno de los isótopos intermedios entre el ^{226}Ra y el ^{210}Pb es el ^{222}Rn . Éste último es un gas noble; por ese motivo no queda ligado a la partícula de suelo sino que tiende a difundir entre poros e intersticios presentes en la roca en que se origina. Eventualmente cada átomo de ^{222}Rn puede encontrar un camino de escape hacia la atmósfera antes de decaer y pasar a formar parte del aire, en donde finalmente decae a través de isótopos de vida media corta a ^{210}Pb .

En un texto de Appleby y Oldfield [Appleby y Oldfield (1992)] se explican los modelos que pueden aplicarse a la difusión del radón en el suelo. Se concluye que para suelos com-

pactos la concentración del gas en el suelo se ve afectada solo en los primeros centímetros del suelo, teniendo una distribución exponencial que tiende asintóticamente al valor de de concentración en equilibrio con el radio.

$$C_{\infty} - C = f_0 C_{\infty} e^{-x/\delta}.$$
(2.7)

El valor de δ para los suelos de interés en este trabajo es de aproximadamente 1,5 cm, x es la profundidad, f_0 es la fracción de escape a la atmósfera y C_{∞} es la concentración que a profundidades grandes se está en equilibrio con el radio. Este modelo supone que la concentración de radio en el suelo es uniforme.

El ²¹⁰*Pb* es un metal pesado, por lo cual no puede mantenerse indefinidamente en la atmósfera. Es removido de ella por medio de mecanismos de adsorción en partículas sedimentarias que finalmente decantan sobre el suelo o en los fondos de lagos y mares o en las gotas de lluvia. Se puede caracterizar a los fenómenos que remueven el plomo de la atmósfera a través de una tasa *k* con dimensiones de $\left[\frac{1}{T}\right]$. Si A_{210} es la actividad de plomo 210 presente en la atmósfera por unidad de superficie de terreno (con dimensiones de $\left[\frac{Bq}{m^2}\right]$), el flujo de plomo desde la atmósfera hacia la superficie del suelo –en $\frac{Bq}{m^2 dia}$ – es

$$\mathcal{P} = kA_{210}.\tag{2.8}$$

Si \mathcal{F} es el flujo de actividad de radón del suelo a la atmósfera, N_{222} es la cantidad de átomos de radón por unidad de superficie de terreno, λ_{222} es la constante de decaimiento del radón, cuando la cantidad de radón en la atmósfera está en equilibrio

$$\frac{\mathrm{d}N_{222}}{\mathrm{d}t} = \frac{\mathcal{F}}{\lambda_{222}} - \lambda_{222}N_{222} = 0 \quad \Longrightarrow \quad A_{222} = \frac{\mathcal{F}}{\lambda_{222}},\tag{2.9}$$

donde A_{222} es la actividad atmosférica de radón por unidad de superficie de terreno.

Por otra parte, del equilibrio en la cantidad de plomo atmosférico se deduce

$$\frac{\mathrm{d}N_{210}}{\mathrm{d}t} = \lambda_{222}N_{222} - \lambda_{210}N_{210} - kN_{210} = 0 \quad \Longrightarrow \quad A_{222} = A_{210}\frac{\lambda_{210} + k}{\lambda_{210}}.$$
 (2.10)

Definiendo la vida media del plomo en la atmósfera $T_{atm} = \frac{\ln 2}{k}$ y de la ecuación 2.8, se obtiene que la tasa de decantación del plomo es proporcional a la de liberación de radón según la igualdad

$$\mathcal{P} = \frac{T_{222}}{T_{210} + T_{atm}} \mathcal{F}.$$
(2.11)

Luego de que el plomo deja la atmósfera puede que deba atravesar procesos geofísicos o geoquímicos hasta llegar a depositarse en el sedimento, de modo que la tasa de suministro de plomo al suelo en estudio es

$$P = \phi \mathcal{P}, \tag{2.12}$$

donde ϕ es una función de transferencia que da cuenta de todos los procesos intermedios.

De este modo, el ²¹⁰*Pb* atmosférico pasa a formar parte de la capa superficial de suelo, aumentando la concentración por unidad de masa del isótopo y su actividad específica en el sedimento con respecto al valor que antes de la incorporación estaba en equilibrio con el ²²⁶*Ra*. Posteriormente, esa capa superficial en donde se depositó el plomo atmosférico es cubierta por otra y entonces no se producirán ulteriores incorporaciones –si se considera despreciable la contribución por difusión del ²¹⁰*Pb* en el suelo–, convirtiéndose en un sistema cerrado en donde las concentraciones de ²²⁶*Ra* y ²¹⁰*Pb* cumplirán las ecuaciones presentadas en la sección 2.1.2. En cada punto del suelo el ²¹⁰*Pb* evolucionará de modo que su componente *unsupported* decaerá exponencialmente con el tiempo, con la vida media del ²¹⁰*Pb*.

2.1.4. Modelos matemáticos aplicados al fechado de sedimentos lacustres

Hay dos modelos sencillos que se utilizan para el estudio de perfiles de concentración de ^{210}Pb . Se diferencian en suposiciones hechas sobre \mathcal{P} y P. Ellos son el modelo *CRS* y el modelo *CIC*.

CRS es el acrónimo en inglés de *Constant Rate of Supply*, cuya traducción es "tasa de suministro constante". Este modelo considera que a lo largo del proceso de sedimentación, la tasa *P* se mantiene constante. Las variaciones en la concentración inicial del plomo, es decir al momento en que las partículas se depositan superficialmente para formar un nuevo estrato de suelo, se deben a variaciones en la tasa de acumulación *r*. Esta última se define como la masa incorporada al suelo por unidad de superficie y unidad de tiempo. Típicamente se utilizan unidades de $\frac{g}{cm^2 año}$. Así, si *r* aumenta, a *P* constante, el plomo queda más diluido en el suelo y se tiene una actividad específica inicial menor. Este modelo, según estudios de casos descritos en la referencia [Appleby y Oldfield (1992)], es el más adecuado para el estudio de perfiles de concentración de plomo en el fondo de lagos en lugares en que la erosión fluvial ocasionada por los ríos afluentes no provee de una porción significativa de los sedimentos. Incluso se ha visto que aún cuando la hipótesis de CRS no se cumple estrictamente el resultado no se ve fuertemente afectado y los errores cometidos no son grandes.

Muy distinto es el caso en que la función de transferencia es proporcional a la tasa de sedimentación ($\phi = kr$), típicamente en lagos con afluentes ricos en sedimento originario de la erosión. En esos casos es más adecuado el uso del modelo *CIC* –*Constant Initial Concentration*– en que la concentración por unidad de masa inicial –al formarse el estrato–

de ^{210}Pb es supuesta constante en el tiempo e igual a la que se puede medir en la capa superficial del fondo del lago. Este modelo en particular no admite que la concentración de plomo aumente con la profundidad –sólo puede disminuir debido al decaimiento radiactivo del ^{210}Pb –, es decir que sólo puede considerarse su aplicación si la concentración decrece monótonamente con la profundidad. En épocas de sedimentación lenta –baja r– se tendrán caídas abruptas de la concentración de ^{210}Pb , ya que sedimentos de edades muy distintas están muy próximos en profundidad. En cambio para alto r se observarían zonas con concentración casi uniforme a lo largo de la profundidad, ya que los sedimentos serían casi contemporáneos.

2.1.4.1. Modelo CRS

Como se ha mencionado, la hipótesis que el modelo propone es que P es constante en el tiempo a lo largo del proceso de sedimentación. En cambio, la tasa de acumulación r puede variar en el tiempo, variando de esa manera la concentración inicial de plomo al formarse el estrato.

La concentración inicial de ²¹⁰Pb unsupported puede calcularse como

$$C_0 = \frac{P}{r} \quad \left[\frac{Bq/(cm^2 \operatorname{dia})}{g/(cm^2 \operatorname{dia})}\right].$$
(2.13)

Como la concentración una vez formado el estrato responde a la ley de decaimiento radiactivo,

$$C(t) = \frac{P}{r(t)}e^{-\lambda_{210}t},$$
(2.14)

donde C(t) es la concentración actual de plomo *unsupported* en el estrato, t es la edad de la capa de sedimento y r(t) es la tasa de acumulación al momento de formación de la capa.

Por otra parte, se define la variable m(t), que es la masa por unidad de superficie desde profundidad cero (y por tanto edad 0) hasta un sedimento de edad t. Entonces,

$$m(t) = \int_0^t r(t) dt \implies dm = r(t) dt.$$
(2.15)

La actividad de ²¹⁰*Pb unsupported* por unidad de superficie de suelo, presente a mayor profundidad que los primeros $m \frac{g}{cm^2}$ es

$$A = \int_{m}^{\infty} C dm = \int_{m}^{\infty} \frac{P}{r(t)} e^{-\lambda_{210}t} dm = \int_{t}^{\infty} P e^{-\lambda_{210}t} dt = \frac{P}{\lambda_{210}} e^{-\lambda_{210}t}.$$
 (2.16)

En vista de lo anterior, la actividad por unidad de área total desde la superficie del

suelo hasta profundidad infinita -profundidad cero es equivalente a edad 0- resulta

$$A(0) = \frac{P}{\lambda_{210}}.$$
 (2.17)

Adicionalmente,

$$A = A(0) e^{-\lambda_{210}t}.$$
 (2.18)

Lo que se propone a partir de estas igualdades es determinar la edad de los estratos a distintas profundidades midiendo el perfil de concentración *C* en función de la profundidad, expresada como *m* y realizando integraciones desde la profundidad *m* hasta que la concentración de ²¹⁰*Pb* unsupported sea virtualmente cero, es decir, calculando *A*. Se compara la integral desde profundidad *m* –A– con la integral desde profundidad cero –A(0)– y se halla la edad del sedimento como

$$t = -\frac{1}{\lambda_{210}} \ln \frac{A}{A(0)}.$$
(2.19)

De la ecuación 2.17 se puede calcular la tasa de suministro de ²¹⁰Pb como

$$P = \lambda_{210} A(0). \tag{2.20}$$

La tasa de acumulación correspondiente a cierta profundidad también puede calcularse a partir del valor de *A* y de la concentración a esa profundidad. La obtención de este resultado no es tan evidente.

Si en el momento en que se formó la capa de sedimento de profundidad m se hubiera realizado la integral correspondiente para obtener el valor de A(0) para el perfil que se tuviera en ese entonces, el valor que se habría obtenido es el mismo que el que se obtiene en el presente para la integral desde el sedimento a profundidad cero. Esto es así porque la tasa de suministro P es constante y A(0) está dada por la ecuación 2.17. Por otra parte, la concentración con que se formó dicha capa es $C_0 = \frac{P}{r}$. Por lo tanto, el valor de r resultante es

$$r = \frac{\lambda_{210}A(0)}{C_0}.$$
 (2.21)

Para referir C_0 a una cantidad medible en el presente, se tiene en cuenta que $C = C_0 e^{-\lambda_{210}t}$, entonces

$$r = \frac{\lambda_{210}A(0)}{C e^{\lambda_{210}t}} = \frac{\lambda_{210}A}{C}.$$
 (2.22)

De este modo se puede caracterizar por completo el fenómeno de sedimentación, representado por las tasas de suministro y acumulación y la edad en función de la profundidad.

$$t = -\frac{1}{\lambda_{210}} \ln \frac{A}{A(0)} \qquad P = \lambda_{210} A(0) \qquad r = \frac{\lambda_{210} A(0)}{C e^{\lambda_{210} t}} = \frac{\lambda_{210} A}{C}$$
(2.23)

2.1.4.2. Modelo CIC

La hipótesis subyacente en este modelo es que la función de transferencia ϕ es proporcional a la tasa de acumulación r. Debido a que la concentración inicial se obtiene según la ecuación 2.13, para este modelo se tiene que

$$C_0 = \frac{P}{r} = \frac{kr\mathcal{P}}{r} = k\mathcal{P}.$$
(2.24)

La concentración inicial de ${}^{210}Pb$ es constante¹. A este hecho es al cual el modelo debe su nombre. La concentración en el presente de un cierto estrato es

$$C = C_0 e^{-\lambda_{210}t}$$
(2.25)

o bien, dado que C_0 no depende de t,²

$$\frac{\mathrm{d}C}{\mathrm{d}t} = -\lambda_{210}C \implies \frac{\mathrm{d}C}{C} = -\lambda_{210}\mathrm{d}t.$$
(2.26)

Teniendo en cuenta nuevamente la ecuación 2.15 se deduce que

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}m}\ln\frac{C}{C_{ref}} = -\frac{\lambda_{210}}{r} \tag{2.27}$$

donde C_{ref} es algún valor de concentración arbitrario necesario para que el logaritmo esté aplicado a un valor adimensional. La tasa de acumulación puede estimarse a partir de la pendiente del logaritmo de la concentración como función de la profundidad.

Resta decir sobre este modelo que la edad del estrato de sedimento a la profundidad asociada a m se puede obtener mediante la expresión

$$t = \int_0^m \frac{\mathrm{d}m}{r} = -\frac{1}{\lambda_{210}} \ln \frac{C}{C_0}$$
(2.28)

donde el valor de C_0 es el de la concentración en el estrato más superficial, es decir el de edad 0.

¹En realidad, \mathcal{P} no es constante en el tiempo, pero sus variaciones no son apreciables al ser promediadas en tiempos del orden de años. En general, por la forma en que se miden los estratos, en una muestra de sedimento están comprendidos varios años de historia [Appleby y Oldfield (1992)]. A los fines experimentales, C_0 es constante.

²Esto no es cierto en el modelo CRS, en que $C_0 = \frac{P}{r}$ con P constante.

Para obtener el valor de *P* es necesario el valor de la constante $k\mathcal{P}$. Como se muestra en la ecuación 2.24, su valor es igual a la concentración inicial de ²¹⁰*Pb unsupported*. Entonces

$$P = C_0 r \tag{2.29}$$

2.1.4.3. Comentarios finales sobre los dos modelos

Se mencionó que el modelo CIC sólo admite perfiles de concentración de ^{210}Pb que sean monótonamente decrecientes con la profundidad.

El modelo CRS sí contempla la posibilidad de que la concentración crezca con la profundidad. Esto puede observarse al calcular $\frac{d}{dm} \ln \frac{C}{C_{ref}}$.

La afirmación general es que a cierta profundidad $C = C_0(t) e^{-\lambda_{210}t}$, donde *t* es la edad del sedimento y C_0 la concentración inicial a esa profundidad.

En el modelo CIC C_0 es constante y entonces se puede obtener la ecuación 2.27. Ahora bien, en el modelo CRS C_0 es función del tiempo a lo largo de la formación del sedimento –y por tanto de la profundidad– y el álgebra que se puede realizar es la siguiente...

$$\frac{\mathrm{d}C}{\mathrm{d}t} = \frac{\mathrm{d}C_0}{\mathrm{d}t}e^{-\lambda_{210}t} - \lambda_{210}C_0(t)e^{\lambda_{210}t}$$
$$C_0(t) = \frac{P}{r(t)} \implies \frac{\mathrm{d}C_0}{\mathrm{d}t} = -\frac{P}{r^2}\frac{\mathrm{d}r}{\mathrm{d}t} = \frac{P}{r^2}\dot{r}$$
$$\frac{\mathrm{d}C}{\mathrm{d}t} = -\lambda_{210}C + \frac{\dot{r}}{r}C \implies \frac{\mathrm{d}C}{C} = -\lambda_{210}\left(1 - \frac{\dot{r}}{\lambda_{210}r}\right)\mathrm{d}t$$

Téngase presente que aumentar *t* conlleva retroceder en el tiempo, por eso la tasa de variación temporal de *r* es $\dot{r} = -\frac{dr}{dt}$.

Finalmente, y con ayuda de la ecuación 2.15,

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}m}\ln\frac{C}{C_{ref}} = \frac{-\lambda_{210}}{r}\left(1 - \frac{\dot{r}}{\lambda_{210}r}\right).$$

Cuando $\frac{\dot{r}}{r}$ supere el valor crítico λ_{210} se producirá pendiente positiva en la concentración en función de la profundidad. Dicha situación es equivalente a que la aceleración del proceso de sedimentación sea tal que se duplique cada 22 años el valor de tasa de acumulación.

Los resultados que se obtienen con los dos modelos para la edad del sedimento a una misma profundidad pueden ser diferentes. La proximidad de los resultados a la realidad será mayor cuando los mecanismos de suministro de ^{210}Pb se correspondan de manera predominante con uno solo de estos dos modelos simples presentados.

La discrepancia entre las edades por ambos métodos pueden obtenerse restando las ecuaciones 2.19 y 2.28:

$$t_{CRS} - t_{CIC} = \frac{1}{\lambda_{210}} \ln \frac{r_{CRS}(0)}{r_{CRS}(t)}.$$
 (2.30)

Por esto mismo, la duplicación de r(t) produce una discrepancia de 22 años.

2.2. Fechado por ^{137}Cs

El ¹³⁷*Cs* es un producto de fisión del ²³⁵*U*. El ¹³⁷*Cs* no es abundante naturalmente por la infrecuencia de las fisiones espontáneas. Las cantidades apreciables de este isótopo que pueden identificarse en sedimentos son antropogénicas. Se deben principalmente a pruebas de detonaciones nucleares realizadas en durante las décadas de 1950, 1960 y 1970 y al accidente de Chernobyl en 1986. Estos eventos, cuyas fechas están documentadas, produjeron la liberación de productos de fisión y de activación a la atmósfera.

Para posibilitar el fechado, el isótopo a identificar debe tener una vida media larga. Algunos productos de fisión que cumplen la condición son el ${}^{90}Sr -T_{1/2} = 29$ años– y el ${}^{137}Cs -T_{1/2} = 30$ años–. El ${}^{137}Cs$ es el más usado por la facilidad con que se lo puede determinar por espectrometría gamma. La dificultad con el ${}^{90}Sr$ proviene de que es sólo emisor β^- . Como productos de activación se tiene al ${}^{239}Pu$ y ${}^{240}Pu$, cuyas actividades podrían medirse por separación radioquímica y contaje alfa, o al ${}^{241}Am$, que por su vida media larga y baja tasa de activación suele estar por debajo del límite de detección. Por otra parte deben conocerse los tiempos característicos entre la liberación del isótopo a la atmósfera y la precipitación en el lugar de interés.

En Argentina, se han realizado mediciones directas de la precipitación de isótopos radiactivos en la época en que ocurrían las explosiones en el Océano Pacífico Sur (1966 a 1974) y algunos años antes (*véase* referencia [Ribeiro Guevara y Arribére (2002)]).

En la ciudad de Buenos Aires se ha realizado recolección directa de agua de lluvia mensualmente desde 1959 y se detectó la presencia de productos de fisión de vidas medias relativamente cortas: ¹³¹*I* ($T_{1/2} = 8 d$), ¹⁴⁰*Ba* ($T_{1/2} = 13 d$), ¹⁰³*Ru* ($T_{1/2} = 39 d$) y ⁹⁵*Zr*+⁹⁵*Nb* ($T_{1/2} = 64 d y T_{1/2} = 35 d$). Los resultados de las mediciones muestran picos en la actividad específica en el agua de lluvia directamente correlacionados con los momentos en que ocurrieron las explosiones. Muestras diarias de aire analizadas entre 1966 y 1970 muestran que el tiempo medio desde la explosión hasta el máximo de concentración en aire de los isótopos es de 10 días. Dado que se observó el mismo comportamiento para todos los isótopos se concluyó que la vía de transporte desde el lugar de la explosión hasta la deposición es la misma para todos ellos, incluyendo también a los isótopos de vidas medias largas como el ¹³⁷*Cs*. A su vez se muestreó diariamente leche de vaca durante 1966, 1967 y 1974 en las ciudades de Salta, Buenos Aires y Bariloche para identificar



Figura 2.2. Fallout de productos de fisión medido en Buenos Aires.

la presencia de ^{131}I . Se encontró que las concentraciones máximas del isótopo ocurrían unos 12 días después de las explosiones y que la intensidad relativa de los máximos era más o menos la misma en las tres ubicaciones. Por lo tanto se concluyó que la "nube" radiactiva sobre el país era homogénea, a menos de diferencias regionales debidas a particularidades climáticas, en especial en el régimen de lluvias. Cabe mencionar que tiempos tan cortos como 10 o 12 días son atribuibles a transporte de radioisótopos a nivel troposférico.

También se realizaron en Buenos Aires mediciones anuales directas de las precipitación *-fallout*- de isótopos de vida media larga, ${}^{90}Sr$ y ${}^{137}Cs$. Se muestran los resultados obtenidos en la figura 2.2. Se encuentran las concentraciones máximas entre los años 1964 y 1966, rondando para el ${}^{137}Cs$ los $90 \frac{MBq}{km^2}$. Esto es atribuible a transporte estratosférico de radioisótopos provenientes de ensayos nucleares realizados en el hemisferio norte. Posteriormente la concentración empieza a decaer pero se observan picos de menor intensidad en 1971 y 1974. Éstos son adjudicables a los ensayos en el hemisferio sur. De ahí en más la precipitación de estos isótopos disminuye sostenidamente. En particular, el evento de Chernobyl casi no se observa, a diferencia de lo ocurrente en muestras del hemisferio norte.

Por lo explicado en los párrafos anteriores, extraído del trabajo correspondiente a la referencia [Ribeiro Guevara y Arribére (2002)], se espera la ocurrencia de picos en la con-

centración de ^{137}Cs en sedimentos lacustres cuya formación corresponda a los años 1964-1966, 1971 y 1974.

Esta técnica no permite más que asignar a ciertas profundidades del sedimento una fecha determinada, correspondiente con la de los ensayos nucleares. Sin embargo no se debe desestimar su utilidad, porque sus resultados son bastante inequívocos. No es así el fechado con ^{210}Pb , cuyos resultados pueden variar mucho si se aplica una u otra hipótesis sobre la tasa de suministro. En general, cuando se realiza espectrometría gamma, se miden simultáneamente los fotones del ^{210}Pb y del ^{137}Cs , con lo cual es sencillo calcular ambas concentraciones. Se suele realizar el fechado utilizando el resultado de ^{137}Cs para corroborar lo obtenido a partir de ^{210}Pb . Si hay correspondencia de resultados se puede utilizar el modelo de ^{210}Pb para obtener la tasa de sedimentación y la edad en el resto del testigo.

Capítulo 3

Desarrollo experimental

Para poder realizar fechado de sedimentos según lo presentado en el capítulo 2 es necesario fraccionar el testigo extraído en distintos niveles de profundidad, obtener de cada estrato un material homogéneo que pueda ser colocado en frascos para su manipulación, y por último medir la radiación gamma emitida por los radionucleidos presentes.

Se describen en este capítulo todos los pasos seguidos desde que se toma una columna de sedimento del fondo del lago hasta que se obtiene un espectro de radiación gamma en la pantalla de una PC.

3.1. Extracción del testigo

La extracción de un testigo se realiza utilizando un dispositivo llamado muestreador por gravedad o *corer –core* es la palabra que en inglés se usa para referirse a un testigo–.

Este dispositivo está formado por dos partes principales acopladas entre sí; un tubo de acrílico que tiene la función de alojar el testigo que se desea extraer y un cuerpo metálico superior o cabezal. Éste, hecho de plomo con recubrimiento de acero inoxidable, tiene una tapa circular concéntrica con el tubo que puede trabarse abierta por un mecanismo. En esa situación el agua del lago puede entrar por el extremo inferior del tubo y salir por el cuerpo metálico. Si se destraba la tapa, por medio del accionamiento de un botón, un resorte la presiona hacia abajo de modo que el tubo queda cerrado por su extremo superior. Así se puede generar succión sobre el material que se encuentre dentro del tubo por medios pasivos. Se muestra una fotografía del cabezal del *corer* en la figura 3.1(a).

Para extraer el testigo, se deja caer el *corer*, con la tapa del cabezal abierta y el tubo de acrílico acoplado en la parte inferior, atado a una soga y con unas aletas adosadas al cuerpo metálico, que estabilizan su movimiento y lo mantienen en una posición vertical (*véase* figura 3.1(b)). Cuando el dispositivo llega al fondo del lago, el tubo de acrílico se entierra en el sedimento por el peso de todo el conjunto. En ese momento se deja deslizar



(b) Cabezal del corer con las aletas para la inmersión y atado a la soga que transporta el mensajero (cilindro de plomo que está sobre el cabezal enhebrado a la soga).

(a) Cabezal del *corer* con la tapa del tubo abierta. El el extremo superior se aprecia el botón que acciona el resorte para el cierre.



Figura 3.2. Dibujos esquemáticos del cierre del corer para producir la succión del testigo.

por la soga, desde la superficie, una plomada cilíndrica que actúa como *mensajero por gravedad*. Cuando esta plomada llega al *corer*, su impulso es capaz de accionar el botón que libera el mecanismo para el cierre de la tapa del tubo. De ese modo el sedimento en su interior no tiene forma de escapar del tubo, a menos que venza la presión hidrostática que actúa en el extremo inferior. Se muestran dibujos esquemáticos del cierre del *corer* en la figura 3.2. En esta instancia, se recoge la soga para retirar el *corer* hasta la superficie con el testigo sedimentario en el interior del tubo de acrílico.

El tubo con el sedimento es sujeto a un corte diametral –con una sierra eléctrica se corta el acrílico y con una hoja de cobre el sedimento– de modo que se pueden inspeccionar visualmente sobre su plano central los distintos estratos. Se muestra una fotografía del testigo extraído del fondo del Lago Rivadavia en la figura 3.3. Éste corresponde a uno de los puntos más profundos del lago, a 90 *m* bajo la superficie del agua. El punto de muestreo fue escogido en un zona que mostró tener un fondo plano, sin pendientes abruptas.



Figura 3.3. Fotografías del testigo extraído del lago Rivadavia.



Figura 3.4. Liofilización: Diagrama de fases del agua y cambios de estado.

3.2. Preparación de las muestras

El testigo extraído es seccionado a distintas profundidades. En el presente trabajo, se ha seccionado cada un centímetro salvo en aquellos casos en que se observaran a simple vista, por cambios de color o textura, interfases entre diferentes calidades de sedimentos. Si la interfase es nítida, se realiza el seccionamiento ahí mismo. Si, en cambio, hay mezclado en la interfase y hay una capa de transición entre los dos tipos de sedimento diferentes, se define una sección de mezclado, que constituye en sí misma uno de los los niveles de seccionamiento y luego se sigue a partir de donde ya se observa la existencia de un solo tipo de depósito.

En particular, en el testigo del Lago Rivadavia se observaron grandes estratos de *tephra* alternados con sedimento *bulk*. Esto se debe a la intensa actividad volcánica que se registra en la zona. Se pueden apreciar los distintos estratos en la fotografía de la figura 3.3. Los niveles de tephra presentan un aspecto granulado, mientras que el sedimento bulk se ve uniforme.

La etapa siguiente consiste en eliminar la humedad presente en el sedimento. Se realiza para ello un proceso de liofilización, el cual consiste en deshidratar el material a temperaturas del orden de -55 C y en vacío –aproximadamente a 0,08 mmHg–. El proceso aprovecha las particularidades del diagrama de fases del agua (*véase* figura 3.4). Si se baja la temperatura por debajo del punto triple, a presiones superiores a la de este punto, el agua líquida pasa a estado sólido. A tan bajas temperaturas, el estado líquido no se manifiesta, con lo cual, si se establece un regimen de vacío el hielo sublima y pasa directamente a estado gaseoso –siempre que se cuente con el suficiente calor para el cambio de estado–. De ese modo, si se mantiene al material en esas condiciones durante suficiente tiempo, se puede extraer la humedad presente al comienzo del proceso. El material liofilizado puede almacenarse durante largo tiempo sin que se altere apreciablemente.

En la figura 3.4 se muestra el proceso de liofilización como una flecha azul. Las otras dos flechas indican procesos de evaporación desde el estado líquido. No se extrae la humedad por calentamiento a presión atmosférica –que sería menos costoso y más sencillo– para evitar las alteraciones físicas y químicas que la alta temperatura podría ocasionar, como por ejemplo pérdida de elementos o compuestos volátiles.

Una vez que se cuenta con el material deshidratado, éste es disgregado hasta la granulometría más fina posible sin destruir la estructura natural de material. Se intenta obtener un polvo lo más homogéneo posible.

3.3. Espectrometría gamma

Con el sedimento deshidratado se llenan frascos de plástico que constituyen las muestras que serán medidas en el detector de radiación gamma. A tal fin la geometría de los frascos debe ser compatible con la del detector.

Para la obtención del espectro gamma emitido por las muestras se utilizó una cadena de medición basada en un detector de pozo de germanio hiperpuro marca Canberra[™] modelo GC1522. El cristal del detector tiene un volumen nominal del 100 cm³.

El nombre "de pozo" se debe a la geometría del cristal y la carcasa. El detector, con simetría de revolución, dispone de una cavidad de 4 *cm* de profundidad y 1,6 *cm* de diámetro –el pozo– dentro de la cual puede colocarse la muestra. Se han utilizado para ello frascos cilíndricos de plástico de poco más de 4 *cm* de altura y aproximadamente 1 *cm* de diámetro. De esta manera el cristal, a 3 *mm* por debajo de la carcasa de aluminio del detector, subtiende alrededor de la fuente de radiación un ángulo sólido bastante grande. Esto le confiere al detector una muy alta eficiencia. En la figura 3.5 se observa de manera esquemática un corte del detector[Canberra Industries, Inc. (2009)].

La electrónica asociada a la detección gamma está implementada en un espectrómetro de rayos gamma digital LinxTM marca CanberraTM. Este módulo contiene un amplificador de pulsos, un conversor analógico digital y un multicanal. También incluye una fuente de alta tensión para la polarización del semiconductor y una de baja tensión para alimentar el preamplificador.

Para evitar que la alta tensión de polarización dañe la juntura del semiconductor, el cristal debe ser mantenido a baja temperatura. Para esto el cristal está en contacto con una copa metálica; debajo del detector hay un tanque de nitrógeno líquido dentro del cual se moja un *dedo* metálico en contacto con la copa. El sistema cuenta con un inhibidor



Figura 3.5. Esquema del corte de un detector de pozo.

de la alta tensión que actúa si se detecta bajo nivel de nitrógeno líquido.

En la sala donde está ubicado el detector se cuenta con una PC en la que se puede correr el software GENIE2K[®] para realizar la adquisición con el detector y el análisis del espectro. Dicho programa tiene acceso a la memoria del multicanal, el cual tiene 4096 canales. La calibración energía-canal había sido realizada con anterioridad a este trabajo, por el Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica (LAAN).

Se esquematiza el conexionado de los elementos mencionados en la figura 3.6.

3.4. Consideraciones especiales

Como un objetivo del trabajo es el de obtener el perfil de concentración de ^{210}Pb unsupported y ^{137}Cs , se debieron medir en el detector muestras pertenecientes a los distintos niveles en que se fracciona el testigo. Como las muestras son de baja actividad, las mediciones no duraron menos que una semana en ninguno de los casos. Esto hace que el fechado de un testigo sea una tarea bastante extensa en el tiempo.

Una consideración importante a la hora de preparar las muestras antes de ser colocadas en el detector es que el cierre de los frascos sea lo más hermético posible. Esto evita el escape del gas radón ^{222}Rn que proviene del decaimiento *in-situ* del radio ^{226}Ra . De todos los hijos del ^{226}Ra hasta el ^{210}Pb , el ^{222}Rn es el que tiene la vida media más larga (*véase* figura 2.1). Por lo tanto, para que se restablezca el equilibrio secular –roto en el momento en que el testigo fue extraído del lago, permitiendo la fuga de radón– es necesario esperar del orden de unos 15 0 20 días. El equilibrio secular es la hipótesis bajo la cual



Figura 3.6. Cadena de medición utilizada para la medición de las muestras extraídas del testigo en el detector de pozo.

puede determinarse la actividad absoluta de radio a partir del contaje gamma de fotones emitidos por alguna de sus especies hijas.

Adicionalmente, es importante la homogeneidad en el llenado –que no queden espacios vacíos–, ya que eso podría ocasionar ulterior desplazamiento y compactamiento del material dentro del frasco, cambiando sensiblemente la geometría de la fuente emisora de fotones. Deben evitarse también inhomogeneidades de densidad, porque eso ocasionaría una distribución de fuente no uniforme.

Por otra parte, debe tenerse en cuenta que por la relación de tamaño entre los frascos que contienen a las muestras y el detector y la distancia entre ellos, la fuente no puede ser tratada como puntual. Debe ser tratada como fuente extensa. A su vez, los factores de corrección por atenuación gamma en la muestra pueden no ser despreciables (en los siguientes capítulos se verá que efectivamente no lo son). Asimismo, es necesaria la realización de una calibración en eficiencia del detector para la geometría particular utilizada.

3.5. Procedimiento de trabajo

Los pasos seguidos para la realización de este trabajo en cuanto a la medición del testigo del Lago Rivadavia fueron los siguientes:

- * Extracción del testigo;
- * Liofilización;
- * Preparación de las muestras por niveles de profundidad y espera a que se restablezca en cada muestra el equilibrio secular;
- Medición de todos los niveles que fueron posibles en el tiempo de duración del trabajo.
- * Procesamiento de los espectros y realización de las correcciones pertinentes para la determinación de actividad específica absoluta.

El procesamiento de resultados requirió que paralelamente:

- * se obtuvieran factores de corrección por autoatenuación y
- * se realizara la calibración en eficiencia del detector con patrones certificados.

Este trabajo se describirá en detalle en los capítulos 4 a 7. Se anticipa que hizo falta

- realizar mediciones de transmisión para determinar los coeficientes de atenuación másicos de los sedimentos involucrados en todo el trabajo;
- * realizar cálculos numéricos para estudiar el fenómeno de autoatenuación;
- * medir espectros de patrones para determinar eficiencia para la geometría utilizada.

Los resultados de las mediciones del testigo se presentan en el capítulo 9.

Se muestra un diagrama lógico de todo el trabajo realizado en el cuadro mostrado en la figura 3.7. Se desea mencionar que la preparación de las muestras del testigo y de los patrones fue realizada por investigadores del LAAN que están familiarizados con el equipo y el manejo de sedimentos.



Figura 3.7. *Diagrama de tareas a realizar para la obtención de los perfiles de concentración y sus interrelaciones.*

Capítulo 4 _____ Eficiencia de detección gamma y Autoatenuación

La energía de los fotones emitidos por el ^{210}Pb que es necesario medir para realizar fechado es de 47 keV. A energías tan bajas los valores del coeficiente de atenuación lineal a la radiación gamma son bastante altos y los efectos de autoatenuación no son depreciables. A energías más altas, como la de los fotones del ^{137}Cs –662 keV– la autoatenuación no es un fenómeno tan significativo pero vale la pena hacer la corrección una vez establecido un método sistemático.

Si bien es cierto que no es necesario hacer una determinación absoluta de la concentración de plomo en el sedimento para poder obtener el valor deseado de tasa de sedimentación y edad, de una medición a otra se colocan diferentes masas de polvo en frascos dentro del detector de pozo con diferentes densidades y por lo tanto diferentes factores de autoatenuación. Eso solo, hecha la suposición de que el coeficiente de atenuación másico es el mismo para sedimentos de distinto origen, lo cual tiene un rango de validez acotado.

Demás está decir que ninguno de los otros materiales interpuestos entre la fuente de radiación y el detector es completamente transparente a la radiación γ . Su influencia no es estrictamente independiente de la muestra colocada. Esto se debe a distribuciones angulares modificadas por el fenómeno de autoatenuación. Por otra parte están presentes factores geométricos que hacen imposible la detección total de los fotones emitidos.

De no hacerse correcciones dirigidas a eliminar estos efectos, el perfil de concentración como función de la profundidad no estaría representado correctamente.

Por otro lado, para poder hacer comparaciones entre los resultados correspondientes a diferentes regiones geográficas, puede resultar útil tener alguna estimación *absoluta* de cuál es la concentración ^{210}Pb unsupported y ^{137}Cs en el suelo.

4.1. Conceptos utilizados y definiciones

La muestra de sedimento será considerada una fuente de radiación con distribución espacial uniforme y emisión isotrópica. Estas suposiciones son muy buenas en tanto el material sea bien molido y mezclado hasta alcanzar la homogeneidad y que el llenado del frasco que lo contiene no deje espacios vacíos. El espectro de energía de la fuente es discreto ya que se emiten fotones sólo de ciertas energías. Matemáticamente podría expresarse de la siguiente manera:

$$dS(\vec{r},\hat{\Omega},E) = \frac{a\rho}{4\pi} \sum_{i=1}^{n} y_i \delta_{(E-E_i)} d^3 \vec{r} d\hat{\Omega} dE$$
(4.1)

donde *a* es la actividad por unidad de masa (en Bq/kg), ρ la densidad y E_i las energías discretas de los fotones emitidos con sus respectivos *yields* y_i . Se llama *yield* y_i a la probabilidad de que se produzca la emisión de un fotón de la energía E_i al producirse un decaimiento del isótopo padre.

Idealmente, si todos los fotones emitidos por la fuente llegaran al detector inalterados y fueran contados con recolección total de energía, el espectro obtenido tendría esta expresión:

$$C_{(E)} = \int_{t_0}^{t_1} a_{(t)} m \sum_{i=1}^n y_i \delta_{(E-E_i)} \, dt$$
(4.2)

donde m es la masa de la muestra, t es la variable temporal, y t_0 y t_1 son los tiempos de comienzo y finalización de la medición, respectivamente.

En la realidad no todos los fotones son contados en el detector por diversos motivos. En primer lugar, el cristal del detector no rodea en 4π a la muestra. Por otra parte muchos de los fotones interactúan con los átomos y electrones de la muestra, el frasco que la contiene y componentes estructurales del detector. Además, fotones que lleguen a entrar en el cristal no necesariamente van a interactuar con los átomos en esa región y pueden llegar a escapar sin ser contados. También puede ocurrir que sí interactúen en el cristal pero que no se deposite la totalidad de la energía, con lo cual esa cuenta no contribuye al fotopico.

Supongamos que miramos sólo lo que le ocurre a un fotón de energía E_0 . La fuente de fotones de energía E_0 es

$$dS'(\vec{r},\hat{\Omega}) = \frac{a\rho}{4\pi} y' \,d^3\vec{r} \,d\hat{\Omega}$$
(4.3)

donde y' es el *yield* de la energía E_0 .

Podemos definir algunos sucesos para el fotón nacido en \vec{r} y en dirección $\hat{\Omega}$ relevantes al análisis:

- * *s*: Escapar de la muestra;
- * *l*: Llegar al cristal del detector;
- * *f*: Contribuir al fotopico;
- $\star l/s$: Llegar al cristal dado que haya escapado de la muestra;
- $\star f/l$: Contribuir al fotopico dado que haya llegado al cristal.

A cada uno de estos sucesos se le puede asignar una probabilidad de ocurrencia que depende de \vec{r} y $\hat{\Omega}$ y de propiedades de la muestra o el detector en cada caso. Las dependencias son las siguientes:

$$p_s = p_s(\vec{r}, \hat{\Omega}, \frac{\mu}{\rho}|_{_{\mathrm{cr}}}(E_0), \rho_m) \tag{4.4a}$$

$$p_{l/s} = p_{l/s}(\vec{r}, \hat{\Omega}, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_0))$$
(4.4b)

$$p_{l} = p_{l/s} p_{s} = p_{l}(\vec{r}, \hat{\Omega}, \frac{\mu}{\rho} \Big|_{m}(E_{0}), \rho_{m}, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_{0}))$$
(4.4c)

$$p_{f/l} = p_{f/l}(\vec{r}, \hat{\Omega}, E_0)$$
 (4.4d)

$$p_f = p_{f/l} p_l = p_f(\vec{r}, \hat{\Omega}, \frac{\mu}{\rho} \Big|_m (E_0), \rho_m, \mu_{obst.}(E_0), E_0)$$
(4.4e)

donde el cociente $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m (E_0)$ es el coeficiente de atenuación másico del sedimento para fotones de energía E_0 ; ρ_m es la densidad de la muestra; $\mu_{obst.}(E_0)$ representa a todos los coeficientes de atenuación lineal de los obstáculos entre la superficie externa de la fuente y el cristal –frasco, carcasa de Al, capa muerta del detector–.

Se escribió que $p_{f/l}$ depende de la energía explícitamente porque puede expresarse de la siguiente manera:

$$p_{f/l} = \frac{\int_0^{s_M(\vec{r},\hat{\Omega})} p_{i/l}(E_0,s,\vec{r},\hat{\Omega}) \cdot p_{f/i}(s,\vec{r},\hat{\Omega},E_0,\text{ geometría del detector}) \, \mathrm{d}s}{s_M(\vec{r},\hat{\Omega})}.$$
(4.5)

En la integral *s* es una variable de longitud de camino a lo largo de la recta que pasa por \vec{r} con dirección $\hat{\Omega}$ –de ahora en más, recta $(\vec{r}, \hat{\Omega})$ – y que vale 0 en el punto de entrada de la recta al cristal y s_M en el punto de salida. El producto $p_i.ds$ es la probabilidad de que el fotón tenga una interacción entre *s* y *s* + d*s* y $p_{f/i}$ la de que esa interacción contribuya eventualmente al fotopico.

En ninguno de los casos se explicitó la dependencia de todas las probabilidades con la geometría, que, demás está decir, está presente.

Un poco más explícitamente podemos decir lo siguiente:

$$p_s = e^{-\mu_m l_s} \tag{4.6}$$

$$p_{l} = \begin{cases} e^{-(\mu_{m}l_{s} + \mu_{\text{frasco}}l_{\text{frasco}} + \mu_{Al}l_{\text{carcasa}} + \mu_{Ge}l_{\text{DL}})} & \text{si la recta } (\vec{r}, \hat{\Omega}) \text{ pasa por el cristal} \\ 0 & \text{en otro caso.} \end{cases}$$

$$p_{l/s} = \begin{cases} e^{-(\mu_{\text{frasco}}l_{\text{frasco}} + \mu_{Al}l_{\text{carcasa}} + \mu_{Ge}l_{\text{DL}})} & \text{si la recta } (\vec{r}, \hat{\Omega}) \text{ pasa por el cristal} \\ 0 & \text{en otro caso.} \end{cases}$$

$$(4.7)$$

 μ_m es el coeficiente de atenuación lineal de la muestra; l_s es la distancia recorrida por el fotón desde el punto de nacimiento \vec{r} hasta que llega a la superficie de la fuente; l_{frasco} es la distancia recorrida por el fotón entre los puntos de entrada y salida al frasco; $l_{carcasa}$ es la distancia recorrida por el fotón para atravesar la carcasa de aluminio del detector; l_{DL} es la distancia recorrida por el fotón dentro de la capa muerta, hasta finalmente llegar a la superficie del cristal detector.

Como antes se dijo, estas probabilidades, a las que se hará referencia como *microscópi*cas, definen lo que le ocurre a un solo fotón de origen $(\vec{r}, \hat{\Omega})$. Para ver lo que ocurre con *un* fotón de fuente uniforme e isotrópico restaría promediar estas probabilidades en la fuente. Se define en este punto a las *probabilidades globales*:

- ⋆ P_s: Probabilidad de que un fotón de fuente uniforme e isotrópica escape de la muestra;
- * P_l : Probabilidad de que un fotón de fuente uniforme e isotrópica llegue al cristal del detector;
- * P_f : Probabilidad de que un fotón de fuente uniforme e isotrópica contribuya al fotopico;
- * $P_{l/s}$: Probabilidad condicional de que un fotón de fuente uniforme e isotrópica que haya escapado de la muestra llegue al cristal;
- * $P_{f/l}$: Probabilidad condicional de que un fotón de fuente uniforme e isotrópica que haya llegado al cristal contribuya al fotopico.

Entonces:

$$P_s(\left.\tfrac{\mu}{\rho}\right|_m(E_0),\rho_m) = \frac{\int_{Muestra} p_s(\vec{r},\hat{\Omega},\tfrac{\mu}{\rho}\Big|_m(E_0),\rho_m) \,\mathrm{d}S'}{S'}$$
(4.9a)

$$P_l\left(\left.\frac{\mu}{\rho}\right|_m(E_0), \rho_m, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_0)\right) = \frac{\int_{Muestra} p_l(\vec{r}, \hat{\Omega}, \frac{\mu}{\rho}\Big|_m(E_0), \rho_m, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_0)\right) \mathrm{d}S'}{S'} \tag{4.9b}$$

$$P_{f}(\mu_{\rho}|_{m}(E_{0}),\rho_{m},\mu_{obst.}(E_{0}),E_{0}) = \frac{\int_{Muestra} p_{f}(\vec{r},\hat{\Omega},\mu_{\rho}|_{m}(E_{0}),\rho_{m},\mu_{obst.}(E_{0}),E_{0}) \,\mathrm{d}S'}{S'}$$
(4.9c)

$$P_{l/s}\left(\left.\frac{\mu}{\rho}\right|_{m}(E_{0}),\rho_{m},\boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_{0})\right) = \frac{P_{l}}{P_{s}}$$

$$(4.9d)$$

$$P_{f/l}(\mu_{\rho}|_{m}(E_{0}),\rho_{m},\mu_{obst.}(E_{0}),E_{0}) = \frac{P_{f}}{P_{l}}$$
(4.9e)

En el apéndice A se da una justificación a las últimas dos ecuaciones, para la cual se parte desde una definición más fundamental.

Una diferencia notoria entre las probabilidades condicionales microscópicas y globales es que las últimas dependen de propiedades de algunos medios de las que las otras no dependían –en particular pasan a depender de propiedades de los medios que el fotón ya ha atravesado–. Esto es así porque las probabilidades globales son magnitudes integrales de la distribución de fotones. Una vez cumplida la condición de haber escapado de la fuente o haber llegado al cristal, la distribución espacial y angular de los fotones ya se ha visto afectada por los obstáculos superados. Esta última observación resulta relevante en el presente trabajo, pues se estará trabajando con fuentes extensas y a muy cortas distancias de la superficie del cristal del detector..

4.2. Línea de trabajo

 P_f es la eficiencia de detección ε , la cual se puede medir experimentalmente si se dispone de una fuente patrón calibrada y certificada.

Sería posible a partir de las mediciones de patrones obtener el valor de P_f y determinar con algún método de cálculo las probabilidades $P_s(\frac{\mu}{\rho}|_p(E_0), \rho_p)$ y $P_l(\frac{\mu}{\rho}|_p(E_0), \rho_p, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_0))$, donde el subíndice p denota patrón.

Para las mediciones de otras muestras se usaría como eficiencia

$$\varepsilon = P_{f/l}^{\text{patrón}} P_l^{\text{calculado}}(\left. \frac{\mu}{\rho} \right|_m(E_0), \rho_m, \boldsymbol{\mu}_{obst.}(E_0)).$$
(4.10)

o bien

$$\varepsilon = P_{f/s}^{\text{patrón}} P_s^{\text{calculado}}(\left. \frac{\mu}{\rho} \right|_m(E_0), \rho_m).$$
(4.11)

La primera ecuación separa un efecto de atenuación en los materiales de la muestra y la cubierta del detector $-P_l$ – y los fenómenos de recolección de la energía en el cristal del detector $-P_{f/l}$ –. La segunda ecuación pone en evidencia un factor de autoblindaje o *self-shielding* en la fuente $-P_s$ – y un factor de eficiencia que depende del detector $-P_{f/s}$ –. No se puede decir sin dar una justificación que $P_{f/s}$ y $P_{f/l}$ sean independientes de las propiedades de las muestras, porque como se ve en las ecuaciones 4.9 eso no es estrictamente cierto. Sin embargo parte del trabajo consistirá en probar que la dependencia no es muy fuerte y puede ser ignorada.

Bajo este esquema el primer parámetro relevante que encontramos es el *coeficiente de atenuación lineal* μ para la radiación γ en los diversos materiales involucrados.

Para cualquiera de los materiales con los cuales está construido el detector los coeficientes están tabulados. Pero en el caso del sedimento, dado que no se conoce su composición con precisión, no es posible obtenerlos sumando los coeficientes μ con sus correspondientes factores de ponderación, como se hace habitualmente. En este caso se optó por medirlos por el método de transmisión. La metodología y los resultados obtenidos se exponen en el capítulo 5

Se codificó y corrió una rutina de cálculo Monte Carlo para determinar qué fracción de los fotones nacidos en la fuente escapa de ella y llega hasta el cristal de detector. De esta manera se pudo calcular P_s y P_l como función de la masa de muestra colocada dentro del detector en un frasco de volumen fijo. Además se estudió la dependencia entre $P_{l/s}$ y la masa de la muestra, que de no ser fuerte permitiría separar el cálculo de la eficiencia total entre una eficiencia intrínseca del detector ($P_{f/s}$) y un factor de autoatenuación de la muestra (P_s). Estos procedimientos se detalla en el capítulo 6.

También se midieron sedimentos patrones para la determinación de ε . A partir de ese dato se pudo estimar la probabilidad condicional de que un fotón que escape de la fuente contribuya al fotopico, o sea $P_{f/s}$. Las mediciones y los resultados se presentan en el capítulo 7.

Por último, en el capítulo 8 se expone brevemente cómo utilizar todos los resultados obtenidos para la realización de las correcciones. Se explica cómo obtener la actividad específica absoluta de un sedimento a partir de las áreas de los fotopicos de su espectro.

Capítulo 5

MEDICIONES DE TRANSMISIÓN

El fenómeno de autoatenuación consiste en que una cierta fracción de los fotones emitidos en la muestra es removido del haz por algún mecanismo de interacción gamma con la materia *en la muestra*. Si bien puede que el fotón no sea absorbido en esa interacción, el simple hecho de que tras la reacción de *scattering* el fotón emergente tenga una energía menor hará que ese fotón no contribuya al área del fotopico que se desea medir. Cualquier interacción similar con otros elementos interpuestos entre la fuente y el cristal surtirá el mismo efecto.

En el rango de energías de interés, las interacciones entre los fotones y la materia son *degradadores* de la energía del fotón –se trata de efecto Compton y fotoeléctrico–. A partir de esto surge la primera hipótesis de modelado: Todo fotón que sufra interacción fuera del cristal no contribuirá al fotopico.

Como se dijo en la sección anterior, los valores del coeficiente de atenuación lineal se conocen para las sustancias de las que está hecho el detector y el frasco de la muestra. Pero no es así para el sedimento, ya que se desconoce su composición. Por este motivo se decidió realizar la medición directa del coeficiente de atenuación lineal, μ , para las muestras.

La definición, en términos de una probabilidad, de μ es

$$\mu.\mathrm{d}x = P(x < X < x + \mathrm{d}x/X > x) \operatorname{con} \mathrm{d}x \to 0$$
(5.1)

donde X es una variable aleatoria que representa el punto en que el fotón interactúa en una recta de coordenada x.

Es consecuencia directa de esto que

$$P(X > x) = e^{-\mu x}.$$
(5.2)

Si se tiene una corriente colimada, todo fotón que esté destinado a atravesar un espesor

x de material, deberá recorrer sin interactuar una distancia x en el material. Si el rayo no estuviera colimado, algunos fotones entrarían no perpendiculares a la capa de material y la distancia de que deberían recorrer sería mayor, con lo cual tienen menos probabilidad de atravesarlo. Para una corriente colimada incidente perpendicularmente I_0 de fotones de cierta energía E, la corriente de fotones de energía E luego de atravesar un espesor xserá

$$I(x) = I_0 e^{-\mu x}.$$
 (5.3)

Si se tienen dos mezclas de igual composición pero distinta densidad, se cumple

$$\frac{\mu_1}{\mu_2} = \frac{\rho_1}{\rho_2} \tag{5.4}$$

ya que μ , al igual que una sección eficaz macroscópica, es proporcional al número de átomos por unidad de volumen. En particular nos interesará determinar el cociente $\frac{\mu}{\rho}$ de la muestra. Directamente a partir de la ecuación 5.3

(_____

$$\left. \frac{\mu}{\rho} \right|_m = -\frac{\ln\left(\frac{I(x)}{I_0}\right)}{\rho_m x}.$$
(5.5)

Se puede generar una corriente a partir de una fuente y medir directamente I_0 y I(x) con algún detector de radiación γ . Se determina ρ por mediciones de masa y volumen de la muestra colocada en el detector. Se recalca la importancia de colimar bien el rayo que ha de atravesar la muestra para que todos los fotones recorran la misma longitud de camino en la muestra. Interesa contar solamente los fotones que no han interactuado en la muestra y contribuyen al fotopico.

5.1. Método experimental

Se describe a continuación la forma en que se realizaron las mediciones de transmisión. El experimento se realizó en el Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica, ubicado en el edificio del Reactor RA-6, Centro Atómico Bariloche.

Se contó con una cadena de detección γ basada en un *detector de germanio híper puro* marca ORTECTM. Es un detector tipo *n* con ventana de berilio de eficiencia relativa 3×3 del 10%. La electrónica se basa en un espectrómetro de rayos gamma digital que consta de un amplificador, un conversor analógico digital (ADC) y un multicanal (MCA) para el procesamiento de la señal, así como también de fuentes de bajo y alto voltaje, para polarizar el preamplificador y el detector, respectivamente. Por sus características, el cristal del detector debe ser mantenido a baja temperatura. Esto se logra por medio de una copa que lo envuelve, la cual cuenta con un dedo en contacto con nitrógeno líquido. El tanque



Figura 5.1. Cadena de medición utilizada para experimentos de transmisión.

contenedor trae asociado un medidor de nivel ORTEC[™] 729A. Si el nivel está demasiado bajo, el medidor de nivel puede inhabilitar a la alta tensión, para que el detector no sufra daño por polarización a alta temperatura. El esquema de conexionado es el mismo que se utiliza para las mediciones de muestras en el detector de pozo (*véase* cap. 3), salvo que las marcas de los componentes y el tipo de detector son otros. Se presenta un esquema del arreglo en la figura 5.1.

La calibración energía-canal del equipo había sido realizada previamente por el laboratorio:

$$E(c) = 0,27keV + 0,5049\frac{keV}{canal} * c$$

donde c es el número de canal.

Por otra parte, se dispuso de fuentes de radiación certificadas por IAEA de ${}^{226}Ra$ y ${}^{137}Cs$. La fuente de ${}^{210}Pb$ con que cuenta el laboratorio tiene una actividad muy baja como para hacer mediciones de duración razonable, pero la de ${}^{226}Ra$ tiene una actividad de ${}^{210}Pb$ superior. De cualquier modo cabe aclarar que esa cantidad de plomo no es la cantidad que estaría en equilibrio secular con el radio de la fuente, ya que no se puede asegurar que el ${}^{222}Rn$ permanezca por completo en la fuente, con lo cual la cadena de decaimiento se ve alterada.

El laboratorio cuenta con una variedad de colimadores de plomo y soportes de plástico de diversos tamaños para poder poner la fuente a la distancia que se desee con respecto al detector.

El colimador utilizado es un cilindro de plomo de 6,2 cm de diámetro y 9,25 cm de



Figura 5.2. Esquema de la geometría del colimador.

altura con un hueco también cilíndrico de 3 *cm* de diámetro y 4 *cm* de profundidad. Concéntrico a ese hueco se le ha realizado una perforación de 0,5 *cm* de diámetro pasante hasta el otro lado. Se puede ver la geometría del colimador en la figura 5.2.

Las muestras a medir fueron preparadas dentro de frascos de acrílico con forma de disco. El radio interno es de 2,18 *cm*. La parte inferior del frasco contiene a la muestra en forma de polvo y tiene una profundidad de 0,75 *cm*. Se cubrió la superficie superior del polvo con una lámina de papel *film*, para asegurar el valor del espesor. Se colocó encima la tapa del frasco. Se midió la masa del sedimento por diferencia entre el frasco lleno y vacío. Cada frasco fue etiquetado para no perder registro de su contenido.

Para realizar la medición, el frasco con la muestra fue colocado sobre la superficie del detector. Por encima se colocó un soporte de plástico cuyo borde encaja con el detector y que en acople forma una cavidad dentro de la cual queda contenida la muestra. Sobre él se colocó el colimador, y en el interior, y teniendo mucho cuidado de que quedase todo centrado, se colocó la fuente radiactiva, de modo tal que a la muestra llega un rayo de fotones bien colimado. Se muestra un esquema de la disposición de los elementos mencionados en la figura 5.3.

Cada medición consistió en realizar este montaje y en registrar el espectro recogido por el multicanal del módulo electrónico durante algún tiempo de medición tal que se tuviera una estadística razonable.

Se midió el espectro en diversos casos. Se usaron las fuentes de ^{226}Ra y ^{137}Cs con las siguientes muestras:

- * Frasco vacío con el papel *film*.
- * Frascos con sedimentos patrones certificados por IAEA (IAEA300 e IAEA327).
- * Tres frascos con sedimentos de diferentes estratos del fondo del lago Rivadavia.



Figura 5.3. Montaje utilizado para las mediciones de transmisión.

El frasco vacío se utilizó a fines de determinar, para cada fuente, los valores de I_0 que habría que usar en la ecuación 5.5 para el cálculo de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ en cada energía en la que hubiera un fotopico. Los frascos con sedimentos se utilizaron para determinar el valor de I(x) siendo x el espesor de la capa de sedimento, o sea 0,75 *cm*.

Una dificultad que se observó es que en realidad el polvo no llenaba de manera pareja el espacio disponible dentro del recipiente, por lo cual no se podía asegurar, a pesar del uso del papel *film*, que el espesor de la capa de sedimento fuera el que acusaba tener la parte inferior del frasco. Por este motivo se procedió a compactar y amontonar por medio de golpeteo, todo el sedimento hacia un lado del frasco. Se obtenía una geometría como la mostrada en la figura 5.4.

El producto $\rho_m x$ no depende de x:

$$\rho_m x = \frac{M_m \mathscr{X}}{A_\perp \mathscr{X}} = \frac{M_m}{A_\perp} \tag{5.6}$$

donde A_{\perp} es el área que la muestra expone perpendicularmente al rayo. Lo cierto es que la no uniformidad de la superficie del polvo no aseguraba que el espesor promedio \bar{x} coincidiera con aquel correspondiente al valor local en el punto en que incidía el haz de fotones. Y 1 mm de incerteza en la determinación del espesor conlleva más de un 10 %



Figura 5.4. *Geometría a partir de la cual se midió* A_{\perp} *.*

de incerteza. En cambio 1 *mm* de incerteza en la medición de la longitud R + h mostrada en la figura 5.4 no aporta más de un 2 % o 3 % de incerteza en A_{\perp} . La ecuación 5.5 se convierte en

$$\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m} = -\frac{\ln\left(\frac{I(x)}{I_{0}}\right)A_{\perp}}{M_{m}}.$$
(5.7)

Para la geometría usada, la expresión matemática para el cálculo de A_{\perp} resulta:

$$A_{\perp} = R^2 \left(\pi - \arccos \frac{h}{R} \right) + Rh \sqrt{1 - \frac{h^2}{R^2}}.$$
(5.8)

En cuanto a los tiempos de medición, se tomó como criterio medir hasta que los fotopicos más relevantes al fechado (los de 47keV, 295keV, 351keV, 609keV y 662keV) tuvieran incertezas en el área ajustada con el software GAMMA VISION® de ORTEC® del 1 % o menos. Para la fuente de ^{137}Cs este tiempo es de unas 3 o 4 horas y para la fuente de ^{226}Ra es de aproximadamente un día.

La determinación de las corrientes de fotones se obtuvo a partir del área de los fotopicos en el espectro. No se las ha determinado de manera absoluta pues sólo se requiere su cociente. Teóricamente, el contaje en los fotopicos se obtiene a partir de la expresión

$$C = \int_0^{t_m} I(t) \mathrm{d}t \ \varepsilon \ \delta_{DT}$$
(5.9)

donde t_m es el tiempo que dura la medición del espectro, ε es la eficiencia absoluta del detector para un rayo colimado concéntrico al cristal y δ_{DT} es un factor de corrección por tiempo muerto en la medición. La corriente I varía en el tiempo porque el radioisótopo de la fuente decae exponencialmente. Por lo tanto, en principio,

$$C = I_{(t=0)} \frac{1 - e^{-\lambda t_m}}{\lambda} \varepsilon \,\delta_{DT}.$$
(5.10)

Para valores de λt_m menores a 0,001 no se comete gran error en aproximar $e^{-\lambda t_m} \approx 1 - \lambda t_m$. El caso es que para los isótopos utilizados, las vidas medias son de 1609 años y 30 años, para el radio y el cesio respectivamente, y los tiempo de medición no superan uno o dos días, por lo tanto en todos los cosas $\lambda t_m < 2 \cdot 10^{-4}$. Por otra parte, como la actividad de las fuentes es casi constante en el tiempo, la distribución del tiempo muerto puede considerarse uniforme durante el tiempo de medición, con lo cual $\delta_{DT} = \frac{t_v}{t_m}$. Incorporando esto en la ecuación 5.10, se obtiene una expresión más sencilla:

$$C = I \not t_m \varepsilon \frac{t_v}{\not t_m} = I \varepsilon t_v.$$
(5.11)

Entonces, la ecuación 5.7 se reescribe en términos de los datos que se miden experimentalmente como

$$\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m} = -\ln\left(\frac{C_{muestra} t_{v,vacio}}{C_{v,vacio} t_{muestra}}\right)\frac{A_{\perp}}{M_{m}},\tag{5.12}$$

o bien

$$\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m} = -\ln\left(\frac{I^{*}(x)}{I_{0}^{*}}\right)\frac{A_{\perp}}{M_{m}},$$
(5.13)

donde el asterisco en las corrientes indica que no están corregidas por eficiencia $-I^* = \frac{C}{t_v}$ -.

5.2. Resultados obtenidos

Para cada medición con una muestra y una fuente se obtuvo un espectro que fue almacenado en la memoria del multicanal, a la que se accedió a través de la interfaz gráfica del programa GAMMA VISION[®]. Del procesamiento de las áreas de los fotopicos identificados y de la comparación entre espectros pudieron obtenerse valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ según las ecuaciones presentadas.

5.2.1. Patrones IAEA300 e IAEA327

En primer lugar se midió la transmisión a través de dos sedimentos patrones –los cuales se utilizaron para la calibración en eficiencia del detector de pozo– certificados por IAEA:

- * IAEA300: Sedimento del Mar Báltico,
- * IAEA327: Sedimento de suelo.

Los datos correspondientes a las muestras armadas a partir de ellos se exponen en la tabla 5.1.

	IAEA300	IAEA327
Masa (g)	$7,339\pm0,001$	$13,6623\pm 0,0007$
R + h (cm)	$3,88\pm0,05$	$4,36\pm0,05$
$A_{\perp}~(cm^2)$	$14,04\pm0,16$	$14,93\pm0,14$

Tabla 5.1. Masa y datos geométricos de las muestras para medición de transmisión en los patrones.

Se tomaron los espectros con ambas fuentes y las muestras y se los comparó como aquellos obtenidos poniendo el frasco vacío en lugar de la muestra. De ese modo se contó, para cada fotopico, con un valor de $I^*(x)$ y uno de I^*_0 , respectivamente.



En la figura 5.5 se muestran los espectros obtenidos para las fuentes de ^{137}Cs y ^{226}Ra .

Figura 5.5. Espectros gamma de las fuentes de ${}^{137}Cs$ y ${}^{226}Ra$. La escala de abscisas es logarítmica y las unidades son arbitrarias.

El cálculo de área de los picos se realizó utilizando las funciones de las que dispone el software GAMMA VISION[®]. Se muestran en la tabla 5.2 los picos identificados de menor incerteza relativa para mediciones con el frasco vacío y con sedimento. Además se indica con qué fuente fue medido ese fotopico y cuál es el isótopo padre cuyo decaimiento deriva finalmente en la emisión de ese gamma.

	IAE	A300	IAE	A327		
Energía (keV)	$rac{I_0^*}{rac{cuentas}{seg}}$	$\frac{I^*(x)}{\frac{cuentas}{seg}}$	$rac{I_0^*}{rac{cuentas}{seg}}$	$\frac{I^*(x)}{\frac{cuentas}{seg}}$	Fuente	Padre
46,539	4,33(5)	3,37(3)	4,45(6)	3,01(5)	^{226}Ra	^{210}Pb
53,172	2,56(4)	2,09(4)	2,56(5)	1,90(4)	^{226}Ra	^{214}Pb
186,21	3,54(4)	3,27(2)	3,54(10)	3,15(4)	^{226}Ra	^{226}Ra
241,979	5,17(5)	4,80(6)	5,08(3)	4,57(2)	^{226}Ra	^{214}Pb
295,207	10,82(4)	10,11(2)	10,66(4)	9,75(2)	^{226}Ra	^{214}Pb
351,925	18,15(5)	17,06(4)	17,96(6)	16,47(4)	^{226}Ra	^{214}Pb
609,318	23,77(7)	22,59(6)	23,72(6)	21,94(4)	^{226}Ra	^{214}Bi
661,66	21,05(5)	20,03(14)	21,10(7)	19,55(13)	^{137}Cs	^{137}Cs

Tabla 5.2. Intensidades de fotopicos medidas para determinar transmisión a través de los patrones de IAEA.

Se han realizado dos mediciones para el frasco vacío porque la colocación de la fuente un poco alejada de la concentricidad con el colimador podría llevar a un contaje diferente si no es uniforme la distribución del radioisótopo en su interior. Cada vez que se midió una muestra se colocó la fuente en el colimador, se midió el frasco vacío, se retiró el colimador sin quitar de su interior la fuente, se colocó la muestra y se reubicó el colimador. De ese modo se procuró que la fuente tuviera siempre la misma posición en el colimador.

Aplicando la ecuación 5.13 se pudo obtener una estimación del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ en los distintos valores de energía de estos fotopicos.

Se había realizado una estimación previa del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ utilizando el programa XMUDAT, distribuido por IAEA, el cual es capaz de calcular el coeficientes de atenuación másicos de una mezcla de composición conocida. Se calculó el cociente $\frac{\mu}{\rho}$ para un sedimento de composición típica. En porcentajes en peso, la composición utilizada fue: 70 % *SiO*₂, 15 % *Al*₂*O*₃, 5 % *Fe*₂*O*₃, 5 % *MgO*, 3 % *Mn* y 2 % *CaO*.

Los valores de $\frac{\mu}{\rho}$ medidos para los patrones y calculados con XMUDAT se representan en la figura 5.6.

Las incertezas con las que se han medido estos valores oscila entre el 5 % y 40 %. El pico de 186*keV* es el más pobre en contaje, por lo tanto en él siempre se observan incertezas altas. Hay que tener en cuenta que las incertezas de las áreas de los fotopicos tienen tanto más peso en la incerteza relativa de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ cuanto más cercana a 1 es la transmisión, es decir $\frac{I(x)}{I_0}$. Esto queda más que claro al mirar la fórmula obtenida por propagación de



Figura 5.6. Valores medidos para el coeficiente de atenuación másico de los patrones IAEA300 e IAEA327 y estimados para suelo típico, en función de la energía del fotón.

incertezas para $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$:

$$\sigma_{\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m}} = \frac{\mu}{\rho}\Big|_{m} \sqrt{\varepsilon_{A_{\perp}}^{2} + \varepsilon_{M_{m}}^{2} + \frac{\varepsilon_{I^{*}(x)}^{2} + \varepsilon_{I_{0}}^{2}}{\left(\ln\left(\frac{I^{*}(x)}{I_{0}^{*}}\right)\right)^{2}}}$$
(5.14)

donde ε significa incerteza relativa. Por este motivo, a altas energías y para los materiales menos densos, las incertezas relativas son tan altas.

5.2.2. Sedimentos del testigo del Lago Rivadavia

El mismo proceso de medición y cálculo realizado para la muestra patrón se siguió a su vez para tres muestras del testigo del Lago Rivadavia. En la tabla 5.3 se muestran la masa y los datos geométricos de cada una de las muestras.

El sedimento identificado como *Ri1* corresponde a una capa de baja densidad y grano fino. El sedimento *Ri2*, se eligió como el más representativo del testigo extraído y tiene una densidad y granulometría intermedia. *Ri3* corresponde a un sedimento que se espera contenga altas fracciones de cenizas volcánicas y es de densidad más alta. Se da una descripción técnica más detallada, brindada por la Dra. Romina Daga, quien trabaja en el

	Ri1	Ri2	Ri3
Masa (g)	$5,6788 \pm 0,0007$	$6,7314 \pm 0,0007$	$9,4689 \pm 0,0007$
R + h (cm)	$3,33\pm0,05$	$3,31\pm0,05$	$3,76\pm0,05$
$A_{\perp}~(cm^2)$	$12,2\pm0,2$	$12,2\pm0,2$	$13,69\pm0,17$

 Tabla 5.3. Masa y datos geométricos de las muestras tomadas del testigo del Lago Rivadavia.

LAAN.

- *Ri1* (cm 7-8): Sedimento de granulometría limo-arcillosa, de color gris-marrón claro.
 En la fracción más fina puede observarse presencia de partículas oscuras.
- ** Ri2* (cm 41-42): Sedimento de granulometría limo-arcillosa, de color gris-marrón claro. Es un material bastante homogéneo, con escasa participación de partículas oscuras en la fracción fina.
- * *Ri3* (cm 37-38,5): Sedimento integrado predominantemente por partículas alóctonas, principalmente de origen volcánico primario o retrabajado. Posee un tamaño de partículas variable desde arenas finas hasta gravillas en algunos casos. Este sedimento forma parte de un nivel de aproximadamente 8 cm de espesor correspondiente a un posible depósito de retrabajo, ya que está compuesto por partículas de diversos orígenes y composiciones. Se observan partículas volcánicas de color blanco, algunas con textura pumícea y otras masivas, fragmentos basálticos de color gris oscuro-negro y fragmentos líticos de variada composición.

Se obtuvo $\frac{\mu}{a}$ vs. E para esas tres muestras, resultado que se muestra en la figura 5.7.

Es notorio que el material volcánico contribuye a aumentar el valor de $\frac{\mu}{\rho}$. Posiblemente eso se deba al alto contenido de elementos pesados. Por su parte, *Ri1* y *Ri2* presentan valores claramente inferiores. Esto sugiere la necesidad de tomar criterios por separado para analizar los sedimentos con alto contenido de cenizas con respecto a aquellos de bajo contenido.

5.2.3. Resumen de resultados

A los efectos de analizar los perfiles de ${}^{137}Cs$ y ${}^{210}Pb$ en el suelo, son de interés los valores de los coeficientes de atenuación a las energías de 47 keV (${}^{210}Pb$), 295 keV (${}^{214}Pb$), 351 keV (${}^{214}Pb$), 609 keV (${}^{214}Bi$) y 662 keV (${}^{137}Ce$). Éstos se listan en la tabla 5.4 para los distintos sedimentos.



Figura 5.7. Valores medidos para el coeficiente de atenuación másico de diferentes estratos del sedimento del Lago Rivadavia en función de la energía del fotón.

Energía	IAEA300	IAEA327	Ri1	Ri2	Ri3
47 keV	0,48(3)	0,43(3)	0,44(4)	0,49(3)	0,48(3)
295 keV	0,13(2)	0,098(5)	0,056(11)	0,078(11)	0,13(1)
351 keV	0,12(1)	0,095(5)	0,054(8)	0,065(9)	0,112(7)
609 keV	0,097(7)	0,086(4)	0,046(7)	0,055(6)	0,094(5)
662 keV	0,094(14)	0,083(7)	0,043(17)	0,054(8)	0,085(13)

Tabla 5.4. Valores del coeficiente de atenuación másico (en cm^2/g) de los sedimentos en las energías principales para este análisis.

Contando con estos valores, se dispone de la información necesaria para para realizar la simulación de la emisión de fotones desde el sedimento por cálculo.

Capítulo 6

CÁLCULOS DE ATENUACIÓN

Como se anticipó en el capítulo 4, se utilizaron métodos numéricos de cálculo para la determinación cuantitativa de las probabilidades P_s y P_l . El objetivo no es sólo encontrar los valores de estas probabilidades, sino el de estudiar la variación de $P_{l/s}$ para distintas densidades de muestra. Si $P_{l/s}$ se muestra independiente de la densidad de la muestra, habría poco error en separar al problema en dos etapas independientes, una de autoatenuación en la muestra, cuyo parámetro principal es P_s , y otra de eficiencia del detector, representada por $P_{f/s}$.

En este capítulo se describe la rutina de cálculo implementada y se presentan los resultados obtenidos para las probabilidades con el correspondiente análisis.

6.1. Cálculo Monte Carlo

Se escribió una rutina de cálculo utilizando el método Monte Carlo para la determinación de las citadas probabilidades en lenguaje C.

La hipótesis subyacente en el modelado del problema es que todo fotón que realice una interacción con algún átomo en su camino hacia la superficie del cristal del detector no podrá contribuir al fotopico. En otras palabras, se realiza el contaje de los fotones de primer vuelo que llegan al detector. Se supone que todo fotón que no sea de primer vuelo tendrá una energía menor y por tanto ya no podrá contribuir al fotopico. Bajo esta hipótesis son válidas las ecuaciones presentadas en la sección 4.1.

6.1.1. Geometría y materiales

El primer paso para el cálculo es definir la geometría del conjunto formado por la muestra y el detector y los materiales en cada región del espacio, representados por medio de sus coeficientes de atenuación. Los valores de estos coeficientes dependerán de a qué energía se quieran conocer las probabilidades.



En la figura 6.1 se presenta un esquema de dicha geometría y los valores de los parámetros se explicitan en la tabla 6.1.

Figura 6.1. Geometría utilizada para el cálculo de probabilidades por método Monte Carlo.

			Posición (cm)
	Valor (cm)	$\overline{z_1}$	0,72
R_1	0,551	z_2	0, 42
R_2	0,65	z_3	0, 37
R_3	0,75	z_4	0,07
R_4	0,8	z_5	-3,48
R_5	1, 1	z_6	-3,58
R_{DET}	1, 17	z_7	-3,63
R_{ext}	3,00	z_8	-3,93
		z_9	-4,00
(a) Radios		(b)	Planos horizontales

 Tabla 6.1. Valores de los parámetros geométricos para el modelado Monte Carlo.



Figura 6.2. Variables involucradas en el nacimiento de un fotón.

6.1.2. Modelado de la fuente

El programa desarrollado modela a la fuente como uniforme e isotrópica y monoenergética. Es un cilindro de radio R y altura H. Hay funciones en el código que deciden dónde nace el fotón y en qué dirección lo hace. Dado que hay simetría radial, el punto de nacimiento se define a partir de la distancia radial al centro r_0 y la altura z_0 . Se determina su dirección $\hat{\Omega}$ mediante la elección de dos ángulos:

- * el ángulo polar θ entre las direcciones \hat{r} y $\hat{\Omega}$,
- $\star\,$ el ángulo azimutal $\phi.$

Se muestra un gráfico que representa el nacimiento de un fotón, ilustrando todas las variables involucradas, en la figura 6.2.

Dado que hay simetría de revolución, se define un eje \hat{x} paralelo a \hat{r} , un eje \hat{z} vertical y un eje \hat{y} tal que $\hat{y} = \hat{z} \times \hat{x}$. En este contexto es fácil ver que:

$$\hat{\Omega} = \cos\theta \ \hat{x} + \sin\theta\sin\phi \ \hat{y} + \sin\theta\cos\phi \ \hat{z}.$$
(6.1)

La forma en que se calculan los valores aleatorios para cada una de las variables (r_0 , z_0 , $\theta \neq \phi$) es la siguiente:

$$r_0 = R\sqrt{\xi_1} \tag{6.2a}$$

$$z_0 = H.\xi_2 + z_{inf} \tag{6.2b}$$

$$\theta = \arccos\left(1 - 2\xi_3\right) \tag{6.2c}$$

$$\phi = 2\pi.\xi_4 \tag{6.2d}$$

donde ξ_i son números aleatorios distintos con distribución uniforme entre 0 y 1 y z_{inf} es el valor de *z* asignado al extremo inferior de la fuente. Se demuestra que estas expresiones obtienen los valores iniciales con la distribución adecuada en el apéndice B.1.

6.1.3. Algoritmo general

La forma de determinar si un fotón llega o no a la superficie del cristal del detector consta de varios pasos. En primer lugar es distinto si el fotón sale hacia arriba o hacia abajo, es decir si $\hat{\Omega} \cdot \hat{z} \ge 0$ o si $\hat{\Omega} \cdot \hat{z} \le 0$, respectivamente.

Se sortea el fotón de fuente para obtener r_0 , z_0 y $\hat{\Omega}$. Se definen $x_0 = r_0$ y $y_0 = 0$.

Primero, por medio de algunas comparaciones, se determina si la trayectoria definida por (x_0, y_0, z_0) y $\hat{\Omega}$ pasa por el cristal. Si así lo hace, se procede a procesar el fotón.

Se sortea un número aleatorio con el cual se determina cuántos caminos libres medios recorrerá en total el fotón en los diversos medios materiales que irá atravesando hasta interactuar. La forma en que se obtiene dicho número aleatorio, λ , es

$$\lambda = -\ln\xi_5 \tag{6.3}$$

donde ξ_5 es un número aleatorio de distribución uniforme entre 0 y 1. Este expresión también se justifica en el apéndice B.1.

Se determina, por medio de cálculos de intersecciones –entre la recta y las superficies– y comparaciones, qué superficies es necesario atravesar secuencialmente para llegar hasta la superficie del cristal. Puede que sean las caras cilíndricas de los distintos elementos o las caras plana horizontales. Usando los procedimientos que se enuncian en el apartado 6.1.4 para hallar los puntos de intersección con las diversas superficies, se puede determinar qué longitudes recorrería el fotón en cada región definida como el espacio entre cada par sucesivo de superficies atravesadas. Se van sumando los valores de los coeficientes de atenuación lineales multiplicados por las longitudes recorridas en cada región. Cada vez que se suma se compara con el número aleatorio λ hasta que ocurra alguna de las dos siguientes situaciones:

- Encontrar que la sumatoria supera el valor sorteado, caso en que el fotón interactúa en la última región considerada; o
- * hasta encontrar que al llegar a la superficie del cristal la suma sigue siendo menor que el número sorteado, caso en que se computa una cuenta favorable.

De este modo se puede acumular cuántos de los fotones de fuente llegan al detector y hallar P_l .

De manera análoga y más sencilla, es posible hallar P_s . Sólo hay que computar por qué cara de la fuente escapa el fotón (superior, lateral o inferior), determinar la distancia l desde donde nace el fotón hasta el punto de salida, calcular $\mu_{m(E)}l$ y comparar con el número aleatorio de caminos libres medios λ . Sólo si $\mu_m(E)l < \lambda$ ese fotón será contabilizado.

6.1.4. Distancias recorridas entre superficies

Como se ha visto por lo explicado en el apartado 6.1.3, una función que el programa necesita utilizar recurrentemente es aquella que determina en qué punto la trayectoria del fotón corta a cada una de las superficies cilíndricas concéntricas que deben ser atravesadas hasta llegar al cristal.

Supóngase que un fotón sale del punto (x_0, y_0, z_0) y recorre una distancia *l* en dirección $\hat{\Omega}$. Entonces llegará al punto (x, y, z) de modo que:

$$(x, y, z) = (x_0, y_0, z_0) + l \hat{\Omega}$$
(6.4)

Entonces,

$$x = x_0 + l\cos\theta \tag{6.5a}$$

$$y = y_0 + l\sin\theta\sin\phi \tag{6.5b}$$

$$z = z_0 + l\sin\theta\cos\phi \tag{6.5c}$$

Si se pide a (x, y, z) que esté sobre el cilindro de generatrices paralelas a \hat{z} y de radio r, entonces es necesario que:

$$x^{2} + y^{2} = r^{2} \implies$$

$$\implies (x_{0} + l\cos\theta)^{2} + (y_{0} + l\sin\theta\sin\phi)^{2} = r^{2} \implies (6.6)$$

$$\implies (\cos^{2}\theta + \sin^{2}\theta\sin^{2}\phi)l^{2} + 2(x_{0}\cos\theta + y_{0}\sin\theta\sin\phi)l + (y_{0}^{2} + x_{0}^{2} - r^{2}) = 0$$

El valor positivo de *l* emergente de esta ecuación es

$$l = \frac{-x_0 \cos \theta - y_0 \sin \theta \sin \phi + \sqrt{(x_0 \cos \theta + y_0 \sin \theta \sin \phi)^2 + (\cos^2 \theta + \sin^2 \theta \sin^2 \phi)(r^2 - x_0^2 - y_0^2)}}{\cos^2 \theta + \sin^2 \theta \sin^2 \phi}$$
(6.7)

Queda claro que $l \ge 0$ al mirar que el radicando es el cuadrado de $x_0 \cos \theta + y_0 \sin \theta \sin \phi$ más una cantidad positiva. Consideramos sólo la solución $l \ge 0$ ya que consideramos que el fotón avanza en el mismo sentido en que apunta $\hat{\Omega}$. La solución $l \le 0$ es la correspondiente al fotón que se moviera en la dirección y sentido $-\hat{\Omega}$. En el muy particular caso en que $\cos \theta = \sin \phi = 0$, es decir $\hat{\Omega} = \hat{z}, l \to \infty$ lo que indica que la trayectoria no corta al cilindro, como cabe esperar.

Finalmente se puede obtener el valor de z en que se produce el cruce a través del cilindro cilindro usando la ecuación 6.5c.

Otras veces será de interés conocer en qué punto el fotón atravesará una superficie horizontal de $z = z_{cruce}$. En ese caso se usa la ecuación 6.5c para hallar *l* como

$$l = \frac{z_{cruce} - z_0}{\sin\theta\cos\phi} \tag{6.8}$$

y luego utilizar este valor de l para hallar x e y con las ecuaciones 6.5a y 6.5b, respectivamente.

6.1.5. El código en lenguaje C

Para llevar a la práctica el algoritmo se trabajó en lenguaje C. Se escribió una rutina que fue subdividida en funciones. El esquema del código es básicamente el siguiente:

- * Inclusión de bibliotecas
- Definición de constantes geométricas
- * Enumeración de prototipos de funciones escritas
- * Funciones relacionadas con la creación de número aleatorios
 - ◊ Función que arroja un número aleatorio uniforme entre 0 y 1
 - $\diamond\,$ Función que genera un radio r aleatorio con distribución uniforme en un círculo de radio R
 - ◊ Función que genera el valor de z de partida aleatorio con distribución uniforme entre 0 y una altura H
 - Función que genera la dirección angular aleatoria como punteros
 - \diamond Función que genera un θ aleatorio

- \diamond Función que genera un φ aleatorio
- \diamond Función que genera un λ aleatorio
- * Funciones relacionadas con operaciones vectoriales
 - Función que calcula el vector desplazamiento de un fotón
 - ◊ Función que suma dos vectores
 - \diamond Función que calcula la coordenada cilíndrica r correspondiente a un vector (x,y,z)
- * Función que calcula la distancia que hay que recorrer en dirección Ω para llegar desde el punto (x, y, z) a cortar la superficie cilíndrica de radio R
- * Función que calcula P_s
- Función que determina si un fotón ascendente llega a la superficie del cristal del detector
- Función que determina si un fotón descendente llega a la superficie del cristal del detector
- * Función que calcula P_l
- * Función main

La función *main*, función principal en lenguaje C que llama a las otras funciones para la ejecución del programa, fue variando según qué se quisiera calcular.

Por su extensión y debido a que no se ve afectada la lectura del material presentado, el código en lenguaje C utilizado para la obtención de las probabilidades P_s y P_l se ha incluido en el apéndice B.3.

6.2. Resultados del método Monte Carlo

La idea perseguida al realizar el modelado del problema es la de obtener curvas que representen P_s y P_l en función de la masa de muestra m_m colocada en el frasco, en el pozo del detector. Se elige el parámetro m_m ya que se lo puede medir directamente antes de iniciar cada medición. Si siempre se llena el frasco hasta el borde, la masa está directamente relacionada con la densidad promedio de la muestra. Dado que se conocen estimaciones de los coeficiente $\frac{\mu}{\rho}$ de los sedimentos a diversas energías de fotón, a cada masa colocada en el frasco le corresponde un dado valor de μ que se utiliza para, a través del programa, obtener las probabilidades.

ida energía se	e detallan	en la tabla	6.2.			
Material	$47 \; keV$	$185 \ keV$	295 keV	351 keV	609 keV	662keV
Sedimento	0,493	0,1304	0,1078	0,1003	0,07947	0,0766
Plástico	0,213	0,1435	0,1221	0,1143	0,09119	0,08795
Aluminio	0,419	0,1260	0,1047	0,09751	0,07733	0,07454
Germanio	0,409	0,1838	0,1147	0,1011	0,07363	0,07058

Al igual que se hizo previo a las mediciones de transmisión, se realizaron algunas corridas con el programa utilizando datos obtenidos con XMUDAT. Se supuso nuevamente la composición tipo expuesta en la página 43 para el sedimento. Los valores de $\frac{\mu}{a}$ usados

6.2.1. Pruebas realizadas para un sedimento tipo

Tabla 6.2. Valores de $\frac{\mu}{\rho}$ utilizados para calcular P_l vs. m_m para un sedimento tipo.

Con estos valores como *input* se corrió una rutina que obtiene los valores de P_l con su desviación –según lo expuesto en el apéndice B.2–. Cada valor de P_l se obtiene a partir del seguimiento de 100000 historias.

La curva P_l vs. m_m que se muestra en la figura 6.3.



Figura 6.3. Probabilidad de llegada al cristal en función de la masa de la muestra para un sedimento tipo de $\frac{\mu}{\rho}$ obtenido con XMUDAT.

Debido a que el método Monte Carlo usa números aleatorios se tienen fluctuaciones

aleatorias a lo largo de la curva. Se decidió ajustar exponenciales decrecientes a cada una de las curvas correspondientes a las distintas energías. Se presenta un *zoom* de las curvas de alta energía con sus incertezas y ajustes en la figura 6.4. Finalmente se presentan las curvas de ajuste en la figura 6.5.



Figura 6.4. *Zoom para la observación de las curvas de ajuste junto a los puntos calculados con sus barras de incerteza.*



Figura 6.5. *Ajustes de la probabilidad de llegada al cristal en función de la masa de la muestra para un sedimento tipo de* $\frac{\mu}{\rho}$ *obtenido con XMUDAT.*

Hay conclusiones evidentes que se pueden extraer.

El valor de ordenada al origen es distinto de 1 en todas las energías. Esto se debe principalmente a la presencia del frasco de la muestra, la pared de aluminio del detector y la capa muerta del cristal. En otras palabras, P_l para $m_m = 0$ es el valor de $P_{l/s}$ para m = 0.

A altas energías el valor de P_l no depende fuertemente de la masa. El sedimento es bastante transparente a la radiación γ en esas energías. De hecho, las curvas correspondientes a 609 keV y 662 keV se confunden dentro de las incertezas.

En cambio, para el fotón de 47 keV, la influencia de la masa es muy notoria, tanto que en el rango de unos 4 gramos se obtiene una variación de más del 20 % en P_l . Esto deja a la vista por qué no es suficiente sólo hacer mediciones de eficiencia total a partir de patrones. Si bien puede que el patrón y el sedimento a estudiar tengan el mismo $\frac{\mu}{\rho}$, lo cierto es que nunca las dos muestras tendrán la misma masa –y por tanto misma densidad–. El valor de eficiencia obtenido para el patrón será válido sólo para esa masa y la diferencia en otras masas se deberá fundamentalmente a la variación de P_l .

6.2.2. Dependencia de $P_{l/s}$ con la masa de la muestra

Por otra parte, se hizo un análisis de la dependencia de $P_{l/s}$ con la masa de la muestra. Para ello se modificó la función *main* del programa de modo que éste calculara un valor medio con su indeterminación tanto para P_l como para P_s y que luego los dividiera, propagando las incertezas. Para estudiar la influencia en $P_{l/s}$ de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ se corrió el código a cuatro energías –es decir con los valores correspondientes de $\frac{\mu}{\rho}$ para el frasco, el aluminio y el germanio a cada una de esas energías– variando en cada caso el valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ en el rango que resulta de interés de acuerdo con las mediciones de transmisión. En la tabla 6.3 se presenta la información correspondiente a cada una de las corridas del programa.

Energía	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{frasco}$	$\frac{\mu}{\rho}\Big _{Al}$	$\frac{\mu}{\rho}\Big _{Ge}$	Valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big _m$
47 keV	0,213	0,419	0,409	0,4; 0,5 y 0,6
185 keV	0,1435	0,1260	0,1838	0,1; 0,2 y 0,3
295 keV	0,1221	0,1047	0,1147	0,05; 0,1 y 0,15
662 keV	0,08795	0,07454	0,07058	0,05; 0,1 y 0,2

Tabla 6.3. Valores del input para el cálculo de $P_{l/s}$ vs. m_m para distintos valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$.

Se presentan en la figura 6.6 $P_{l/s}$ para las cuatro energías y el valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ en negrita en la tabla 6.3.



Figura 6.6. $P_{l/s}$ vs. m_m para cuatro energías distintas.

En primer lugar se observa que a altas energías $P_{l/s}$ es mayor dado que los coeficientes de atenuación de los obstáculos entre la muestra y el cristal bajan con el aumento de la energía. Por otra parte los valores en función de la masa son casi constantes, con una leve tendencia creciente. Esa tendencia es más marcada cuanto más baja es la energía de los fotones.

La tendencia creciente puede explicarse cualitativamente de la siguiente manera. Los fotones que más probablemente escapen de la fuente son aquellos que recorren menos camino dentro de ella – tener presente que $p_s = e^{-\mu l}$. Por esto mismo la distribución de fotones de fuente que escapan de la muestra tiene su máximo en las direcciones más cercanas a las radiales y es más pobre en las direcciones cercanas al eje longitudinal del cilindro que es la fuente. Esa asimetría en la distribución será tanto más marcada cuanto mayor sea μ_m . Entonces, a medida que aumente μ_m , es decir al aumentar m_m –si se deja $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ constante–, irá incrementándose la fracción de los fotones que, *habiendo escapado*, salen en dirección más cercana a la radial – más paralela a \hat{r} –. A su vez, los fotones en dirección radial son los que menos obstáculos –en la figura de mértio $\sum \mu_i l_i$ – encuentran en su camino hacia la superficie del cristal. Entonces, al aumentar la masa de la muestra, aumenta $P_{l/s}$. Otro hecho a considerar es que los fotones que salen hacia arriba, en dirección de

la muestra, la corriente en esas direcciones se ve empobrecida, de modo que desaparece la contribución negativa que hacían esos fotones a $P_{l/s}$.

A altas energías esta tendencia casi no se observa por lo bajos que son todos los coeficientes $\frac{\mu}{a}$, lo cual resulta en una menor direccionalidad de la corriente de fotones.

Por otra parte, se estudió el efecto del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ manteniendo constantes los $\frac{\mu}{\rho}$ del frasco, la carcasa y la capa muerta. Aumentar o disminuir esa variable solamente reescalea la función respecto a los valores de abscisa porque en realidad la función depende del producto $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m \times m_m$. No se grafican los resultados obtenidos por lo engorrosos que resultan a la vista –ya que están muy superpuestas las tres curvas correspondientes a una misma energía–. Lo que sí se hizo fue calcular los histogramas de los valores de $P_{l/s}$ en todo el rango de m_m entre 0 y 8 gramos. Estos se ven en la figura 6.7.

Se observa que las distribuciones son tanto más cercanas a gaussianas cuanto más alta es la energía o más bajos los coeficientes de atenuación $\frac{\mu}{a}$.

Se calcularon a modo indicativo los valores medios y las desviaciones estándar correspondientes a los histogramas y se obtuvieron los valores de la tabla 6.4.

Energía	47~keV	$185 \; keV$	$295 \; keV$	662~keV
$\frac{\mu}{\rho}$	0,4 cm^2/g	0,1 cm^2/g	0,05 cm^2/g	0,05 cm^2/g
$P_{l/s}$	$0,\!584{\pm}0,\!004$	0,692±0,002	0,721±0,002	$0,745{\pm}0,002$
$\frac{\mu}{\rho}\Big _{m}$	$0,5\ cm^2/g$	0,2 cm^2/g	$0,1 \ cm^2/g$	$0,1 \ cm^2/g$
$P_{l/s}$	$0,\!585{\pm}0,\!004$	0,695±0,003	0,722±0,002	$0,746{\pm}0,002$
$\frac{\mu}{\rho}$	$0,\!6cm^2/g$	0,3 cm^2/g	$0,\!15cm^2/g$	0,2 cm^2/g
$P_{l/s}$	$0,585{\pm}0,004$	$0,694{\pm}0,003$	$0,721 \pm 0,002$	$0,747{\pm}0,003$

Tabla 6.4. Valores medios con su desvío para $P_{l/s}$ en el rango de m_m entre 0 y 8 gramos para diferentes energías y $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$.

Se concluye que el valor de $P_{l/s}$ puede ser considerado a cada energía como constante respecto del valor de $\frac{\mu}{\rho}$ de la muestra. También se aprecia que no se produce un error mayor al 1 % al considerar que en el rango de 0 a 8 gramos de masa de muestra el valor de $P_{l/s}$ es constante e igual al valor medio determinado.

Se desea enfatizar que el proceso que depende fuertemente de la masa de las muestras es el de autoatenuación $-P_s$ -, manifestado esto en que $P_{l/s}$ no depende de la masa. Los procesos subsiguientes –atenuación en los estructurales del detector y producción del fotopico en el cristal (*véase* capítulo 7)– son en buena medida independientes de la masa de la muestra. Por lo tanto se considera que las probabilidades $P_{f/s}$ y $P_{f/l}$ son constantes con respecto a la masa y dependen sólo de la energía del fotón.

 $\mu = 0.6 \text{ cm}^{2}/\text{g}$





16









(b) A 185 keV











Figura 6.7. *Histogramas de* $P_{l/s}$ *a distintos valores de* $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ *para cada energía de fotón.*

6.2.3. Mapas de autoatenuación

Siendo que ya se conoce el valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ para distintas energías y tipos de sedimentos, se decidió obtener *mapas* de curvas de P_s –autoatenuación– en los que se pueda entrar con la masa de la muestra y un valor medido de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$, a la energía de interés para el fotón, y así obtener un intervalo de incerteza para la probabilidad deseada.

Para el cálculo de P_s se hizo variar el valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ entre 0,03 cm^2/g y 0,6 cm^2/g con paso de 0,01 cm^2/g . Estos valores engloban todos los valores medidos, presentados en el capítulo 5. Los resultados se presentan en la figura 6.8. Para determinar el valor de P_s deseado –a una dada energía E– se debe tener alguna estimación del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m(E)$, para lo cual se realizaron las mediciones de transmisión.

Para la obtención de P_s y su incerteza se tiene en cuenta que el valor buscado se encuentra entre las curvas correspondientes a los $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ máximo y mínimo¹ medidos para la energía y sedimento de interés. Tomando $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,máx} = \frac{\mu}{\rho}\Big|_m + \sigma_{\frac{\mu}{\rho}\Big|_m}$ y $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,mín} =$

 $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m} - \sigma_{\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m}}, \text{ se calcula el valor medio de } P_{s} \text{ como } \frac{P_{s}\left(\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,\text{máx}}\right) + P_{s}\left(\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,\text{mín}}\right)}{2} \text{ y su incerteza como } \frac{P_{s}\left(\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,\text{mín}}\right) - P_{s}\left(\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m,\text{máx}}\right)}{2}.$

Los valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m}(E)$ recomendados son los que se presentan en la tabla 6.5 y están vinculado con los valores estimados a partir de las mediciones de transmisión (*véase* figuras 5.6 y 5.7 y tabla 5.4).

Energía	bи	ılk	tep	hra	IAE	4300	IAEA	4327
	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m,\min}$	$\frac{\mu}{\rho}\Big _{m,\max}$	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m, \min}$	$\frac{\mu}{\rho}\Big _{m,\max}$	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m,\min}$	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m, máx}$	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m, \min}$	$\left. \frac{\mu}{\rho} \right _{m, máx}$
$47 \; keV$	0,40	0,52	0,45	0,51	0,45	0,51	0,40	0,46
295~keV	0,04	0,09	0,12	0,14	0,11	0,15	0,09	0,11
351~keV	0,04	0,07	0,10	0,12	0,11	0,13	0,09	0,10
$609 \; keV$	0,04	0,06	0,09	0,10	0,09	0,11	0,08	0,09
662~keV	0,03	0,06	0,07	0,10	0,08	0,11	0,07	0,09

Tabla 6.5. Intervalos de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ recomendados para distintas energías de interés en fechado. Los valores están expresados en cm^2/g .

Está claro que si uno pudiera hacer mediciones más precisas de transmisión, los valores de P_s quedarían comprendidos entre dos curvas más cercanas entre sí y se mejoraría la precisión general del método de corrección. Por otra parte, nuevamente se observa que a altas energías la determinación imprecisa del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m}$ no conlleva una incerteza

¹En realidad se trata de los límites del intervalo de incerteza definido por una desviación estándar.





Figura 6.9. P_s Vs. $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m \times m_m$. Se observa la coincidencia de los puntos calculados para distintos valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$.

relativa tan grande en la determinación de las probabilidades.

La parametrización de las curvas de la figura 6.8 se ha realizado utilizando $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ y la variable independiente es m_m . Pero si se utilizara como variable independiente el producto $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m \times m_m$ se vería que todas las curvas coinciden. Esto es evidente, ya que P_s es sensible de forma directa al valor de μ y el citado producto es igual a $\mu \times Vol$, donde Vol es el volumen del cilindro, que en todo el análisis se ha mantenido constante. En la figura 6.9 se muestran los puntos obtenidos con el programa para diversos valores de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ graficados en función del producto $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m \times m_m$. Se observa la coincidencia de todos los puntos sobre una sola curva.

Se realizó un ajuste exponencial por mínimos cuadrados a los puntos, de ecuación

$$P_s = P_{\infty} + A e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right|_m \times m_m\right)/\Sigma}$$
(6.9)

y se obtuvieron como valores de los parámetros

$$P_{\infty} = 0,270(2) \tag{6.10a}$$

$$A = 0,727(2) \tag{6.10b}$$

$$\Sigma = 4,97(2) \ cm^2 \tag{6.10c}$$
y un coeficiente de correlación $r^2 = 0,99995$. Los valores obtenidos son, en principio, sólo válidos para $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m \times m_m$ variando entre 0 y 6. La aclaración apunta a que no se considere que para μ infinito la probabilidad P_s es distinta de cero.

De este modo se tiene información sobre P_s de manera más compacta. Basta conocer la masa de la muestra y cotas inferior y superior para su $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$, para poder calcular con estos datos los valores de P_s máximo y mínimo del intervalo de incerteza². Vale aclarar que estos resultados son válidos para la geometría utilizada. Si se cambian el radio o la altura del cilindro que es la muestra, lo resultados no serían válidos, y deberían ser recalculados.

Con este resultado queda concluida la etapa de corrección por autoatenuación o *self-shielding*. Los factores que resta evaluar son aquellos directamente relacionados a la eficiencia del detector para una muestra de la geometría presentada.

²Debe tenerse siempre presente que este intervalo está asociado a la desviación estándar de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_{m}$.

Capítulo 7 _____ Determinación de eficiencia absoluta

Para la caracterización completa de la sucesión de eventos desde que un fotón de fuente nace hasta que llega al detector resta dar un valor a $P_{f/s}$, es decir la eficiencia del detector.

El modelado de las interacciones en el interior del cristal es bastante complicado. No lo es en sí determinar el punto en que ha de realizarse la interacción para un dado número aleatorio, pues eso surge del valor de μ del cristal. La complicación yace en el estudio de los mecanismos y el proceso de generación y recolección de carga en el seno del semiconductor, dado que se produzca la interacción. Por este motivo, se realizó la medición de eficiencia total a partir de patrones certificados por las instituciones *NIST* e *IAEA*.

El objetivo perseguido fue el de determinar la probabilidad de que un fotón de fuente contribuya a los fotopicos de energías de interés $-P_f$ -, mejor conocida como eficiencia total del fotopico ε .

7.1. Patrones utilizados

Se midieron en el detector de pozo que se deseaba caracterizar los espectros de emisión gamma de muestras patrones certificadas, colocadas dentro de frascos de la misma geometría y materiales que los utilizados para el modelado por método Monte Carlo (*véase* sección 6.1.1). Si esto no se hubiera hecho así, no habría manera de relacionar los resultados de la sección 6.1 con los de la presente. Los frascos fueron llenados al ras y se midió la masa colocada por diferencia.

Los patrones utilizados fueron dos distintos. En la tabla 7.1 se especifican las actividades específicas de los isótopos de relevancia tabuladas en sus hojas de referencia [IAEA (2000)] [IAEA (2001)], como así también las masas de sedimento colocadas en cada una de las muestras.

Patrón	Actividad de $^{210}Pb~(Bq/kg)$	Actividad de $^{226}Ra~(Bq/kg)$	Actividad de $^{137}Cs~(Bq/kg)$	Fecha de certificación	Masa (g)
IAEA300	360^{+35}_{-20} certificada	$56, 5^{+3,7}_{-2,1}$ informada	1067^{+13}_{-21} certificada	01/01/1993	2,079±0,001
IAEA327	59 ± 5 certificada	$34, 1 \pm 1, 4$ certificada	24,9±0,3 certificada	31/12/1994	4,954±0,001

Tabla 7.1. Patrones utilizados para la medición de eficiencia.

7.2. Corrección de actividad por decaimiento

Dado que el ${}^{137}Cs$ y el ${}^{210}Pb$ tienen vidas medias de 30 y 22 años, respectivamente, debido al decaimiento radiactivo, el valor de actividad para los patrones al momento de medición no es el mismo que el certificado. Por eso mismo hay que tener en cuenta el tiempo transcurrido desde el momento de certificación hasta el de medición.

En la corrección por decaimiento al ^{210}Pb se tuvo en cuenta que hay una fracción de ^{210}Pb supported en equilibrio con el ^{226}Ra , y otra unsupported. La fracción que decae en el tiempo es sólo la unsupported. Se hace la suposición de que la actividad de ^{226}Ra es constante en el tiempo debido a su larga vida media comparada con la del ^{210}Pb . Si inicialmente se tiene una actividad P_0 de ^{210}Pb y una R_0 de ^{226}Ra , a un dado instante t la actividad de ^{210}Pb puede escribirse como

$$P_{(t)} = (P_0 - R_0) e^{-\lambda t} + R_0, \tag{7.1}$$

donde λ es la constante de decaimiento del ²¹⁰*Pb*, equivalente a $\frac{\ln 2}{T_{1/2}}$. $T_{1/2}$ vale 22,2(2) años para el ²¹⁰*Pb* [Tuli (2005)]. Este resultado es simplemente otra forma de escribir la ecuación 2.6.

Para el ${}^{137}Cs$ la corrección consiste sencillamente en multiplicar el valor informado por $e^{-\lambda t}$. En este caso $T_{1/2}$ vale 30,03(5) años[Tuli (2005)].

Patrón	Actividad de ^{210}Pb (Bq/kg)	Actividad de $^{226}Ra~(Bq/kg)$	Actividad de $^{137}Cs~(Bq/kg)$	Tiempo hasta la medición	Masa (g)
IAEA300 IAEA327	$\begin{array}{c} 237 \pm 12 \\ 50 \pm 3 \end{array}$	$56, 5^{+3,7}_{-2,1} \\ 59 \pm 5$	$724 \pm 12 \\ 17,8 \pm 0,2$	16,75 años 14,7 años	2,079±0,001 4,954±0,001

Los valores de actividad corregida por decaimiento se muestran en la tabla 7.2

Tabla 7.2. Actividad específica de los patrones corregida por decaimiento.

7.3. Obtención de la intensidad total de la fuente a cada energía

Dado que un isótopo puede presentar más de una vía de decaimiento, el valor de actividad no suele coincidir con la cantidad de fotones emitidos. Es necesario considerar el *yield* o probabilidad de emisión del fotón en cuestión dado el decaimiento del isótopo padre. Estos valores están tabulados, por ejemplo en la referencia [Debertin y Helmer (1988), p. 351-367], para distintos isótopos.

El ²²⁶*Ra* es miembro de la cadena de decaimiento natural del ²³⁸*U*. Los isótopos que suceden al radio en la cadena son todos de vida media corta –a lo sumo de algunos días, en comparación a los miles de años de los anteriores–. En una muestra sellada durante tiempo suficiente –unos 20 días– se tiene a los hijos del ²²⁶*Ra* en equilibrio secular. Por eso se puede encontrar tabulados valores de *yield* correspondientes a gammas emitidos por el ²²⁶*Ra* y sus hijos *en equilibrio*. En esas condiciones, se tienen para las energías de interés los *yields* expuestos en la tabla 7.3. El significado de esos números es que por cada *Bq* de ²²⁶*Ra* (y por lo tanto un *Bq* de cualquiera de los hijos) se tiene *yield* <u>fotones</u> de la energía correspondiente.

En la referencia [Debertin y Helmer (1988), p. 363, 364] aparece una tabla individual para el ^{210}Pb . El valor de *yield* ahí presentado $-(4,06\pm0,08)$ %– difiere del valor correspondiente en la tabla del ^{226}Ra $-(4,24\pm0,09)$ %–, el cual forma parte de un conjunto autoconsistente de *yields* para el ^{226}Ra y sus hijos en equilibrio. Como la medición de los testigos requiere estimar la fracción del ^{210}Pb que está en equilibrio con el ^{226}Ra , se elige para el ^{210}Pb el valor de *yield* presentado en la tabla 7.3.

	Energía (keV)	Yield (en %)	Isótopo emisor
	46,539	4,24±0,09	^{210}Pb
Fotones emitidos	295,207	18,2±0,3	^{214}Pb
por hijos del ^{226}Ra	351,925	35,1±0,4	^{214}Pb
	609,318	$44,\!6{\pm}0,\!5$	^{214}Bi
Fotones emitidos por el ^{137}Cs	661,66	85,2±0,2	^{137}Cs

Según la referencia [Debertin y Helmer (1988), p. 359], el *yield* para el fotón de 661,66 keV del ¹³⁷Cs es de (85,2±0,2)%.

Tabla 7.3. Yields para los fotones emitidos por hijos del ${}^{226}Ra$ en equilibrio, en referencia a la actividad de ${}^{226}Ra$, y por el ${}^{137}Cs$. [Debertin y Helmer (1988), p. 359,364]

Finalmente, debido a que la actividad del sedimento se tiene en valores por unidad de

masa es necesario multiplicar por la masa colocada en el detector. Entonces,

$$S_{m,E} = m_m. a_m. y_E,$$
 (7.2)

donde $S_{m,E}$ es el valor de la fuente integrada para la muestra m y fotones de energía E^1 , m_m es la masa de la muestra, a_m es la actividad específica (Bq/kg) y y_E es el yield del fotón de energía E.

De esta manera podemos obtener los valores de las fuentes de fotones de distintas energías para los patrones. Se muestran los valores en la tabla 7.4.

Patrón	Energía (keV)	Intensidad $(10^{-3} \frac{fotones}{segundo})$	
	46,539	21,2±1,3	
	295,207	21,7±1,2	
IAEA300	351,925	42 ± 2	
	609,318	53 ± 3	
	661,66	$1280{\pm}20$	
	46,539	10,4±0,7	
	295,207	30,7±1,4	
IAEA327	351,925	$59{\pm}3$	
	609,318	75 ± 3	
	661,66	74,9±0,9	

Tabla 7.4. Intensidad de fuente a distintas energías de fotones para los patrones.

7.4. Medición de los patrones y cálculo de áreas de los fotopicos

Se colocó cada patrón en el detector de pozo y se obtuvo su espectro de emisión gamma en mediciones que duraron algunos días. Esto fue necesario debido a la baja intensidad de fuente a casi todas las energías de fotones, pues se desea obtener una estadística razonable. Se presenta la duración de cada medición en la tabla 7.5. Se observaron tiempos muertos del orden del 0,013 %.

Patrón	Tiempo real (días)	Tiempo vivo (días)
IAEA300	5,94135(6)	5,94056(6)
IAEA327	4,89719(6)	4,89654(6)

Tabla 7.5. Tiempos	de medición d	e los patrones en el	l detector de	pozo.
---------------------------	---------------	----------------------	---------------	-------

¹Se considera que la intensidad de fuente no varía en el tiempo ya que las vidas medias del ²²⁶Ra y el ¹³⁷Cs exceden en varios órdenes de magnitud a los tiempos de medición.

Los programas de espectrometría gamma no realizan buenos cálculos de áreas cuando los picos están inmersos en mucho fondo. Por este motivo se procedió a calcularlas manualmente.

El procedimiento no puede ponerse en términos de una sucesión de pasos estandarizados, sino que varió en función de las características particulares del pico cuya área se quiso determinar. En algunos caso el fondo resultaba muy limpio y fácil de ajustar, y en otros casos había incluso pequeños picos en el fondo. Por lo tanto el criterio aplicado no fue único.

En algunos casos se calculó un promedio del fondo a energías más bajas y más altas que la zona del pico y se le asigno un valor contante a esas zonas. En las energías intermedias –en las cuales se encontraba el pico– se usó como fondo una función lineal de la energía que empalmara de forma continua con los valores constantes. Otras veces pareció más adecuado ajustar una función lineal al fondo a izquierda y derecha del pico y empalmar con una función lineal en la zona intermedia.

Para el cálculo del área se seleccionaron los canales que se consideró integraban el pico y se sumaron las cuentas de esos canales, obteniéndose el área total de pico más fondo A_T . Luego en los mismos canales se sumaron los valores de fondo calculados con esa función lineal descrita en el párrafo anterior, obteniéndose el área de fondo A_F . Las dos cantidades A_T y A_f tienen como incerteza su raíz cuadrada, por responder a las leyes de la estadística de Poisson. Finalmente se calculó el área del fotopico como $A_T - A_F$. La incerteza es estimada como $\sqrt{A_T + A_F}$.

En la figura 7.1 se presentan gráficos de los picos medidos y los fondos calculados en cada caso para la determinación del área.

7.5. Resultados

Una vez hallada el área de cada pico se la dividió por el tiempo vivo de la medición y así se obtuvo un valor de intensidad medida. El cociente entre este valor y el de intensidad de fuente calculada –ya presentado en la tabla 7.4– es la eficiencia total ε o P_f .

En la tabla 7.6 se presenta la intensidad de fotones obtenida al dividir las áreas de fotopico mostradas en la figura 7.1 por el tiempo de medición y el valor de eficiencia calculado. También se han incluido columnas en las que se listan los valores de P_s calculados por el método Monte Carlo para la masa de patrón colocada en el detector y los valores de $P_{f/s}$ hallados como el cociente de la eficiencia total medida y P_s .

7. DETERMINACIÓN DE EFICIENCIA ABSOLUTA



Figura 7.1. Picos en el espectro de los patrones medidos en el detector de pozo y fondos calculados para la determinación de las áreas de fotopico requeridas para los cálculos de eficiencia total.

E (keV)	Patrón	Intensidad medida $10^{-3} \frac{fotones}{segundo}$	$\varepsilon = P_f$	P_s	$P_{f/s}$
46 539	IAEA300	9,3±0,3	0,44±0,03	0,87±0,02	0,50±0,04
40,009	IAEA327	3,9±0,3	$0,37{\pm}0,04$	$0,74{\pm}0,04$	$0,50{\pm}0,05$
205 207	IAEA300	3,6±0,2	0,165±0,013	0,96±0,02	0,172±0,014
293,207	IAEA327	4,6±0,3	0,150±0,011	0,93±0,02	$0,162{\pm}0,013$
251 025	IAEA300	6,5±0,2	0,156±0,010	0,962±0,009	0,162±0,011
551,925	IAEA327	7,4±0,5	0,124±0,010	0,932±0,001	0,133±0,010
600 218	IAEA300	3,33±0,14	0,063±0,004	0,968±0,009	0,064±0,004
009,510	IAEA327	3,5±0,2	0,047±0,003	$0,94{\pm}0,01$	$0,050 \pm 0,003$
66166	IAEA300	91,0±0,6	0,0711±0,0012	0,969±0,013	0,073±0,002
661,66	IAEA327	5,0±0,2	0,066±0,002	0,94±0,02	$0,070 \pm 0,003$

Tabla 7.6. Resultados finales de las mediciones para la determinación de eficiencia total del detector de pozo.

Es notable el efecto que produce la corrección por atenuación en los valores de eficiencia para fotones de 47 keV. Los valores de eficiencia medidos para cada patrón difieren entre sí más allá de las incertezas. Sin embargo, al calcular $P_{f/s}$, que representa la eficiencia del detector una vez tenida en cuenta la autoatenuación en la muestra, se obtiene un valor constante sin importar la masa del patrón colocada en el frasco.

La figura 7.2 muestra un gráfico de los valores de $P_{f/s}$ determinados.

Se ha encontrado que la eficiencia del detector al fotón de 609keV es inferior al valor obtenido para 662keV. Éste no es un resultado esperable, porque en el rango de energía en que se está, los coeficientes de atenuación de los materiales decrecen monótoamente con la energía del fotón incidente. Lo esperable es que en escala logarítmica para ambos ejes, el gráfico $P_{f/s}$ Vs. E presente los puntos alineados en buena medida sobre una recta para energías superiores a los 200 keV.

Por otra parte, cuando se aplicaron los valores de eficiencia medidos para las energías de 295 keV, 352 keV y 609 keV a los fotopicos de los espectros medidos para estratos del testigo del Lago Rivadavia, se obtuvo que la actividad específica de ^{226}Ra atribuible según el contaje del pico de 609keV era bastante superior –más allá de las incertezas– a las calculables a partir de los fotopicos de las otras dos energías, que coincidían dentro de las incertezas.

El patrón *IAEA300* tiene una actividad muy alta de ${}^{137}Cs$, lo cual aporta una gran estadística al pico de 662keV. Por ello se descarta la posibilidad de que el valor de eficiencia obtenido a 662keV sea incorrecto –además está confirmado por el resultado obtenido con el patrón *IAEA327*–.

Por este motivo se toma la decisión de obtener la actividad específica de ²²⁶Ra a partir



Figura 7.2. Eficiencia del detector en función de la energía del fotón.

Energía	Eficiencia $P_{f/s}$
47~keV	0,50(4)
295~keV	0,166(11)
352~keV	0,148(15)
662~keV	0,072(3)

Tabla 7.7. Resultados finales de eficiencia a las energías de interés para fechado.

del contaje en el pico de 352keV, que es el que presenta mejor estadística entre los de 352keV y 295keV.

De ese modo, se reportan para la eficiencia del detector, independientemente de la muestra y su autoatenuación, los valores de $P_{f/s}$ presentados en la tabla 7.7. Éstos han sido obtenidos como el promedio entre las dos mediciones a una misma energía, y se les ha asignado una banda de incerteza que contenga al menos los valores medios medidos por separado.

Capítulo 8

UTILIZACIÓN DE LOS RESULTADOS Obtenidos

Para medir la actividad específica de un nivel del sedimento se coloca una muestra en el detector de pozo y se registra en un multicanal su espectro gamma. A partir de ese espectro se determina una intensidad de fotones detectada a cada energía de fotopico. La idea perseguida a lo largo del trabajo es la de determinar cuáles son los factores por los que hay que multiplicar a dicha intensidad para obtener el valor de actividad específica de ¹³⁷*Cs*, ²¹⁰*Pb* y ²²⁶*Ra*.

A partir de la actividad específica se puede hallar la intensidad medida según la siguiente expresión¹:

$$I_{med} = a \ m_m \ y_E \ \varepsilon_{(E)}. \tag{8.1}$$

Entonces es fácil ver que

$$a = \frac{I_{med}}{m_m \, y_E \, P_{s(m_m,E)} \, P_{f/s(E)}}.$$
(8.2)

En cuanto al cálculo de incertezas,

$$\sigma_a = a \sqrt{\left(\frac{\sigma_{I_{med}}}{I_{med}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{m_m}}{m_m}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{y_E}}{y_E}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{P_s}}{P_s}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{P_{f/s}}}{P_{f/s}}\right)^2} \tag{8.3}$$

Bajo este marco, la actividad específica de una muestra se determina siguiendo esta serie de pasos:

¹En realidad la intensidad medida no es constante en el tiempo, sino que decae de la misma manera que el isótopo emisor –típicamente el decaimiento es exponencial–. Dado que los tiempos de medición no superan los 20 días y las vidas medias de interés son del orden de 20 o 30 años, se considera que la intensidad y la actividad específica son constantes a lo largo de la medición. El error en esta aproximación es menor a 1 en 1000 –es 8 10⁻⁴ para las mediciones más largas que se han realizado en este trabajo–, bastante inferior a las incertezas de medición.

- 1. Determinación de la masa de muestra $-m_m$ que se va a colocar en el detector.
- 2. Medición del espectro y caracterización de picos.
- 3. División de las áreas de fotopico por el tiempo vivo de medición –así se obtiene I_{med} –.
- 4. Búsqueda de P_s para la masa de muestra medida, la energía correspondiente al fotopico y el tipo de sedimento del que se trate *-bulk* o *tephra*-. Para esto puede utilizarse la ecuación 6.9 en conjunto con la tabla 6.5.
- 5. Búsqueda de $P_{f/s}$ en la tabla 7.7.
- 6. Búsqueda del *yield* en la tabla 7.3.
- 7. Aplicación de la ecuación 8.2 para la obtención de *a*.

Capítulo 9 _____ Medición del testigo del Lago Rivadavia

En este capítulo se presentan los resultados de las mediciones de actividad gamma de las muestras extraídas del testigo del Lago Rivadavia y los perfiles de actividad específica de cada isótopo como función de la profundidad.

Se tuvo en cuenta que las secuencias sedimentarias se alternan en origen y composición como se muestra en la figura 9.1. A su vez se midió la masa de cada nivel luego de concluido el proceso de liofilización, la cual es un dato necesario para la aplicación del modelo de fechado presentado en la sección 2.1. Los valores se presentan en la tabla 9.1. Las masas por unidad de área están afectadas por un 3% de incerteza debido a la indeterminación en el área –la masa ha sido medida con mucha mejor precisión que el área transversal del tubo del muestreador–.

9.1. Espectrometría gamma

Siguiendo el procedimiento presentado en el capítulo 3, se prepararon muestras de los distintos niveles del testigo en frascos de la misma geometría que la utilizada para el cálculo Monte Carlo del capítulo 6 y las mediciones de eficiencia del capítulo 7. Éstas fueron medidas una por una en el detector de pozo por tiempos lo suficientemente largos como para obtener una estadística razonable, es decir con incertezas menores al 10%, en la mayoría de los casos. Los tiempos de medición variaron entre 8 y 18 días, dependiendo del contaje obtenido. A modo de ejemplo se muestra uno de los espectros obtenidos en la figura 9.2. Se han hecho ampliaciones de las zonas en que se encuentran los picos de interés para fechado.

Puede observarse que el fondo por canal representa aproximadamente la mitad del valor máximo de las cuentas por canal de los picos. Nuevamente, el cálculo de áreas se realiza manualmente aplicando los mismo criterios que en el capítulo 7.



Figura 9.1. Esquema de las principales secuencias sedimentarias en el testigo extraído del Lago Rivadavia.

Nivel (cm)	Masa del nivel (g)	Masa por unidad de área (g/cm^2)
0 - 1	7,6908	0,30
1 - 1,5	4,1183	0,16
1,5 - 2	5 <i>,</i> 7890	0,22
2 - 3	7,5622	0,29
3 - 4	9,0540	0,35
4 - 5	15,7863	0,62
5 - 6	14,2896	0,56
6 - 7	10,4483	0,41
7 - 8	7,7514	0,30
8 - 9	7,8754	0,31
9 - 10	8,2400	0,32
10 - 11	8,4123	0,33
11 - 12	9,1102	0,35
12 - 13	10,5887	0,41
13 - 14	10,4820	0,41
14 - 15	11,5070	0,45
15 - 16	21,9190	0,86
16 - 17	12,4749	0,49
17 - 18	10,4424	0,41
18 - 19	11,1144	0,43

 Tabla 9.1. Masas de sedimento seco de cada nivel



Figura 9.2. *Ejemplo de espectro obtenido para una de las muestras del testigo de Lago Rivadavia. Corresponde al nivel de 10 a 11 cm de profundidad.*

En la tabla 9.2 se presentan los valores de intensidad de fotones detectada a las tres energías de interés para las muestras de los niveles que han sido medidos.

9.2. Obtención de los perfiles de actividad específica

Una vez que se contó con la intensidad detectada, se siguió el procedimiento escrito en el capítulo 8. Se utilizaron los factores de corrección y la eficiencia de detección determinados en este trabajo.

La intensidad a 47 keV se utilizó para la determinación de la actividad específica total de ^{210}Pb . Para la determinación de la concentración de ^{226}Ra se utilizó el contaje en el fotopico de energía de 352 keV. El pico de 662 keV fue utilizado para el cálculo de la actividad de ^{137}Cs . De esa manera se obtuvieron los perfiles de actividad específica de ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{137}Cs en función de la profundidad. Se presentan estos resultados en la tabla 9.3. La figura 9.3(a) muestra los perfiles de actividad específica de ^{266}Ra y ^{210}Pb total; la figura 9.3(b) contiene un gráfico del perfil de ^{210}Pb unsupported y la figura 9.3(c) presenta el perfil para el ^{137}Cs . La profundidad ha sido expresada como la masa seca de sedimento acumulada por unidad de área de terreno desde la superficie. Las profundidades grisadas corresponden a niveles de *tephra*.

Nivel			Tiempo	Intensidad medida $(10^{-3} \frac{cuentas}{seg})$		
(Comienzo- Fin) (<i>cm</i>)	Tipo	Masa (g)	vivo (días)	47 <i>keV</i>	352 <i>keV</i>	662 keV
0 - 1	bulk	2,0824(5)	15,04196(6)	3,50(15)	3,53(12)	0,43(6)
1 - 1,5	bulk	1,9117(5)	17,77824(6)	2,87(13)	2,73(11)	0,54(6)
1,5 - 2	tephra	2,4682(5)	15,54824(6)	1,44(12)	3,28(10)	0,46(11)
2 - 3	tephra	2,4581(5)	11,27612(6)	1,23(13)	2,86(14)	0,36(1)
5 - 6	bulk	3,3699(5)	18,11828(6)	2,07(14)	4,03(12)	0,63(7)
6 - 7	bulk	2,4843(5)	7,05057(6)	2,5(3)	3,6(3)	0,61(11)
7 - 8	bulk	2,0562(5)	8,60313(6)	2,5(2)	3,4(2)	1,38(9)
8 - 9	bulk	1,9602(5)	9,12932(6)	3,0(2)	3,05(15)	1,41(9)
9 - 10	bulk	2,6751(5)	12,85371(6)	1,90(14)	3,42(13)	2,51(9)
10 - 11	bulk	2,5020(5)	11,17671(6)	1,99(14)	3,28(14)	3,74(10)
11 - 12	bulk	2,5470(5)	10,75266(6)	1,84(15)	3,41(13)	3,48(10)
17 - 18	bulk	2,6626(5)	8,56083(6)	1,7(2)	3,7(2)	0,47(9)
18 - 19	bulk	2,7847	8,97573(6)	1,5(2)	3,7(2)	BLD

Tabla 9.2. *Intensidad de fotones medida a las energías de interés para fechado en distintos niveles del testigo del Lago Rivadavia.* BLD *indica* por debajo del límite de detección.

Nivel (cm)	$^{210}Pb~(Bq/kg)$	$^{226}Ra~(Bq/kg)$	$^{210}Pb_{unsupp.}$ (Bq/kg)	$^{137}Cs~(Bq/kg)$
0 - 1	91(9)	34(3)	57(9)	3,4(5)
1 - 1,5	80(8)	28(3)	54(8)	4,7(5)
1,5 - 2	33(4)	27(3)	4(5)	3,2(8)
2 - 3	28(4)	24(3)	4(5)	2,4(7)
5 - 6	36(4)	23(3)	13(5)	3,2(4)
6 - 7	56(7)	29(4)	26(8)	4,1(8)
7 - 8	67(7)	32(4)	34(8)	11,2(9)
8 - 9	83(9)	30(3)	53(9)	12,0(9)
9 - 10	40(4)	25(3)	14(5)	15,8(9)
10 - 11	44(5)	26(3)	18(5)	25,0(13)
11 - 12	40(5)	27(3)	13(6)	22,8(12)
17 - 18	36(5)	27(3)	9(6)	2,9(6)
18 - 19	31(5)	26(3)	5(6)	BLD

Tabla 9.3. *Actividad específica de radioisótopos de interés para fechado medida para distintos niveles del testigo del Lago Rivadavia.* BLD *indica* por debajo del límite de detección.



9. MEDICIÓN DEL TESTIGO DEL LAGO RIVADAVIA

9.3. Discusión sobre los resultados

El ^{226}Ra se muestra aproximadamente uniforme a lo largo de todo el testigo, ya que su padre el ^{238}U se encuentra presente en los constituyentes del testigo en aproximadamente una misma proporción.

Se observa que el comportamiento del ²¹⁰*Pb* es muy alternante de un nivel a otro. Aún removiendo los niveles de *tephra*, el perfil de actividad de ²¹⁰*Pb* obtenido no presenta las características esperables para tasas de sedimentación más o menos contantes en el tiempo o de variación suave. En estos casos, las gráficas de la componente *unsupported* tienen un aspecto similar al que exhibe la curva ejemplo mostrada en la figura 9.4. Cada tramo con tasa de sedimentación más o menos constante se representa como una recta cuando la concentración del radioisótopo está en escala logarítmica. El perfil obtenido, de ser válido el modelo, estaría indicando que ocurrieron tasas de variación de la tasa de sedimentación muy altas y poco verosímiles.

Se presentan dos hipótesis para explicar este comportamiento. En primer lugar, la tasa de acumulación de sedimento pudo haber experimentado grandes altibajos en los años correspondientes a los niveles medidos –altibajos de casi un orden de magnitud, muy poco verosímiles para un punto tan profundo en el lago–. Además el modelo CRS requiere que $\frac{\dot{r}}{r} \gg \lambda_{210}$ para tener pendientes positivas de la concentración como función de la profundidad. En segundo lugar pudo haber ocurrido removilización de material dentro del lago. Esto supondría que material superficial de algún punto del lago se movió hasta el lugar de muestreo, por derrumbe o arrastre hídrico, desplazando o tapando así el material superficial de ese lugar. En este caso, las condiciones sobre el mezclado de los materiales en el momento del desplazamiento es impredecible y las concentraciones



Figura 9.4. Ejemplos de perfiles esperables para tasas de sedimentación que varían suavemente.

que se miden están alteradas de una manera que se desconoce. La técnica de fechado por ^{210}Pb no puede dar buenos resultados si hay desplazamiento de material cuyas condiciones no se conocen. Además, el modelo que se ha presentado en la sección 2.1 tiene como hipótesis que todo el aporte de material ocurre por sedimentación lenta y no por arrastre.

En contra de la segunda hipótesis juega el hecho de que a simple vista el material que conforma el sedimento *bulk* presenta una laminación muy ordenada (*véase* figura 3.3). Para poder llegar a una conclusión sobre las explicaciones propuestas se requiere un análisis más detallado. Por ejemplo, se podría realizar un estudio sedimentológico detallado de los distintos niveles de *bulk* y *tephra*. También podrían extraerse y estudiarse testigos de otros puntos del lago y ver si observan secuencias similares a la de este testigo. Éstas son propuestas que exceden los objetivos del presente trabajo.

La aplicación de fechado por ${}^{137}Cs$ permitiría en este caso separar al testigo en dos partes. Una posterior a los años 1964-1966 y una anterior. Para que sea posible hacer esta distinción debería encontrarse un pico en la actividad tal que a profundidades mayores no se observen más cantidades significativas de este radioisótopo –salvo en algunos niveles a los que el material pudo haber llegado por difusión o filtrado–.

El nivel de 11 a 12 *cm* de profundidad es el inmediatamente anterior a una capa de *tephra* de 5 *cm* de espesor. El nivel de 17 a 18 *cm*, ha mostrado tener una cantidad de *Cs* notoriamente inferior a las que se tuvieron por encima de la capa de *tephra*. En el nivel siguiente, de 18 a 19 *cm*, el valor de actividad específica está por debajo del límite de detección, pues en el espectro relevado para esa muestra a energías de 662 *keV* no puede distinguirse un pico sobre el fondo. Observando nuevamente la figura 2.2, esto sugiere que los niveles entre 10 y 12 *cm* corresponden a la década del '60. Es decir que todos los estratos con profundidad menor a 12 *cm* se habrían depositado en el punto de muestreo después del año 1960 –su edad es inferior a 50 años–.

9.4. Aplicación del modelo de ²¹⁰*Pb* al perfil obtenido

Sólo con fines acadmémicos, para ilustrar los resultados que se obtienen, pero teniendo presente que, por lo explicado anteriormente, no resulta muy adecuada la utilización de los modelos basados en ^{210}Pb para el fechado de este testigo, se ha aplicado uno de los modelos matemáticos presentados en el capítulo 2.

Se utilizó el modelo de fechado por ^{210}Pb con hipótesis CRS. Él modelo fue descrito en el capítulo 2 suponiendo conocido un perfil continuo de actividad específica. La realidad es que se puede medir la actividad específica discretamente, según los niveles en que se subdividió al testigo. Además es imposible medir el testigo hasta profundidad infinita ni tiene sentido hacerlo si se llega a valores de ^{210}Pb unsupported muy bajos.

A continuación se presenta una breve explicación de cómo se adapta el modelo a las posibilidades experimentales y se presentan finalmente los resultados de su aplicación.

9.4.1. Discretización del modelo

Como se ve en la ecuación 2.19, para calcular la edad de cada nivel es necesario calcular el inventario de ^{210}Pb en el sedimento desde un punto dado hasta profundidad infinita.

Dado que de cada nivel se ha obtenido un material homogéneo, la actividad específica medida es el promedio en cada nivel, con lo cual, la integral puede escribirse de la siguiente manera

$$A(m_i) - A(m_j) = \int_{m_i}^{m_j} a \, \mathrm{d}m = \sum_{l=i+1}^j a_l \, m_l \tag{9.1}$$

donde *a* es actividad específica, *m* es masa seca por unidad de superficie de suelo y a_l y m_l son la actividad específica medida y la masa por unidad de área del nivel *l*, respectivamente. El nivel que empieza en la superficie es el nivel 1. Para obtener la integral hasta profundidad infinita, si no se ha encontrado que hasta la profundidad medida el valor de actividad de ²¹⁰*Pb unsupported* sea despreciable, se puede hacer una extrapolación exponencial del perfil a partir del último punto medido. Dicha extrapolación supone que a profundidades mayores la actividad decrece exponencialmente con la masa acumulada. Éste es el resultado teóricamente esperable para una tasa de sedimentación constante. Matemáticamente, el perfil sería de la forma

$$a(m) = a(m_N) e^{-\frac{\lambda(m-m_N)}{r}}$$
(9.2)

donde r es la tasa de sedimentación y m_N la profundidad hasta la que se pudo medir. La integral desde el último punto medido hasta infinito, bajo esta hipótesis, es

$$A_{N+1} = \int_{m_N}^{\infty} a \, \mathrm{d}m = \int_{m_N}^{\infty} a(m_N) \, e^{-\frac{\lambda \, (m-m_N)}{r}} \, \mathrm{d}m = \frac{r}{\lambda} a(m_N) \tag{9.3}$$

Se realiza una estimación de $\frac{r}{\lambda}$ a partir de un ajuste exponencial a los últimos puntos medidos. Con ese valor se obtiene el resultado de la "cola" de la integral y se calculan las edades y las tasas en todo el perfil.

De este modo,

$$\frac{A_l}{A_1} = \frac{\sum_{n=l}^{N} m_n a_n + A_{N+1}}{\sum_{n=1}^{N} m_n a_n + A_{N+1}}.$$
(9.4)

Para el cálculo de *r* hay dos alternativas no excluyentes. Se la puede calcular al comienzo de cada nivel o en el centro de cada nivel.

La expresión que se utiliza para r al comienzo de cada nivel es

$$r_{l} = \lambda_{210} \frac{A_{l}}{a_{l}} = \lambda_{210} \frac{\sum_{n=l}^{N} m_{n} a_{n} + A_{N+1}}{a_{l} m_{l-1} + a_{l-1} m_{l}} (m_{l-1} + m_{l}),$$
(9.5)

donde se ha calculado la concentración en el borde del nivel, $\overline{a_l}$, como la interpolación lineal entre las concentraciones promedio de los niveles aledaños.

Para el cálculo de r en el centro de cada nivel se utilizó la expresión

$$\overline{r_l} = \lambda_{210} \frac{A_l + A_{l+1}}{2a_l} = \lambda_{210} \left(\frac{\sum_{n=l+1}^N m_n a_n}{a_l} + \frac{m_l}{2} \right).$$
(9.6)

9.4.2. Resultados obtenidos

En lo que se refiere a la formación de los niveles de testigos sedimentarios, se debe tener en cuenta que los depósitos de *tephra* son muy breves en el tiempo en comparación con las capas de sedimento *bulk*. Es una práctica habitual retirarlos del perfil cuando su actividad específica de ²¹⁰*Pb unsupported* es mucho más baja que la de los niveles aledaños –baja actividad específica, según CRS, indica alta tasa de sedimentación–.

Si al perfil de ²¹⁰*Pb unsupported* obtenido se le quitan los niveles de tephra, y no se considera entonces su masa para la construcción de la escala de las abscisas se obtiene el gráfico mostrado en la figura 9.5.

El cálculo de A_{N+1} se ha realizado a partir del ajuste exponencial de los últimos 4 puntos medidos. Estos puntos muestran seguir una tendencia bastante ordenada y casi exponencial. El ajuste tiene ecuación

$$a = A_1 e^{-m/m_1} (9.7)$$

Se grafica el ajuste realizado en la figura 9.6. Los valores obtenidos fueron $A_1 = 350 \pm 110$ Bq/g y $m_1 = 0,87 \pm 0,08 \ g/cm^2$. Se estimó el valor medio de $a(m_N)$ a partir del valor medio del ajuste valuado en la profundidad en que termina el último nivel medido. Se le asignó la incerteza relativa promedio de los últimos dos puntos. Finalmente

$$A_{N+1} = m_1 a(m_N) = (4 \pm 6) Bq/cm^2$$
(9.8)



Figura 9.5. *Perfil de*²¹⁰*Pb y*¹³⁷*Cs*unsupported *sin considerar las* tephras.



Figura 9.6. *Ajuste realizado para el cálculo de* A_{N+1}

Se calcularon las edades al comienzo de cada nivel utilizando la combinación de ecuaciones 2.19 y 9.4.

Se calcularon las tasas de sedimentación en los extremos de los niveles como así también en el centro. Para ello se utilizaron las ecuaciones 2.21, 9.5 y 9.6.

Los resultados obtenidos se muestran en las figuras 9.7(a) y 9.7(b).

Las incertezas han sido estimadas según el esquema presentado en el apéndice C.

9.5. Comentarios finales

La aplicación del modelo de ^{210}Pb ha mostrado tener incertezas relativamente grandes. Esto es atribuible a la pobre estadística de los fotopicos medidos y a la gran indeterminación de la "cola" de la integral.

Según este modelo, la tasa de sedimentación ha experimentado dos picos, uno de $(0,05 \pm 0,02) \frac{g}{cm^2 \cdot ano}$ entre hace 10 y 20 años y otro de $(0,16 \pm 0,05) \frac{g}{cm^2 \cdot ano}$ entre hace 30 y 70 años.

No se reportará una tasa de sedimentación promedio para este testigo. Las anomalías que presenta el perfil de actividad específica de ^{210}Pb con respecto a lo esperable hacen necesaria una investigación más completa o detallada del testigo, para poder concluir cuáles fueron verdaderamente los mecanismos de formación.



El fechado por ¹³⁷*Cs* presenta un resultado mucho más concluyente aunque menos rico en información. Según esta técnica, la edad de sedimentos a profundidad de 3,8 g/cm^2 –sin *tephras*– es de (48 ± 5) años. Se ha asignado a la profundidad de 12 cm (o bien 3,8 g/cm^2 sin *tephras*) el año 1962, que es aquél en que se empiezan a observar los picos de *fallout* de productos de fisión.

Si bien, dentro de la gran incerteza del método por ²¹⁰*Pb*, los resultados de edad por ambas técnicas coinciden, no debería desecharse la hipótesis acerca de un posible removilización de sedimentos dentro del lago, ocasionado por algún tipo de deslizamiento de material. Para poder llegar a conclusiones más sólidas sobre la formación de las secuencias se requiere un estudio más detallado.

CAPÍTULO 10

SÍNTESIS Y CONCLUSIONES

Se hace a continuación una síntesis del trabajo realizado y se resaltan algunas conclusiones que pudieron ser extraídas.

El trabajo permitió la familiarización con las técnicas de fechado sedimentario por técnicas radimétricas de contaje gamma.

Se pudo aprender a trabajar en espectrometría gamma con detectores de germanio hiperpuro de marcas ORTECTM y CANBERRATM y con los respectivos softwares asociados.

Fue posible estudiar y comprender los modelos matemáticos aplicados a la técnica por ^{210}Pb , así como sus fundamentos físicos y los fundamentos experimentales de la técnica por ^{137}Cs .

Se pudo determinar la eficiencia del detector de germanio hiperpuro de pozo con que cuenta el LAAN para las energías de 47keV, 352keV y 662keV –que son las que resultan de mayor interés para la realización de fechado por las técnicas de ^{210}Pb y ^{137}Cs – y la geometría a utilizar en la medición de testigos sedimentarios en dicho laboratorio.

Se estudió el problema de la detección gamma para una fuente extensa y se comprobó computacionalmente, por método Monte Carlo, que el fenómeno de atenuación en la muestra no afecta la distribución de fotones emitidos de manera que la probabilidad de detección dado que el fotón escape de la muestra dependa del coeficiente de atenuación lineal de la muestra. Esto permitió desarrollar un método por cálculo Monte Carlo muy sencillo para la corrección de la eficiencia de detección del detector de pozo para muestras cilíndricas. El método requiere una medición del valor de $\frac{\mu}{\rho}\Big|_m$ del sedimento a las energías de interés. Se observó que la incerteza relativa del factor de corrección es mucho menor que la del coeficiente medido. Se calcularon los valores de los coeficientes de corrección para sedimentos de referencia y para los del testigo del Lago Rivadavia.

Se utilizaron dichas correcciones en la determinación de la eficiencia del detector y en las mediciones del testigo del Lago Rivadavia.

Finalmente se aplicó todo lo anterior a la obtención de los perfiles de actividad es-

pecífica de ^{210}Pb , ^{226}Ra y ^{137}Cs para los niveles más cercanos a la superficie del testigo del Lago Rivadavia. Se encontró un comportamiento inesperado para la actividad específica del ^{210}Pb que no permite llegar a una conclusión cerrada sobre el mecanismo de sedimentación. Se determinó a partir del perfil de ^{137}Cs que los niveles con profundidad menor que 12 cm se depositaron luego de 1960.

Se propone como continuación de este trabajo que se completen las mediciones para los niveles faltantes, a fin de contar con la información completa de este testigo. Adicionalmente, se recomienda el uso de otras técnicas de estudio de la composición de los distintos niveles. Asimismo se propone el muestreo de otros puntos del lago para comprobar si se observan las mismas secuencias.

Apéndices

A. Cálculo de las probabilidades condicionales globales

Se puede escribir la probabilidad condicional global $P_{f/l}$ en términos del flujo angular de fotones en la superficie del cristal y de la probabilidad microscópica $p_{f/l}$:

$$P_{f/l} = \frac{\iint_{Sup,l} \int_{2\pi^+} p_{f/l}(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) \,\varphi(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) \,d^2 Sup \,d\hat{\Omega}}{\iint_{Sup,l} \int_{2\pi^+} \varphi(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) \,d^2 Sup \,d\hat{\Omega}}$$
(A.1)

donde Sup, l es la superficie cerrada que define el evento l, es decir el de llegada al cristal, $\vec{r_s}$ es un punto de dicha superficie, $\hat{\Omega}$ es la dirección en se evalúa el flujo angular. La integración en $2\pi^+$ indica que se integra solo en las direcciones $\hat{\Omega}$ que apunten desde el lado en que está la fuente respecto de Sup, l hacia el otro. Téngase presente que $p_{f/l}$, por ser una probabilidad microscópica según la definición dada en la sección 4.1, depende sólo de los obstáculos y propiedades geométricas del camino que el fotón recorrerá luego de atravesar Sup, l.

Por otra parte, todo fotón que llegue a Sup, l proviene de la fuente S, cuya expresión es

$$\mathrm{d}S = C \,\mathrm{d}^3 \vec{r} \,\mathrm{d}\hat{\Omega} \tag{A.2a}$$

$$C = \frac{\rho \ a \ y}{4\pi} \tag{A.2b}$$

donde \vec{r} es una posición en la fuente, $\hat{\Omega}$ es la dirección del fotón de fuente, a es la actividad específica y y el *yield* del fotón de interés.

Supongamos que la fuente es un recinto convexo en el espacio. Se prolonga la recta de acción del fotón que se encuentra sobre Sup, l, es decir la recta que pasa por $\vec{r_s}$ con dirección $\hat{\Omega}$, de ahora en más recta ($\vec{r_s}, \hat{\Omega}$). Puede que ésta pase por la fuente y la corte en dos puntos.

Si así lo hace, se define la coordenada g sobre esa recta de modo que la recta corta a la fuente en puntos correspondientes a las coordenadas g_0 y g_1 . Se define el versor \hat{n}_s como el normal a Sup, l en el punto $\vec{r_s}$ que apunta desde el lado en que está la fuente respecto de Sup, l hacia el otro. Por argumentos geométricos, se encuentra que el diferencial de volumen de fuente que produce fotones en dirección $\hat{\Omega}$ en el punto $\vec{r_s}$ es

$$\mathbf{d}^3 \vec{r} = (\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s) \, \mathbf{d}^2 S u p \, \mathbf{d} g. \tag{A.3}$$

A partir de esto se deduce que

$$\varphi(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) \, \mathrm{d}^2 Sup \, \mathrm{d}\hat{\Omega} = \int_{g_0}^{g_1} C \, p_l(\vec{r_{(\vec{r_s},g)}}, \hat{\Omega}) \, (\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}) \, \mathrm{d}g \, \mathrm{d}^2 Sup \, \mathrm{d}\hat{\Omega}, \tag{A.4}$$

ya que para obtener la corriente angular en $\vec{r_s}$ es necesario integrar los diferenciales de volumen de fuente pesados con la probabilidad de llegar a Sup, l sobre todo el segmento de la recta $(\vec{r_s}, \hat{\Omega})$ contenido en la fuente.

Si la recta $(\vec{r_s}, \hat{\Omega})$ no pasa por la fuente entonces

$$\varphi(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) = 0. \tag{A.5}$$

Crearemos artificialmente esta condición diciendo que cuando la recta $(\vec{r_s}, \hat{\Omega})$ no pase por la fuente entonces $g_0 = g_1 = 0$.

Volviendo con esto a la ecuación A.1 se obtiene

$$P_{f/l} = \frac{\int_{4\pi} \iint_{Sup,l} \int_{g_0}^{g_1} p_{f/l}(\vec{r_s}, \hat{\Omega}) \ p_l(\vec{r}_{(\vec{r_s},g)}, \hat{\Omega}) \ H(\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}) \ C \ (\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}) \ dg \ d^2 Sup \ d\hat{\Omega}}{\int_{4\pi} \iint_{Sup,l} \int_{g_0}^{g_1} p_l(\vec{r}_{(\vec{r_s},g)}, \hat{\Omega}) \ H(\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}) \ C \ (\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}) \ dg \ d^2 Sup \ d\hat{\Omega}}$$
(A.6)

donde *H* es la función escalón unitario –vale 0 para argumentos negativos y 1 para positivos–. Al aplicarla a $\hat{\Omega} \cdot \hat{n_s}$ conserva sólo el hemisferio $2\pi^+$ de 4π .

Supongamos que se realizan primero las integraciones en C $(\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s)$ dg d²Sup para un dado $\hat{\Omega}$. Al fijar $\hat{\Omega}$ se restringe la integral en d²Sup a la porción de Sup, l en que se verifique $\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s \ge 0$. Por cómo se han definido los límites g_0 y g_1 , las integraciones en C $(\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s)$ dg d²Sup equivalen a integrar en C d³ \vec{r} para la porción de la fuente que produce fotones de dirección $\hat{\Omega}$ cuyas rectas $(\vec{r}, \hat{\Omega})$ cruzan Sup, l. La otra porción de la fuente tiene $p_l = 0$ para la dirección $\hat{\Omega}$ que se está evaluando, entonces finalmente las integraciones en C $(\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s)$ dg d²Sup equivalen a la integral en todo el volumen de la fuente para la dirección $\hat{\Omega}$. Luego la integración en ángulo sólido irá haciendo variar $\hat{\Omega}$ en 4π e integrará la fuente en las distintas direcciones, completando la integración. correspondiente a la ecuación A.6. Entonces se concluye que se puede convertir la integral en $C(\hat{\Omega} \cdot \hat{n}_s) dg d^2 Sup d\hat{\Omega}$ en una integral en dS que queda de la siguiente manera:

$$P_{f/l} = \frac{\int_{S} p_{f/l} p_l \,\mathrm{d}S}{\int_{S} p_l \,\mathrm{d}S} \tag{A.7}$$

donde S es el recinto de integración de la fuente en volumen y ángulo sólido.

Finalmente, utilizando las ecuaciones 4.4e, 4.9b y 4.9c es inmediato que

$$P_{f/l} = \frac{P_f}{P_l}.\tag{A.8}$$

Idéntico desarrollo puede hacerse para encontrar $P_{l/s}$ (basta sustituir en lo anterior todas las f's por l's y las l's por s's). Así quedan justificadas las ecuaciones 4.9d y 4.9e.

B. Cálculo por método Monte Carlo

B.1. Obtención de distribuciones no uniformes para el cálculo Monte Carlo

Es un teorema de la teoría de probabilidades que la probabilidad acumulada de cualquier distribución es una variable aleatoria entre 0 y 1. La demostración es breve, pero muy significativa.

Una distribución uniforme en el intervalo [a, b] es aquella cuya función de probabilidad acumulada es

$$A(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } x < a \\ \frac{x-a}{b-a} & \text{si } a \le x \le b \\ 1 & \text{si } x > b \end{cases}$$
(B.1)

Sea f la función de distribución de la variable aleatoria x y A la probabilidad acumulada.

$$A(X) = \int_{-\infty}^{X} f(x) \mathrm{d}x = P(x \le X).$$
(B.2)

Se asegura la existencia de A^{-1} pues, por definición, A es monótonamente creciente ya que $f(x) \ge 0$ para todo x.

A(x) es una variable aleatoria que representa la probabilidad acumulada hasta el valor x para la distribución f. Para un valor de C tal que $0 \le C \le 1$

$$P(A(x) \le C) = P(x \le A^{-1}(C)) = A(A^{-1}(C)) = C.$$
(B.3)

Además si C > 1, $P(A(x) \le C) = 1$ porque $A \le 1$ por definición y si C < 0, $P(A(x) \le C) = 0$ porque $A \ge 0$ por definición.

Por todo ello la probabilidad acumulada de x, como variable aleatoria, tiene una distribución uniforme entre 0 y 1. Este resultado es independiente de f. Si se quiere muestrear una variable x de distribución arbitraria f, basta con calcular la función A(x) y con disponer de una forma de muestrear una variable aleatoria ξ de distribución uniforme entre 0 y 1. Por lo antedicho

$$A(x) = \xi \implies x = A^{-1}(\xi). \tag{B.4}$$

Explicada la base teórica, se demuestra a continuación que las expresiones para obtener la distribución de fotones de fuente uniforme e isotrópica dentro de un cilindro son las ecuaciones 6.2.

En la coordenada z la distribución f(z) es uniforme entre los valores z_5 y z_1 de la tabla 6.1(b). La probabilidad acumulada se escribe como

$$P_{z}(z) = \begin{cases} 0 & \text{si } z < z_{5} \\ \frac{z - z_{5}}{z_{1} - z_{5}} & \text{si } z_{5} < z < z_{1} \\ 1 & \text{si } z > z_{1} \end{cases}$$
(B.5)

de lo cual surge que entre z_5 y z_1

$$\frac{z - z_5}{z_1 - z_5} = \xi \implies \boxed{z = z_5 + (z_1 - z_5)\xi}$$
(B.6)

con ξ variable aleatoria uniforme entre 0 y 1.

En el caso de la coordenada radial, una distribución uniforme de fotones en un cilindro de radio R implica que la probabilidad de que un fotón caiga dentro de un cilindro de radio r (con posición radial $\leq r$) debe ser proporcional a la relación de áreas entre un círculo de radio r y otro de radio R.

$$P_r(r) = \frac{\pi r^2}{\pi R^2} = \xi \implies \boxed{r = \sqrt{\xi}R}$$
(B.7)

Para determinar los ángulos que definen las direcciones se debe tener en cuenta un criterio similar. Si la distribución angular es uniforme, la probabilidad de que un fotón salga en alguna dirección comprendida dentro de cierto ángulo sólido es la razón entre dicho ángulo y 4π . Entonces,

$$d\tilde{p}(\theta,\phi) = \frac{d\hat{\Omega}}{4\pi} = \frac{\sin\theta \, d\theta \, d\phi}{4\pi}.$$
 (B.8)

Realizando integraciones,

$$dp_{\theta}(\theta) = \int_{\phi=0}^{\phi=2\pi} \frac{\sin\theta \, d\theta \, d\phi}{4\pi} = \frac{\sin\theta \, d\theta}{2}$$

$$\implies P_{\theta}(\theta) = \int_{0}^{\theta} \frac{\sin\theta' \, d\theta'}{2} = \frac{1}{2} \left(1 - \cos\theta\right) = \xi$$

$$\implies \theta = \arccos\left(1 - 2\xi\right)$$
(B.9)

$$dp_{\phi}(\phi) = \int_{\theta=0}^{\theta=\pi} \frac{\sin\theta \, d\theta \, d\phi}{4\pi} = \frac{d\phi}{2\pi}$$

$$\implies P_{\phi}(\phi)) = \int_{0}^{\phi} \frac{d\phi'}{2\pi} = \frac{\phi}{2\pi} = \xi$$

$$\implies \phi = 2\pi\xi$$
(B.10)

Resta demostrar la expresión 6.3.

Dado que los procesos de interacción de los fotones con la materia siguen las leyes de la estadística de Poisson, la distribución de probabilidad de que el fotón interactúe a una distancia x de donde nace es

$$p_x(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } x < 0\\ \mu e^{-\mu x} & \text{si } x \ge 0 \end{cases}.$$
 (B.11)

Inmediatamente se deduce una expresión para obtener la variable aleatoria μx válida para $\mu x \ge 0$.

$$P_x(x) = 1 - e^{-\mu x} = \xi \implies \mu x = \ln(1 - \xi).$$
 (B.12)

Como 1 – ξ también es una variable aleatoria con distribución aleatoria entre 0 y 1 es indistinto calcular μx como

$$\mu x = \ln \xi \tag{B.13}$$

B.2. Determinación del error en la probabilidad calculada por Monte Carlo

Un objetivo del método Monte Carlo, como fue el caso en este trabajo, puede ser el de hallar la probabilidad de que ocurra cierto suceso aleatorio. Para hacerlo se generan N historias (con N suficientemente grande) en las que éste pueda ocurrir y se contabilizan aquellas en que se produce. Luego se realiza el cociente entre los casos favorables y N y ese número es la probabilidad buscada p.

Se define la variable aleatoria discreta x, de modo que pueda tomar como valor 0 o 1. El valor 1 corresponde a la ocurrencia del suceso analizado y el 0 lo contrario. Por lo tanto,

$$P(x=1) = p \land P(x=0) = 1 - p.$$
 (B.14)

En Monte Carlo, el contabilizar las historias favorables puede pensarse como que al final de cada historia se decide si la variable x tomó valor 0 o 1 en esa historia. Entonces para la historia i se tiene $x = x_i$, con x_i igual a 0 o 1. Así surge la forma de calcular p como

$$p = \frac{\sum_{i=1}^{N} x_i}{N}.$$
(B.15)

En otros términos, p es el valor medio de x. Dado que N es finito, la determinación de p por medio de la ecuación B.15 no es exacta. De hecho en dos corridas distintas del programa se obtienen valores diferentes. Se desea calcular el error estadístico de p, que es la desviación de la media de x. Por definición,

$$\sigma_p^2 = \sigma_{\bar{x}}^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N(N-1)} = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - p)^2}{N(N-1)}.$$
(B.16)

Haciendo un poco de álgebra...

$$\sigma_p^2 = \frac{\sum_{i=1}^N \left(x_i^2 - 2x_i p + p^2\right)}{N\left(N-1\right)} = \frac{\sum_{i=1}^N x_i^2 - 2p \sum_{i=1}^N x_i + \sum_{i=1}^N p^2}{N\left(N-1\right)} = \frac{pN - p^2N}{N\left(N-1\right)} = \frac{p\left(1-p\right)}{N\left(N-1\right)}.$$

Finalmente se obtiene la expresión buscada.

$$\sigma_p = \sqrt{\frac{p(1-p)}{N-1}} \tag{B.17}$$

B.3. Código en lenguaje C de las funciones utilizadas para el Cálculo Monte Carlo

Se presentará ahora, paso a paso, el código en lenguaje C utilizado para la realización de los cálculos orientados a obtener las probabilidades P_s y P_l .

Inicialización:

#include <stdlib.h> #include
<stdio.h> #include <math.h> #include <time.h>

#define PI 3.14159265

```
#define R1
             .551
#define R2
             .65
#define R3
             .75
#define R4
             .8
#define R5
             1.1
#define RDET 1.17
#define Rext 3
/*z=0 corresponde a la superficie superior del cristal por debajo
de la capa muerta*/
#define Zmuerta 0.07
                      /*espesor de capa muerta*/
#define ZinAl
              0.37
                        /*posicion de la superficie interna de la
carcaza de aluminio en la parte superior*/
#define ZoutAl 0.42 /*posicion de la superficie externa de la
carcaza de aluminio en la parte superior*/
#define Ztopmuestra 0.72 /*superficie superior del cilindro muestra*/
#define Zbottommuestra -3.48 /*superficie inferior del cilindro muestra*/
#define Zprofpozo -3.58 /*superficie de aluminio donde apoya el frasquito*/
#define Zprofinpozo -3.63 /*superficie interna de la carcaza de aluminio
en el fondo del pozo*/
#define ZtopDL -3.93 /*superficie externa a la DL en el fondo del pozo*/
#define ZbottomDL -4.0 /*superficie interna a la DL en el fondo del pozo*/
#define HH 4.2 /*altura del cilindro muestra*/
#define densfrasco
                      0.94
                             /*densidad del frasco*/ #define
densAl 2.7
           /*densidad de la carcaza*/ #define densGe 5.4
/*densidad de la DL*/
/*Prototipos de las funciones*/
double ran();
double genera_posicion_r(double R);
double genera_posicion_z(double H);
void genera_direccion_angular(double *theta, double *fi);
double decide_meanfreepath();
void calcula_punto_relativo_interaccion
     (double theta, double fi, double camino, double deltax[3]);
void suma_vectores
     (double V1[], double V2[], double Suma[], int N);
double calculo_coordenada_r(double V[3]);
double fraccion_escape_cilindro_fuente_unif_isotrop
     (double R, double H, double mu, int cant_fotones);
double recorrido_hasta_R
     (double x0, double y0, double theta, double fi, double R);
double genera_theta();
double genera_fi();
int llega_al_detector_up
     (double x0, double theta, double fi, double mux,
            double mu_muestra, double mu1, double mu2, double mu3);
int llega_al_detector_down
     (double x0, double z0, double theta, double fi, double mux,
            double mu_muestra, double mu1, double mu2, double mu3);
double fraccion_que_llega_al_detector
     (double cant_fotones, double mu_muestra,
            double mu1, double mu2, double mu3);
```

Funciones que generan los números aleatorios utilizados para llevar a cabo las historias de fotones:

```
double ran() /*genera un numero
aleatorio con probabilidad uniforme entre 0 y 1*/ {
     return ((double)rand()/(double)(RAND_MAX));
}
double genera_posicion_r(double R)
/*genera una posición radial
aleatoria con probabilidad uniforme en la superficie del círculo
de radio R*/
{
    return (sqrt(ran())*R);
}
double genera_posicion_z(double H)
/*genera un numero aleatorio
con probabilidad uniforme entre 0 y {\rm H}^{\star}/
{
    return (ran()*H);
}
void genera_direccion_angular(double *theta, double *fi)
/*genera una dirección aleatoria con probabilidad uniforme en 4 pi.
NOTAR que los argumentos son punteros.*/
{
    fi[0]=2*PI*ran();
    theta[0]=acos(1-2*ran());
}
double genera_theta()
/*genera el ángulo que forma la dirección del fotón con el eje x+*/
{
    return acos(1-2*ran());
}
double genera_fi()
/*genera el ángulo que se forma entre el plano
de la dirección del fotón y el eje x con el plano (x,z)^*/
{
    return 2*PI*ran();
}
double decide_meanfreepath()
/*se genera la cantidad de caminos
libres medios que va a recorrer el fotón*/
{
   return (-log(ran()));
}
```

Algunas funciones que hacen operaciones con vectores:

```
void
calcula_punto_relativo_interaccion
  (double theta, double fi, double camino, double deltax[3])
```
```
/*calcula el vector desplazamiento del fotón entre el punto de
partida y el punto de interacción*/
    /*camino en cm*/
     deltax[0]=camino*cos(theta);
     deltax[1]=camino*sin(fi)*sin(theta);
     deltax[2]=camino*cos(fi)*sin(theta);
}
void suma_vectores(double V1[], double V2[], double Suma[], int N)
ł
     int i;
     for (i=0;i<N;i++) Suma[i]=V1[i]+V2[i];</pre>
}
double calculo_coordenada_r(double V[3])
/*calcula el valor de r en coordenadas cilíndricas
para un dado vector (x,y,z)*/
ł
   return sqrt(V[0]*V[0]+V[1]*V[1]);
}
```

Función que calcula las distancias recorridas desde un dado punto hasta llegar por una recta de dirección $\hat{\Omega}$ a una superficie cilíndrica de radio *R*:

```
double recorrido_hasta_R(double
x0, double y0, double theta,
                         double fi, double R)
/*calcula la longitud de la recta recorrida por un fotón que nace
en el punto x0,y0,z con dirección dada por theta y fi hasta llegar
a la superficie x^2+y^2=R^2. Las ecuaciones:
x=x0+l*cos(theta) y=y0+l*sin(theta)*sin(fi)
z=z0+l*sin(theta)*cos(fi)
a=cos(theta); b=sin(theta)*sin(fi);
                      (x0+a*l)^2+(y0+b*l)^2=R^2
buscaremos l tal que
Entonces l=(-(a*x0+b*y0) +/-
           sqrt((a*x0+b*y0)^2-(a^2+b^2)*(y0^2+x0^2-R^2)))/(a^2+b^2) */
{
     double a=cos(theta);
     double b=sin(theta)*sin(fi);
     return 1.0/(a*a+b*b)*(-a*x0-b*y0+
               sqrt((a*x0+b*y0)*(a*x0+b*y0)-(a*a+b*b)*(y0*y0+x0*x0-R*R)));
}
```

Función que calcula P_s :

```
{
    double x0[3] = \{0\};
    double deltax[3]={0};
    double ptointer[3]={0};
    double camino=0;
    double theta[1]={0};
    double fi[1]=\{0\};
    int i;
    int escaparon=0;
    for (i=1;i<=cant_fotones;i++)</pre>
    ł
         x0[0]=genera_posicion_r(R);
         x0[1]=0;
         x0[2]=genera_posicion_z(H);
         genera_direccion_angular(theta, fi);
         camino=decide_meanfreepath()/mu;
         calcula_punto_relativo_interaccion(theta[0],
                                              fi[0], camino, deltax);
         suma_vectores(x0, deltax, ptointer, 3);
         if ((calculo_coordenada_r(ptointer)>R) || (ptointer[2]>H) ||
                                             (ptointer[2]<0)) escaparon++;</pre>
    }
    return ((float)escaparon/(float)cant_fotones);
}
```

Función que determina si un fotón que nació en dirección ascendente llega al cristal del detector:

```
int llega_al_detector_up(double
x0, double theta, double fi,
                        double mux, double mu_muestra, double mu1,
                        double mu2, double mu3)
/*devuelve 1 si un fotón con dirección ascendente y cuya recta de
acción se sabe que pasa por el cristal del detector llega a la
superficie del detector*/ {
    double mux_necesario=mu_muestra*recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,R1);
    mux_necesario=mux_necesario+mul*(recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,R2))
                  -recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,R1));
    \texttt{mux\_necesario=mux\_necesario+mu2*(recorrido\_hasta\_R(x0,0,theta,fi,R4))}
                  -recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,R3));
    mux_necesario=mux_necesario+mu3*(recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,RDET)
                  -recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,R5));
    if (mux>=mux_necesario) return 1;
    else return 0;
}
```

Función que determina si un fotón que nació en dirección descendente llega al cristal del detector:

```
int llega_al_detector_down(double
x0, double z0, double theta, double fi, double mux, double
mu_muestra, double mu1, double mu2, double mu3) /*devuelve 1 si un
fotón con dirección descendente y cuya recta de acción se sabe
```

```
pasa por el cristal del detector llega a la superficie del
detector*/ {
     double mux_necesario, L, zetaint;
     double x=x0;
     double y=0;
     double z=z0;
     L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,R1);
     zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
             /*se calcula donde el fotón intersecta al
              cilindro infinito de radio R1*/
     if (zetaint>=Zbottommuestra) z=zetaint;
             /*si ese punto es mas alto que el fondo realmente el fotón
                                    va a dejar la muestra en ese punto*/
     else {
           /*si no la va a estar dejando por el fondo circular inferior*/
           L=(Zbottommuestra-z)/(cos(fi)*sin(theta));
           z=Zbottommuestra;
           }
     x=x+L*cos(theta);
     y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
      /*se reubica el fotón como nacido en el punto en que interseca
                              la superficie que limita a la muestra*/
     mux_necesario=L*mu_muestra;
      /*se acumula la cantidad de caminos libres medio necesarios
                                para llegar a escapar de la muestra*/
     if (mux<=mux_necesario) return 0;
      /*si el mux aleatorio no es suficiente el fotón no escapa de
                              la muestra y no contribuye al contaje*/
     /*pero si escapó vamos a ver si logra atravesar el frasco*/
     L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,R2);
                  /*se calcula donde interseca a la sup de radio R2*/
     zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
     if (zetaint>=Zprofpozo) z=zetaint;
           /*si es por encima de la base del frasco realmente abandona
                                                      el frasco allí*/
     else {
           /*si no escapa por la parte inferior del frasco*/
           L=(Zprofpozo-z)/(cos(fi)*sin(theta));
           z=Zprofpozo;
           }
     x=x+L*cos(theta);
     y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
     mux_necesario+=L*mul; /*todo lo mismo de antes*/
     if (mux<=mux_necesario) return 0;</pre>
     L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,R3);
                           /*intersección con el cilindro de aluminio*/
     zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
     if (zetaint>=Zprofpozo)
           if (zetaint<=ZoutAl) z=zetaint;</pre>
           /*si es por arriba del fondo del pozo pero
           por abajo de la superficie entonces la
           entrada al aluminio es realmente por la
           superficie cilíndrica*/
```

```
else
          /*si interseca por encima de la sup superior del
          detector quiere decir que va a entrar por
          el plano z=ZoutAl*/
          L=(ZoutAl-z)/(cos(fi)*sin(theta));
          z=ZoutAl;
          }
else
      /*en ese caso entra por el fondo del pozo*/
      L=(Zprofpozo-z)/(cos(fi)*sin(theta));
      z=Zprofpozo;
x=x+L*cos(theta);
y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
/*hasta acá el fotón esta en la superficie externa del aluminio*/
if (x*x+y*y>=R4*R4)
       /*este caso solo es posible si el fotón
       entró por z=ZoutAl*/
       L=(ZinAl-z)/(cos(fi)*sin(theta));
       z=ZinAl;
       /*deja el Al por la superficie z=ZinAl*/
else
       ł
       L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,R4);
                       /*intersectamos con R4*/
       zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
       if (zetaint>=Zprofinpozo)
             if (zetaint<=ZinAl) z=zetaint;</pre>
             /*si interseca mas alto que el fondo interior y mas bajo
             que el interior superior entonces deja el Al
             por la superficie cilindrica*/
             else {
                  /*deja el aluminio por la superfici z=ZinAl*/
                  L=(ZinAl-z)/(cos(fi)*sin(theta));
                  z=ZinAl;
                  }
       else {
             /*sale por abajo z=Zprofinpozo*/
             L=(Zprofinpozo-z)/(cos(fi)*sin(theta));
             z=Zprofinpozo;
             }
       }
x=x+L*cos(theta);
y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
mux_necesario+=L*mu2;
if (mux<=mux_necesario) return 0; /*igual que antes*/
/*lo mismo que con la capa de aluminio pero con la capa muerta*/
/*desde acá.... hasta....*/
if (x*x+y*y>=R5*R5)
       L=(Zmuerta-z)/(cos(fi)*sin(theta));
```

```
z=Zmuerta;
       }
else
       ł
       L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,R5);
       zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
       if (zetaint>=ZtopDL)
              {
             if (zetaint<=Zmuerta) z=zetaint;</pre>
             else {
                   L=(Zmuerta-z)/(cos(fi)*sin(theta));
                   z=Zmuerta;
                   }
              }
       else
              {
             L=(ZtopDL-z)/(cos(fi)*sin(theta));
              z=ZtopDL;
              }
       }
x=x+L*cos(theta);
y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
if (x*x+y*y>=RDET*RDET)
       {
       L=(-z)/(cos(fi)*sin(theta));
       z=0;
       }
else
       {
       L=recorrido_hasta_R(x,y,theta,fi,RDET);
       zetaint=z+L*sin(theta)*cos(fi);
       if (zetaint>=ZbottomDL)
              {
             if (zetaint<=0) z=zetaint;</pre>
              else {
                   L=(-z)/(cos(fi)*sin(theta));
                   z=0;
                   }
       else
              {
             L=(ZbottomDL-z)/(cos(fi)*sin(theta));
             z=ZbottomDL;
              }
       }
x=x+L*cos(theta);
y=y+L*sin(theta)*sin(fi);
mux_necesario+=L*mu3;
if (mux<=mux_necesario) return 0;</pre>
/*hasta acá*/
return 1; /*si no salió en ninguno de los otros return
es porque mux es mayor que el mux_necesario
para llegar al cristal*/
```

Función que determina *Pl*:

double

}

```
fraccion_que_llega_al_detector(double cant_fotones, double
mu_muestra, double mu1, double mu2, double mu3) /*calcula la
fracción de fotones nacidos uniforme e isotrópicamente que llegan
al cristal de Ge del detector*/ {
     int i,sumar;
     int suma=0;
     double x0, z0, theta, fi, L1, Z1, mux;
     {
         x0=genera_posicion_r(R1);
         z0=Zbottommuestra+genera_posicion_z(HH);
         theta=genera_theta();
         fi=genera_fi();
         if (sin(theta)*cos(fi)>=0)
                 /*fotones ascendentes*/
              {
              L1=recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,RDET);
              /*Se chequea si ingresan o no al cristal calculando el
              z de intersección entre la recta de acción del fotón
              y el cilindro de radio RDET*/
              Z1=z0+L1*sin(theta)*cos(fi);
              if (Z1>=0) sumar=0;
                                   /*en este caso la recta de acción
                                   del fotón no pasa por el cristal*/
              else {
                   mux=decide_meanfreepath();
                   sumar=llega_al_detector_up(x0,theta,fi,
                                             mux,mu_muestra,mu1,mu2,mu3);
                   /*en este caso el fotón sólo atraviesa superficies
                   cilíndricas; nunca atraviesa planos horizontales que
                   separen materiales*/
                   }
              }
         else
              ł
              L1=recorrido_hasta_R(x0,0,theta,fi,Rext); /*nos aseguramos
              de que la recta del fotón pase por el cristal*/
              Z1=z0+L1*sin(theta)*cos(fi);
              if (Z1>=0) sumar=0;
              else {
                   mux=decide_meanfreepath();
                   sumar=llega_al_detector_down(x0,z0,theta,fi,
                                            mux,mu_muestra,mu1,mu2,mu3);
                   }
              }
     suma+=sumar;
     }
     return (double)suma/(double)cant_fotones;
```

}

C. Incertezas en la aplicación del modelo CRS

Como ya se ha enunciado en el cuerpo principal del texto, las ecuaciones utilizadas a la hora de aplicar el modelo de hipótesis CRS al fechado de un testigo medido en forma discreta son las siguientes.

$$\frac{A_l}{A_1} = \frac{\sum_{n=l}^{N} m_n a_n + A_{N+1}}{\sum_{n=1}^{N} m_n a_n + A_{N+1}}$$
(C.1a)

$$r_{l} = \lambda_{210} \frac{A_{l}}{\overline{a_{l}}} = \lambda_{210} \frac{\sum_{n=l}^{N} m_{n} a_{n} + A_{N+1}}{a_{l} m_{l-1} + a_{l-1} m_{l}} (m_{l-1} + m_{l})$$
(C.1b)

$$\overline{r_{l}} = \lambda_{210} \frac{A_{l} + A_{l+1}}{2a_{l}} = \lambda_{210} \left(\frac{\sum_{n=l+1}^{N} m_{n}a_{n} + A_{N+1}}{a_{l}} + \frac{m_{l}}{2} \right)$$
(C.1c)

En este apartado se propagarán las incertezas de las actividades específicas, que son las más significativas, siendo mayores que el 10 %.

Sean $X_l = \frac{A_l}{A_1}$ y $m_n a_n = \alpha_n$ para $n \leq N$ y $\alpha_{N+1} = A_{N+1}$. Entonces,

$$\sigma_{X_l}^2 = \sum_{j=1}^{N+1} \left(\frac{\partial X_l}{\partial \alpha_j} \sigma_{\alpha_j} \right)^2 \tag{C.2}$$

$$\frac{A_l}{A_1} = \frac{\sum_{n=l}^{N+1} \alpha_n}{\sum_{n=1}^{N} \alpha_n}$$
(C.3)

105

$$\implies \frac{\partial X_l}{\partial \alpha_j} = \frac{\frac{\partial}{\partial \alpha_j} \left(\sum_{n=l}^{N+1} \alpha_n\right) \sum_{n=1}^{N+1} \alpha_n - \frac{\partial}{\partial \alpha_j} \left(\sum_{n=1}^{N+1} \alpha_n\right) \sum_{n=l}^{N+1} \alpha_n}{\left(\sum_{n=1}^{N+1} \alpha_n\right)^2}.$$
 (C.4)

Finalmente se obtiene que

$$\frac{\partial X_l}{\partial \alpha_j} = \begin{cases} -\frac{X_l}{A_1} & \text{si } j < l\\ -\frac{1-X_l}{A_1} & \text{si } j \ge l \end{cases}.$$
(C.5)

Para la tasa de sedimentación en los extremos de los niveles se tiene

$$\sigma_{r_l}^2 = \sum_{j=1}^N \left(\frac{\partial r_l}{\partial a_j} \sigma_{a_j}\right)^2 + \left(\frac{\partial r_l}{\partial A_{N+1}} \sigma_{A_{N+1}}\right)^2.$$
(C.6)

Realizando las derivaciones y teniendo en cuenta los límites de las sumatorias, se obtiene que

$$\frac{\partial r_l}{\partial a_j} = \begin{cases} 0 & \text{si } j < l-1 \\ -\frac{r_l m_l}{m_{l-1}a_l + m_l a_{l-1}} & \text{si } j = l-1 \\ r_l \left(\frac{m_l}{A_l} - \frac{m_{l-1}}{m_l a_{l-1} + m_{l-1} a_l}\right) & \text{si } j = l \\ \frac{r_l}{A_l} m_j & \text{si } l < j \le N \end{cases}$$
(C.7)

у

$$\frac{\partial r_l}{\partial A_{N+1}} = \frac{\lambda_{210}}{\overline{C_l}} = \frac{r_l}{A_l}.$$
(C.8)

Por último, para la tasa de sedimentación en el centro de cada nivel, se obtiene lo siguiente:

$$\sigma_{\overline{r_l}}^2 = \sum_{j=1}^N \left(\frac{\partial \overline{r_l}}{\partial a_j} \sigma_{a_j}\right)^2 + \left(\frac{\partial r_l}{\partial A_{N+1}} \sigma_{A_{N+1}}\right)^2 \tag{C.9}$$

con

$$\frac{\partial \overline{r_l}}{\partial a_j} = \begin{cases} 0 & \text{si } j < l \\ -\frac{\overline{r_l} - \lambda_{210} m_l/2}{a_l} & \text{si } j = l \\ \frac{\lambda_{210}}{a_l} m_j & \text{si } l < j \le N \end{cases}$$
(C.10)

у

$$\frac{\partial \overline{r_l}}{\partial A_{N+1}} = \frac{\lambda_{210}}{C_l}.$$
(C.11)

D. Evaluación económica

Se incluye en este apéndice una estimación de los costos de la realización del proyecto integrador presentado. Se detalla a continuación la forma en que se ha evaluado cada una de las categorías que constituyen las columnas de la tabla D.1, en la cual se muestran los gastos agrupados por mes y actualizados a junio 2010, fecha de conclusión del trabajo, con una tasa de descuento del 10 % anual efectiva.

Los equipos utilizados en el trabajo fueron el detector de pozo CANBERRATM para las mediciones de actividad y el detector de HPGe ORTECTM para las mediciones de transmisión. La vida útil de ambos equipos fue considerada de 10 años. El primero fue comprado en febrero 2009 y el segundo fue recibido en el año 1982. Por ese motivo se consideró sólo la amortización del primer equipo. El cálculo de la amortización mensual fue el de su valor de compra –con electrónica y blindajes–, de aproximadamente 40000 dólares divido su vida útil en meses.

La dirección del trabajo engloba el tiempo dedicado por los directores. Se estimó en 5 horas semanales. El costo de la hora se estimó en base a un salario de 1200 dólares mensuales. La beca hace referencia al pago recibido por el alumno. Se ha asignado un tercio del valor total mensual, que representa 200 dólares.

Los sedimentos patrón utilizados tienen un costo de 2 dólares por gramo. Se usaron 10 gramos para medir eficiencia en Sep-09 y 21 gramos para transmisión en Nov-09. Se los incluye en la evaluación aunque se trata de reutilizarlos en la medida de lo posible.

Mes	Well detector	Dirección	Beca	Patrones	Total mes	Actualizado
Sep-09	333,33	150,00	200,00	20,00	703,33	795,92
Oct-09	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	751,46
Nov-09	333,33	150,00	200,00	42,00	725,33	834,91
Dic-09	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	745,59
Ene-10	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	742,68
Feb-10	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	739,80
Mar-10	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	736,94
Abr-10	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	734,11
May-10	333,33	150,00	200,00	0,00	683,33	731,29
Jun-10	0,00	150,00	200,00	0,00	350,00	350,00
Total	3000,00	1500,00	2000,00	62,00	6562,00	7162,71

Tabla D.1. Evaluación económica del proyecto integrador. Valores en dólares.

Por último se realizó un cálculo estimativo del cuánto costaría ofrecer un servicio de fechado. Se hace la suposición de que el cliente entrega al laboratorio las muestras liofilizadas y los datos de masa seca por nivel del testigo, para que el laboratorio obtenga los perfiles de actividad específica y realice la aplicación de alguno de los modelos CRS o CIC. Se espera que el laboratorio entregue un informe de resultados al cliente con los perfiles de actividades específicas medidas y los resultados del fechado por ambas técnicas: ^{210}Pb y ^{137}Cs .

Se toma como tiempo promedio de medición de cada muestra 12 días. Se estima que se requieren tres horas-hombre de trabajo por cada muestra, en promedio, para su colocación en el frasco y en el detector, la cuantificación de áreas de fotopicos, su volcado a las planillas correspondientes –que calculen automáticamente los factores de corrección– y la confección de un informe final que se entrega al cliente. El costo de las tres horashombre se estima en 23 dólares, en base a un salario de 1200 dólares mensual. Se desea calcular el precio mínimo por muestra –pues no se están considerando costos indirectos– al cual se puede ofrecer el servicio. Se debe tener en cuenta que el detector estará 100 % avocado a la medición de estas muestras, quedando imposibilitada la realización de otras mediciones.

Supongamos que se realiza un proyecto de inversión consistente en comprar un detector de pozo de 40000 dólares de costo –con electrónica, blindajes y costos de puesta en marcha, como por ejemplo calibración– y 10 años de vida útil, destinado a realizar mediciones para fechado el 100 % del tiempo. Se desea calcular cuál es el beneficio por muestra que a distintas tasas de descuento efectiva anual da un valor presente neto nulo. El valor presente neto puede calcularse como:

$$VPN = -Inv + \sum_{n=1}^{120} \frac{Ben}{(1+i)^n} = -Inv + Ben \frac{1 - \left(\frac{1}{1+i}\right)^{120}}{i},$$
 (D.1)

donde i es la tasa mensual, Inv es la inversión del primer día del proyecto y Ben el beneficio mensual.

En la tabla D.2 se muestran los valores obtenidos para las distintas tasas de descuento del beneficio mensual deseado y a su vez se calculó el precio mínimo al que se puede ofrecer el servicio por muestra –beneficio por muestra más costo del recurso humano–, sin tener en cuenta los costos indirectos.

Tasa anual efectiva	Tasa mensual	Beneficio mensual deseado	Beneficio deseado por muestra	Precio mínimo (sin costos indirectos)
10 %	0,80 %	519,10	207,64	230,14
15 %	1,17 %	622,46	248,98	271,48
20 %	1,53 %	730,33	292,13	314,63
25 %	1,88 %	841,08	336,43	358,93
30 %	2,21 %	953,33	381,33	403,83

Tabla D.2. *Precios mínimos en dólares a los que se puede ofrecer el servicio para una dada tasa de descuento sin tener en cuenta costos indirectos.*

REFERENCIAS

- [Appleby y Nolan (1986)] **Appleby, P. G. y Nolan, P. J.**.²¹⁰Pb dating by low background gamma counting. *Hydrobiologia* **Vol. 143**: p. 21–27, 1986.
- [Appleby y Oldfield (1992)] Appleby, P. G. y Oldfield, F. . Application of Lead-210 to Sedimentation Studies, En: Ivanovich, M. y Harman, R., Uranium Series Desequilibrium, Oxford Science Publication, 1992, p. 731–778.
- [Canberra Industries, Inc. (2009)] Canberra Industries, Inc. (2009). Germanium Well Detector, Data Sheet. Disponible en http://www.canberra.com/products/492. asp.
- [Debertin y Helmer (1988)] Debertin, K. y Helmer, R. G. . Gamma- y X-Ray Spectrometry with Semicondutor Detectors. Amsterdam, The Netherlands: Elsevier Science Publishers B.V., 1988.
- [IAEA (2000)] International Atomic Energy Agency, Analytical Quality Control Services (2000). Reference Sheet, Reference Material IAEA-300, Radionuclides in Baltic Sea Sediment.
- [IAEA (2001)] International Atomic Energy Agency, Analytical Quality Control Services (2001). Reference Sheet, Reference Material IAEA-327, Radionuclides in Soil.
- [Reading y Levell (1996)] Reading, H. G. y Levell, B. K. . Sedimentary Environments: Processes, Facies y Stratigraphy, chapter 2. Controls on the sedimentary rock record. Black-well Science, 3^a edición, 1996, p. 17.
- [Ribeiro Guevara y Arribére (2002)] Ribeiro Guevara, S. y Arribére, M. 1³⁷Cs dating of lake cores from the Nahuel Huapi National Park, Patagonia, Argentina: Historical records y profile measurements. *Journal of Radioanalytical y Nuclear Chemistry* Vol. 252, No. 1: 37–45, 2002.
- [Tuli (2005)] **Tuli, J. K.** (2005). Nuclear Wallet Cards. National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory.

AGRADECIMIENTOS

"Mientras el río corra, los montes hagan sombra y en el cielo haya estrellas, debe durar la memoria del beneficio recibido en la mente del hombre agradecido."

(Virgilio)

Quiero agradecer a las instituciones que hicieron posibles mis estudios universitarios. En primer lugar, gracias al Pueblo y Estado Argentinos por la Universidad Tecnológica Nacional y el Instituto Balseiro, en cuyas aulas adquirí gran cantidad de conocimiento. En segundo lugar a las instituciones que financiaron mi estadía en Bariloche; CNEA y Fundación YPF.

Quiero agradecer a Sergio Ribeiro, por su buena predisposición a todas mis necesidades, dudas e inquietudes y su guía a lo largo de este trabajo. Gracias por las ideas y por dejarme trabajar con libertad.

A María Arribére, con quien tuve el lujo de compartir su oficina, espalda con espalda –porque es chiquita–, y de quien pude aprender muchísimo, en el plano académico y en otros aspectos. Gracias por ser excelente docente y ser humano y por estar siempre presente, aún cubierta de trabajo, para todas mis preguntas. Gracias por las infinitas charlas llenas de anécdotas cómicas e inverosímiles pero reales. ¡Ah, y por las galletitas!

Quiero agradecer a las chicas del LAAN, Soledad, Débora, Andrea, Marina y Romina, por su calidez y por hacerme sentir cómodo en el grupo. Me han brindado mucha información sobre la parte "no nuclear"del trabajo, sin la cual no se podrían interpretar resultados. Quiero agradecer especialmente a Romina –cuya paciencia puse a prueba–, quien preparó las muestras para las mediciones de transmisión y para las mediciones en el detector de pozo, sin las cuales no habría podido realizarse el trabajo.

No puedo dejar de mencionar a muchos alumnos del IB que conocí en Bariloche, que han hecho mi estadía muy agradable, con charlas, comidas, fiestas, salidas, etc.. También debo agradecerles la paciencia que me tienen... A veces¹, puedo ser complicado. Algunos entraron en 2007 como yo y otros llegaron después o estaban desde antes. Especialmente a mis compañeros de curso, con quienes compartimos el día a día en el aula,

¹Frecuentemente.

con todo lo bueno y lo malo que eso conlleva, y sobre quienes nos hemos apoyado para poder atravesar los momentos más estresantes y difíciles de la carrera.

Gracias Nico Borda, por compartir muchas cenas conmigo y tu sentido del humor bizarro, que te caracteriza; me hacés reír mucho.

Gracias Ari, por tu confianza y sinceridad, por dejarme pensando y por tu sentido del humor ácido e irónico.

Gracias Sole, porque estás siempre y sin vos a veces realmente no sé qué haría.

Gracias Esteban, por estar, lejos y cerca a la vez.

Gracias a mis amigos de toda la vida. Con muchos de ellos fui al colegio o compartí sábados en la parroquia y con todos crecí, a la par, y de ellos aprendí valores que enriquecen a una persona.

Y por último agradezco a mi familia. A Analía y Roberto, que son mis segundos papás; sé que para ellos soy como un hijo. ¡Gracias por los detalles! A mi hermana Paula, mi bailarina preferida y una de las personas a quien más extrañé. Y a mis padres, Lidia y Franco, que además de darme la vida y su apoyo infaltable, me dieron educación y ejemplo.