



UNIVERSITAT
POLITÈCNICA
DE VALÈNCIA

Desarrollo de modelos de simulación por Monte Carlo como apoyo a la medida de radiactividad ambiental en operación rutinaria y de emergencias

TESIS DOCTORAL

José Ordóñez Ródenas

Dirigida por:

Dr. Sergio Gallardo Bermell

Dr. Sebastián Salvador Martorell Alsina

Valencia, mayo 2020

Agradecimientos

En primer lugar, me gustaría agradecer a mis directores de Tesis, Sergio Gallardo Bermell y Sebastián Martorell Alsina, su dedicación y guía a lo largo de estos años. Su apoyo y motivación, así como su confianza en mí para llevar a cabo esta Tesis han sido imprescindibles.

Gracias también a la gente de MEDASEGI, Isabel, Jose Felipe, Pablo, Paco, Jose Luis, Ana y Sofía por su ayuda todos estos años. También a las integrantes del Laboratorio de Radiactividad Ambiental, Luisa, Marga, Magda, Aixa, Marina (mi compañera en tantos congresos) y a Pepa, que a efectos prácticos ha sido como una directora más de Tesis, gracias por tu guía y consejo.

Quiero extender este agradecimiento al resto de compañeros/as del departamento, en especial a Antonella, Amanda, Nico, Aina, Javi, María, Consuelo y Sergio por el tiempo y las risas que hemos compartido juntos.

También dar las gracias a mis padres y a mi hermana por ayudarme a llegar hasta aquí y por entenderme en momentos de mayor estrés. A ti también, bicho.

Finalmente, a la Universitat Politècnica de València por la financiación a través de la beca de Formación de Personal Investigador (FPI)-Subprograma 2 de la convocatoria de 2015 y a la Cátedra CSN-UPV Vicente Serradell.

Resumen

En el apoyo a la mejora de la calidad de medida en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) de la Universitat Politècnica de València (UPV), los códigos de Monte Carlo representan una potente herramienta para complementar tareas relacionadas con la medida de la radiactividad ambiental, tales como la calibración en eficiencia de detectores de semiconductor, determinación de factores de corrección por coincidencia y caracterización de dosímetros de termoluminiscencia, entre otras.

En la presente Tesis se desarrollan modelos de simulación en Monte Carlo a través de códigos y herramientas como MCNP6 y GEANT4. En primer lugar, se han realizado dos modelos de detector de semiconductor para espectrometría gamma, uno tipo HPGe (*High Purity Germanium*) y el otro BEGe (*Broad Energy Germanium*), ambos de alta pureza de germanio. Ambos detectores se emplean en las actividades y procedimientos rutinarios que se realizan en el LRA-UPV. Se detalla el procedimiento de caracterización geométrica de los detectores de semiconductor, así como del volumen activo del cristal de germanio hasta obtener un modelo geométrico optimizado.

Por otro lado, se ha obtenido un tercer modelo de simulación, pero en este caso de un dosímetro de termoluminiscencia, en concreto de un TLD-100 LiF:Mg,Ti, modelo que se emplea en el servicio de dosimetría personal de la UPV. En el modelo de simulación se incluye una fuente puntual colimada de rayos X y el fantoma recomendado por la ISO 4037-3 (*water slab phantom*). Se obtiene la función de respuesta del dosímetro relativa a la energía del ^{137}Cs y se estudia su comportamiento para diferentes condiciones de irradiación (calidad del haz de rayos X y ángulo de incidencia) así como para diversos materiales termoluminiscentes además del LiF.

Los modelos de simulación de espectrometría gamma se han utilizado principalmente para la obtención de curvas de calibración en eficiencia para diferentes geometrías y matrices de medición, así como para el cálculo de factores de corrección por pico suma tanto para las series naturales del ^{238}U y ^{232}Th como para radioisótopos específicos empleados en la calibración experimental de los equipos.

Por otro lado, se han aplicado los modelos de simulación en el contexto de respuesta en emergencias nucleares o radiológicas. En concreto, el modelo del detector BEGe se ha utilizado en el desarrollo de una metodología de optimización del proceso de medición de muestras radiactivas en matrices de agua de alta actividad. Esta metodología consiste en un procedimiento logístico que incluye un cribado o *screening* de emergencias soportado por simulaciones Monte Carlo, enfocado en elegir la configuración óptima de medición para obtener resultados fiables y precisos minimizando la manipulación de la muestra radiactiva. De este modo se reduce el tiempo de respuesta por parte del laboratorio, así como el riesgo de contaminación y exposición a dosis.

Resum

En el suport a la millora de la qualitat de mesura en el Laboratori de Radioactivitat Ambiental de la Universitat Politècnica de València, els codis de Monte Carlo representen una potent eina per a complementar tasques relacionades amb la mesura de la radioactivitat ambiental, com ara el calibratge en eficiència de detectors de semiconductor, determinació de factors de correcció per coincidència i caracterització de dosímetres de termoluminescència, entre altres.

En la present tesi es desenvolupen models de simulació en Monte Carlo a través de codis i eines com MCNP6 i GEANT4. En primer lloc s'han realitzat dos models de detector de semiconductor per a espectrometria gamma, un tipus HPGe (*High Purity Germanium*) i l'altre BEGe (*Broad Energy Germanium*), tots dos d'alta puresa de germani. Aquests detectors s'empren en les activitats i procediments rutinaris que es realitzen en el Laboratori de Radioactivitat Ambiental (LRA) de la Universitat Politècnica de València (UPV). Es detalla el procediment de caracterització geomètrica dels detectors de semiconductor, així com del volum actiu del cristall de germani fins a obtenir un model geomètric optimitzat.

D'altra banda, s'ha obtingut un tercer model de simulació, però en aquest cas d'un dosímetre de termoluminescència, en concret d'un TLD-100 LiF:Mg,Ti, model que s'empra en el servei de dosimetria personal de la UPV. En el model de simulació s'inclou una font puntual col·limada de raigs X i el fantoma recomanat per l'ISO 4037-3 (*water slab phantom*). S'obté la funció de resposta del dosímetre relativa a l'energia del ^{137}Cs i s'estudia el seu comportament per a diferents condicions d'irradiació (qualitat del feix de raigs X i angle d'incidència) així com per a diversos materials termoluminescents a més del LiF.

Els models de simulació d'espectrometria gamma s'han utilitzat principalment per a l'obtenció de corbes de calibratge en eficiència per a diferents geometries i matrius de mesurament així com per al càlcul de factors de correcció per pic suma tant per a les sèries naturals del ^{238}U i ^{232}Th com per a radioisòtops específics utilitzats en el calibratge experimental dels equips.

D'altra banda, s'han aplicat els models de simulació en el context de resposta en emergències nuclears o radiològiques. En concret, el model del detector BEGe s'ha utilitzat en el desenvolupament d'una metodologia d'optimització del procés de mesurament de mostres ambientals radioactives en matrius d'aigua d'alta activitat. Aquesta metodologia consisteix en un procediment logístic que inclou un *screening* o cribratge d'emergències, suportat per simulacions Monte Carlo, enfocat a triar la configuració òptima de mesurament per a obtenir resultats fiables i precisos minimitzant la manipulació de la mostra radioactiva. D'aquesta manera es redueix el temps de resposta per part del laboratori, així com el risc de contaminació i exposició a dosi.

Abstract

In support of the improvement of measurement quality at the Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) of the Universitat Politècnica de València (UPV), the Monte Carlo codes represent a powerful tool to complement the tasks related to the measurement of environmental radioactivity, such as the calibration in efficiency of semiconductor detectors, determination of coincidence summing correction factors and characterization of thermoluminescence dosimeters, among others.

In the present thesis, Monte Carlo simulation models are developed using the MCNP6 code and the GEANT4 toolkit. Two semiconductor detector models for gamma spectrometry have been made, one type HPGe (High Purity Germanium) and the other one a BEGe (*Broad Energy Germanium*), both of high purity germanium. Both detectors are used in the routine activities and procedures carried out by the LRA-UPV. The geometric characterization procedure of the semiconductor detectors is detailed, as well as the active volume of the germanium crystal until an optimized geometric model is obtained.

On the other hand, a third simulation model has been developed, but in this case of a thermoluminescence dosimeter, specifically a TLD-100 LiF:Mg,Ti. This dosimeter is used in the personal dosimetry service for the monitoring and assessment of the professionally exposed workers belonging to the UPV radioactive facility. The simulation model includes a collimated X ray point source and the phantom recommended by the ISO 4037-3 (water slab phantom). The response function of the dosimeter relative to the energy of ^{137}Cs is obtained and its behaviour is studied for different irradiation conditions (quality of the X ray beam and angle of incidence) as well as for several thermoluminescent materials in addition to the LiF.

The simulation models for gamma spectrometry have been used mainly to obtain efficiency calibration curves for different geometries and measurement matrices. Moreover, true summing correction factors are calculated for both the ^{238}U and ^{232}Th natural decay series as well as for specific radioisotopes used in the experimental calibration of the equipment.

On the other hand, simulation models have been applied in the context of nuclear or radiological emergency response. Specifically, the BEGe detector model has been used to develop a methodology for optimisation of the process of measuring radioactive samples in water matrices of high activity. This methodology consists of a logistic procedure that includes a screening for emergencies. Monte Carlo simulations focused on determining the optimal measurement configuration support this procedure. Reliable and accurate results are obtained, minimizing the manipulation of the radioactive sample. Therefore, the response time by the laboratory is reduced, as well as the risk of contamination and dose exposure.

Contenido

Capítulo 1	1
Introducción	1
1.1 Antecedentes	1
1.2 Motivación de la Tesis	2
1.3 Objetivo de la Tesis	4
1.4 Estructura de la Tesis	5
Capítulo 2	7
Estado del Arte	7
2.1 Espectrometría gamma	7
2.1.1 Interacción de la radiación con la materia	7
2.1.2 Detectores de radiación basados en semiconductor	14
2.1.3 Propiedades generales de los detectores de radiación	27
2.1.4 Caracterización y calibrado en eficiencia de detectores HPGe	37
2.2 Dosimetría por Termoluminiscencia	48
2.2.1 Fenómeno de termoluminiscencia	48
2.2.2 Dosimetría personal.....	52
2.2.3 Dosímetros de termoluminiscencia (TLDs)	55
Capítulo 3	61
Modelos de simulación para espectrometría gamma	61
3.1 Introducción	61
3.2 Materiales	62
3.2.1 Detector HPGe GMX-40	62
3.2.2 Detector BEGe 5030.....	66
3.2.3 Simulación con MCNP6	68
3.3 Método	71
3.3.1 Caracterización del detector GMX-40	71
3.3.2 Caracterización del detector BEGe 5030.....	75
3.4 Resultados de la caracterización	77
3.4.1 Detector GMX-40	77

3.4.2	Detector BEGe 5030.....	91
3.5	Intercomparación con GEANT4	96
3.6	Conclusiones	99
Capítulo 4	101	
<i>Aplicaciones de los modelos de simulación para espectrometría gamma</i>	<i>.....</i>	<i>101</i>
4.1	Obtención de los factores de Corrección por Pico Suma (TSCFs)	101
4.1.1	Introducción	101
4.1.2	Materiales y métodos	102
4.1.3	Resultados	114
4.1.4	Conclusiones	120
4.2	Curvas de calibración en eficiencia para diferentes matrices y composiciones.....	121
4.3	Metodología de cribado de emergencias para muestras líquidas.....	125
4.3.1	Introducción	125
4.3.2	Materiales y métodos	126
4.3.3	Casos de aplicación	135
4.3.4	Conclusiones.....	138
Capítulo 5	141	
<i>Modelos de simulación para dosimetría</i>	<i>141</i>	
5.1	Introducción.....	141
5.2	Materiales y métodos	142
5.2.1	TLD100 – HARSHAW.....	142
5.2.2	Simulación de espectros de rayos X.....	142
5.2.3	Modelo en MCNP6 del TLD100	145
5.2.4	Función de Respuesta Relativa	150
5.3	Resultados	151
5.4	Conclusiones	160
Capítulo 6	163	
<i>Conclusions and contributions</i>	<i>163</i>	
6.1	Conclusions of the PhD thesis	163
6.2	Future work.....	166

6.3	Contributions	167
6.3.1	Main publications.....	167
6.3.2	Other work performed during the thesis.....	170
Capítulo 7	171
Referencias	171

Tablas

Tabla 2-1. Expresiones comunes para ajustar la resolución en función de la energía ..	31
Tabla 2-2. Propiedades generales de materiales TL comúnmente utilizados. (DeWerd 1983)	56
Tabla 3-1. Datos de la fuente patrón multigamma	63
Tabla 3-2. Características geométricas del detector HPGe GMX-40 (Fuente: ORTEC)	64
Tabla 3-3. Características geométricas del detector BEGe-5030 (Fuente: CANBERRA)	66
Tabla 3-4. Valores experimentales de FWHM para cada energía de interés (GammaVision).....	70
Tabla 3-5. Ratios de eficiencias simuladas frente a experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)	78
Tabla 3-6. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Bordes rectos vs curvos.....	80
Tabla 3-7. Ratios de eficiencias (^{241}Am) simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)	82
Tabla 3-8. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: 15 ml.....	83
Tabla 3-9. Ratios de eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: 100 ml.....	84
Tabla 3-10. Ratios de eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: Marinelli de 500 ml.....	85
Tabla 3-11. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm ³ ; Muestra: 15 ml.....	86
Tabla 3-12. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm ³ ; Muestra: 100 ml.....	87
Tabla 3-13. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm ³ ; Muestra: Marinelli de 500 ml	87
Tabla 3-14. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: 15 ml	88

Tabla 3-15. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: 100 ml	89
Tabla 3-16. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: Marinelli de 500 ml.....	89
Tabla 3-17. Parámetros optimizados.....	90
Tabla 3-18. Ratios eficiencias simulada/experimental finales hasta 1115.5 keV (Incertidumbre, entre paréntesis)	90
Tabla 3-19. Ratios obtenidas con el modelo final optimizado, extendido hasta los 1836 keV (Incertidumbre, entre paréntesis).....	91
Tabla 3-20. Ratios de eficiencias simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)	93
Tabla 3-21. Ratios eficiencias simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis); Capa inactiva frontal (59.5 keV – 122.1 keV).....	94
Tabla 3-22. Parámetros optimizados.....	95
Tabla 3-23. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Recipiente 5 ml y Petri 100 ml. Posición top y a 6 cm.	95
Tabla 3-24. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Fuente puntual situada a 6 cm de altura.....	96
Tabla 3-25. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Fuente puntual situada a 11 cm de altura.....	96
Tabla 3-26. Composición y densidad de las matrices de arena de mar y arena de Zr...	97
Tabla 3-27. Ratios eficiencias simulada/experimental; Comparación MCNP6 y GEANT4; Matrices de agua.....	98
Tabla 3-28. Ratios eficiencias simulada/experimental; Comparación MCNP6 y GEANT4; Matrices de arena.....	99
Tabla 4-1. TSCFs para el ^{60}Co y el ^{88}Y , modelo del detector GMX-40	115
Tabla 4-2. TSCFs para ^{60}Co e ^{88}Y , modelo del detector BEGe-5030. Fuentes volumétricas	115
Tabla 4-3. TSCFs para ^{60}Co , ^{133}Ba e ^{88}Y , modelo del detector BEGe-5030. Fuentes puntuales	115
Tabla 4-4. Eficiencias y TSCFs para el ^{214}Bi ; Serie del ^{238}U	117
Tabla 4-5. Eficiencias y TSCFs para el ^{212}Bi (727.3 keV); Serie del ^{232}Th	118
Tabla 4-6. Eficiencias y TSCFs para el ^{208}Tl (583.2 keV); Serie del ^{232}Th	118

Tabla 4-7. Estadístico U (p-valor); Comparación de matrices, geometría de 100 ml; Calculado para los resultados obtenidos con GEANT4.....	118
Tabla 4-8. Estadístico U (p-valor); Comparación de geometrías, matriz de agua; Calculado para los resultados obtenidos con GEANT4.....	119
Tabla 4-9. Composición y densidades de las muestras de arena de mar correspondientes a la Figura 4.14	121
Tabla 4-10. Composiciones y densidad de las muestras de arena de mar y arena de Zr; Correspondiente a la Figura 4.12 y Figura 4.13.....	122
Tabla 4-11. Composiciones y densidad de las muestras C1 a C8; Correspondiente a la Figura 4.15	122
Tabla 4-12. Tabla para el cribado inicial. Tasa de emisión gamma (γ/s) máxima emitida por la fuente para cumplir el criterio de tiempo muerto; Muestra: 5ml	132
Tabla 4-13. Tasa de emisión gamma (γ/s) máxima emitida por la fuente para cumplir el criterio de tiempo muerto; Posición: geometría top	132
Tabla 4-14. Emisión gamma (γ/s) en cada muestra (col. 2) y la máxima permitida para cada configuración (^{241}Am).	136
Tabla 4-15. Emisión gamma (γ/s) en cada muestra (col. 2) y la máxima permitida para cada configuración (^{137}Cs).	137
Tabla 4-16. Mejores configuraciones de medida para cada nivel de contribución	138
Tabla 5-1. Energía absorbida (registro F6, MeV/g) para haces monoenergéticos y espectros (Incertidumbre entre paréntesis); Cristal de dosis profunda.....	145
Tabla 5-2. Energía absorbida (registro F6, MeV/g) para haces monoenergéticos y espectros (Incertidumbre entre paréntesis); Cristal de dosis superficial	145
Tabla 5-3. Errores estadísticos asociados a los registros F4, F6 y *F8 para un mismo número de historias simuladas (NPS=1.0E9).....	149
Tabla 5-4. Conversión a energía absorbida (MeV) en el cristal de dosis profunda partiendo de los registros F4 (Ec. 5.2), F6 y *F8.	149
Tabla 6-1. Contributions in relation to the chapters of the thesis.....	167

Figuras

Figura 2.1. Esquema del efecto fotoeléctrico (Jevremovic, 2005).....	9
Figura 2.2. Esquema del efecto Compton (Jevremovic, 2005)	10
Figura 2.3. Esquema de la producción de pares (Gilmore 2008).....	11
Figura 2.4. Importancia relativa de los tres tipos de interacciones de fotones con la materia (Evans 1955)	12
Figura 2.5. Coeficiente de atenuación másico para el plomo (Berger et al. 1998).....	13
Figura 2.6. Esquema simplificado de la estructura de bandas de un material aislante, semiconductor y conductor. E_g : energía de la banda prohibida.	15
Figura 2.7. Estructura atómica y cristalina del germanio (Ashcroft y Mermin 1976) ..	16
Figura 2.8. Estructura atómica del Ge dopado con P y efecto sobre las bandas de valencia y conducción	17
Figura 2.9. Estructura atómica del Ge dopado con B y efecto sobre las bandas de valencia y conducción	18
Figura 2.10. (a) Unión P-N antes de redistribución de carga. (b) Zona de depleción tras redistribución.	19
Figura 2.11. Aumento de la zona de depleción al aplicar un potencial inverso V_R	20
Figura 2.12. Construcción básica de un detector HPGe (Gilmore 2008).....	21
Figura 2.13. Movimiento de los portadores de carga en el semiconductor (Gilmore 2008)	21
Figura 2.14. Formas de borde del impulso generado en un detector coaxial de tipo n para interacciones en diferentes localizaciones: (a) cerca del núcleo central; (b) punto medio entre el núcleo interno y la superficie externa; (c) cerca de la parte exterior. (Gilmore 2008)	23
Figura 2.15. Posibles interacciones en un detector “real”. PE, efecto fotoeléctrico; CS, evento Compton; PP, producción de pares (Gilmore 2008).....	25
Figura 2.16. (a) y (b) Ejemplo ilustrando las características de un espectro de ^{137}Cs y ^{28}Al , respectivamente (Gilmore 2008).....	26
Figura 2.17. (a) Impulso de entrada al MCA, forma y tiempos característicos; (b) Histograma cuentas frente a canales. T_p , tiempo en alcanzar el pico; T_w , ancho de impulso (Gilmore 2008).....	27

Figura 2.18. Influencia del FWHM en la discriminación entre energías muy cercanas: (a) centroides con una separación $>3 \times \text{FWHM}$ no deberían suponer ningún problema; (b) centroides con una separación $1 \times \text{FWHM}$, requerirían programas de deconvolución. (Gilmore 2008).....	29
Figura 2.19. Resolución de un espectro obtenido con un detector de semiconductor de Ge y con uno de centelleo de NaI (Knoll 2000).....	31
Figura 2.20. Modelos de comportamiento del tiempo muerto para detectores de radiación (Knoll 2000).....	34
Figura 2.21. Especificación de tiempos de un impulso semi-Gaussiano y su digitalización. T_P , tiempo en alcanzar el pico; T_{LG} , tiempo de puerta lineal; T_F , tiempo de caída del pico; T_W , ancho de impulso; T_D , tiempo de digitalización; T_S , almacenamiento en memoria; $T_M = T_D + T_S$ (Gilmore 2008)	36
Figura 2.22. Esquema de desintegración para ejemplificar el efecto de suma por coincidencia (Debertin 1991).....	37
Figura 2.23. Radiografía de un detector HPGe. a) Driak & Kovar, 2006 b) Saraiva et al., 2016	44
Figura 2.24. Respuesta eléctrica del cristal de Germanio del detector BEGe-5030.....	45
Figura 2.25. Esquema simplificado del proceso de absorción de energía proveniente de radiación ionizante; I, II, III y IV representan diferentes niveles de energía específicos creados por los dopantes (trampas a distinta E_g).	48
Figura 2.26. Esquema simplificado del proceso de lectura de un dosímetro al aplicar temperatura; I, II, III y IV representan diferentes niveles de energía específicos creados por los dopantes (trampas a distinta E_g).	49
Figura 2.27. Curva de termoluminiscencia aproximada del TLD LiF:Mg,Ti	50
Figura 2.28. Dosímetro de tarjeta (a, situado generalmente en la ropa en la zona pectoral) y dosímetro de anillo (b, colocado en los dedos de la mano). Fuente: SDPE-UPV.....	53
Figura 3.1. Detector HPGe GMX-40 (ORTEC). Fuente: Elaboración propia	64
Figura 3.2. Modelo en MCNP6 del detector HPGe GMX-40.....	65
Figura 3.3. Petri de 15 ml (izq.), Petri de 100 ml (centro), Marinelli de 500 ml (der.).	65
Figura 3.4. Detector BEGe-5030. Fuente: Elaboración propia	66
Figura 3.5. Modelo del detector BEGe-5030 (MCNP6)	67
Figura 3.6. Geometrías de calibración y corte axial del modelo de detector BEGe-5030 (MCNP6). Recipiente de 5 ml - 50 ml en posición top (izquierda), Petri de 100 ml (centro) y fuente puntual (derecha).	68
Figura 3.7. Calibración en energía; GMX-40; Muestra de 100 ml	69

Figura 3.8. Resolución en energía (FWHM); GMX-40; Muestra de 100 ml	69
Figura 3.9. Espectros obtenidos experimentalmente y simulado; GMX-40; Muestra de 100 ml	71
Figura 3.10. Procedimiento para la caracterización geométrica del detector HPGe GMX-40	73
Figura 3.11. Eventos registrados y regiones activas e inactivas del detector BEGe-5030	76
Figura 3.12. Eficiencias de foto-pico experimentales	78
Figura 3.13. Modelos con bordes rectos (izquierda) y redondeados (derecha).....	79
Figura 3.14. Dependencia de la eficiencia frente al espesor de la capa inactiva frontal81	
Figura 3.15. Dependencia de la fluencia (^{241}Am) con la profundidad del cristal. La intersección entre los ejes “profundidad” y “fluencia” representa la superficie superior del cristal de Ge	81
Figura 3.16. Eficiencias de foto-pico experimentales; Posición: top	92
Figura 3.17. Modelo del detector BEGe-5030. (a) posición top. (b) 6 cm de altura.....	94
Figura 3.18. Eficiencias experimentales	98
Figura 4.1. Radionúclidos involucrados en la serie natural del ^{238}U con sus modos de desintegración, energías y vidas medias	104
Figura 4.2. Radionúclidos involucrados en la serie natural del ^{232}Th con sus modos de desintegración, energías y vidas medias	105
Figura 4.3. Cálculo de los TSCFs con GEANT4	107
Figura 4.4. Esquema de desintegración del ^{60}Co . Fuente: LNE-LNHB/CEA.....	108
Figura 4.5. Esquema de desintegración del ^{88}Y . Fuente: LNE-LNHB/CEA	109
Figura 4.6. Esquema desintegración del ^{133}Ba . Fuente: LNE-LNHB/CEA	110
Figura 4.7. Función \log_n (Ef.) para baja energía, desde \log_n (59.5 keV) hasta \log_n (122.1 keV).	113
Figura 4.8. Función \log_n (Ef.) para alta energía, desde \log_n (122.1 keV) hasta \log_n (1836.0 keV).	113
Figura 4.9. Función \log_n (Ef. foto-pico / Ef. total), desde \log_n (59.5 keV) hasta \log_n (1836.0 keV).	114
Figura 4.10. Efecto de la matriz en los TSCFs.....	119
Figura 4.11. Efecto de la geometría en los TSCFs.....	120

Figura 4.12. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml; Arena de Zr pura y arena de Zr con impurezas; $\rho = 3.5$	123
Figura 4.13. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml; Arena de mar pura y arena de mar con impurezas; $\rho = 1.65$	123
Figura 4.14. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml de SiO_2Zr ; Todas las muestras tienen la misma composición, pero con diferentes densidades....	124
Figura 4.15. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml de diferentes composiciones; Todas las muestras tienen densidad $\rho=1.00$	124
Figura 4.16. Eficiencia total para diferentes distancias fuente-detector; Volumen de 5ml	127
Figura 4.17. Eficiencia total para diferentes distancias fuente-detector; Volumen de 50ml	128
Figura 4.18. Reducción de la eficiencia total con la distancia muestra-detector.....	128
Figura 4.19. Eficiencia total para diferentes volúmenes de fuente situadas en geometría top	129
Figura 4.20. Eficiencia total para diferentes volúmenes de fuente situadas a una altura de 20 cm por encima de la geometría top	130
Figura 4.21. Reducción de la eficiencia total con el volumen de muestra	130
Figura 4.22. Procedimiento de cribado y medición	134
Figura 5.1. TLD100-HARSHAW LiF: Mg, Ti. Fuente: SDPE-UPV	142
Figura 5.2. Haces de R-X N40 aplicando el filtro en la simulación y a posteriori con la Ex. 5.1	144
Figura 5.3. Haces de R-X N100 aplicando el filtro en la simulación y a posteriori con la Ex. 5.1	144
Figura 5.4. Modelo del TLD-100 con MCNP6; Filtro de dosis profunda Hp(10)	146
Figura 5.5. Modelo del TLD-100 con MCNP6; Filtro de dosis superficial Hp(0.07). 146	
Figura 5.6. Modelo 3D del TLD-100; Filtros y cristales	146
Figura 5.7. Modelos 3D del TLD-100 sobre el fantoma	147
Figura 5.8. Modelo del TLD-100 sobre el fantoma; Condiciones de irradiación	148
Figura 5.9. Función de absorción másica μ_{en}/ρ en función de la energía para el LiF	149
Figura 5.10. Hp (10), Hp (0.07) y kerma en aire ($K(0^\circ,E)$).....	151

Figura 5.11: Coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis para $H_p(10)$; $h(0^\circ, E)$	152
Figura 5.12: Coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis para $H_p(0.07)$; $h(0^\circ, E)$	152
Figura 5.13: Función de Respuesta Relativa para $H_p(10)$; $R(0^\circ, E)$	153
Figura 5.14: Función de Respuesta Relativa para $H_p(0.07)$; $R(0^\circ, E)$	154
Figura 5.15: Ratio de RREs (cristal de profunda / superficial) simulada y experimental	154
Figura 5.16. TLD100-HARSHAW LiF: Mg, Ti; Filtros de Cu y ABS	155
Figura 5.17. Relación de la RRE para cada material de filtrado	156
Figura 5.18. Modelos con la fuente de R-X orientada a 75° (a), 60° (b), 30° (c) y 0° (d). Condiciones de irradiación: haz de 50×50 cm y a 250 cm de distancia (no a escala). 157	
Figura 5.19: Respuesta $H_p(10)$ del TLD100 para diferentes ángulos de incidencia... 158	
Figura 5.20: Respuesta $H_p(0.07)$ del TLD100 para diferentes ángulos de incidencia 158	
Figura 5.21. Respuesta relativa simulada para dosis profunda para diferentes materiales	159
Figura 5.22. Respuesta relativa simulada para dosis superficial para diferentes materiales	159
Figura 5.23. Ratio de RREs (cristal de profunda / superficial) simulada para los materiales TLD de LiF, Al_2O_3 , CaF_2 y $CaSO_4$	160

Acrónimos y siglas

ABS	<i>Acrylonitrile Butadiene Styrene</i>
ALARA	<i>As Low As Reasonably Achievable</i>
AVSRE	Agencia Valenciana de Seguridad y Respuesta a Emergencias
BEGe	<i>Broad Energy Germanium</i>
BOE	Boletín Oficial del Estado
CN	Central Nuclear
CPS	Cuentas Por Segundo
CSN	Consejo de Seguridad Nuclear
CV	Comunitat Valenciana
DIQN	Departamento de Ingeniería Química y Nuclear
DL	<i>Dead Layer</i>
ENSDF	<i>Evaluated Nuclear Structure Datafile</i>
ETNA	<i>Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements</i>
FEPE	<i>Full Energy Peak Efficiency</i>
FWHM	<i>Full Width at Half Maximum</i>
GEANT	<i>GEometry ANd Tracking</i>
GEB	<i>Gaussian Energy Broadening</i>
GESPECOR	<i>Germanium Spectroscopy Correction factor</i>
HPGe	<i>High Purity Germanium</i>
IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>
ICRP	<i>International Commission on Radiological Protection</i>
ICRU	<i>International Commission on Radiation Units and Measurements</i>
ISO	<i>International Organization for Standardization</i>
LRA-UPV	Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universitat Politècnica de València
MEDASEGI	Grupo de Medio Ambiente y Seguridad Industrial

MCNP	Monte Carlo N-Particle
NIST	Instituto Nacional de Estándares y Tecnología de los Estados Unidos
NORM	<i>Naturally Occurring Radioactive Materials</i>
PHD	<i>Pulse Height Distribution</i>
PMMA	Polimetilmetacrilato
PR	Protección Radiológica
PVRA-IN	Programa de Vigilancia Radiológica Ambiental Independiente
PVRE	Programa de Vigilancia Radiológica en Emergencia
RDD	Dispositivo de Dispersión Radiológica
RDM	<i>Radioactive Decay Module</i>
RRE	Respuesta Relativa en Energía
SALSA	<i>Salamanca Lyso-based Scanning Array</i>
SDPE	Servicio de Dosimetría Personal Externa
TLD	<i>Thermoluminescent dosimeter</i>
TL	Termoluminiscencia
TPE	Trabajadores Profesionalmente Expuestos
TS	<i>True Summing</i>
TSCF	<i>True Summing Correction Factor</i>
UPV	Universitat Politècnica de València
US EPA o EPA	<i>United States Environmental Protection Agency</i>
VRA	Vigilancia Radiológica Ambiental

Capítulo 1

Introducción

1.1 Antecedentes

A lo largo de la historia se han producido pocos accidentes nucleares y radiológicos, pero con graves consecuencias tanto para la población como para el medio ambiente. En relación a los accidentes nucleares destacan los ocurridos en la Central Nuclear (CN) de Chernóbil (1986) y la CN de Fukushima Daiichi (2011) (IAEA 1992, 2015). También están considerados como accidentes importantes los debidos a fuentes huérfanas como los de Goiânia en Brasil (1987) y en El Salvador (1989), de fuentes de ^{137}Cs y ^{60}Co respectivamente (IAEA 2014). En España destaca el accidente de Palomares (1966), en el que un accidente de un bombardero estadounidense que transportaba armamento nuclear causó un nivel muy elevado de contaminación por plutonio. Este tipo de accidentes nucleares y radiológicos, junto con la posibilidad de sufrir ataques terroristas que empleen artefactos explosivos de dispersión radiológica, suponen un riesgo que es necesario controlar, entre otros, mediante programas de vigilancia adecuados al efecto.

La medida de la radiactividad en muestras ambientales es una actividad que el LRA-UPV (Laboratorio de Radiactividad Ambiental-Universitat Politècnica de València), integrado dentro del Servicio de Radiaciones, viene realizando desde su creación en el año 1984. Esta actividad se ha realizado fundamentalmente en el campo de la vigilancia radiológica ambiental, formando parte de la Red de Estaciones de Muestreo (REM) del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), en el control de calidad del PVRA de CN Cofrentes (PVRA-IN) y en el convenio del PVRE junto con la Agencia Valenciana de Seguridad y Respuesta a Emergencias (AVSRE), además de la medida de la radiactividad en alimentos y otras matrices (Sáez-Muñoz 2019).

El Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) es el organismo competente en materia de Seguridad Nuclear y Protección Radiológica en España y es la entidad que establece, entre otros requisitos, los programas de vigilancia radiológica ambiental, tanto en situación normal (REM, PVRA-IN, ...) como en caso de emergencias nucleares y radiológicas. El Área de Protección Radiológica (PR) es la encargada de gestionar la vigilancia radiológica ambiental y en particular, la referente a las centrales nucleares (CSN 1993). Aunque sí que se establecen procedimientos específicos para llevar a cabo la vigilancia radiológica ambiental en operación normal, la respuesta en situaciones de emergencia todavía necesita más desarrollo, siendo necesario adaptar procedimientos rutinarios a este nuevo contexto o desarrollar otros nuevos.

Así pues, es necesario contar con planes y protocolos de actuación ante dichos escenarios de emergencia, tales como los propuestos por el Organismo Internacional de Energía Atómica (IAEA 2004, 2010) que, junto con la US EPA (*United States Environmental Protection Agency*) han establecido criterios para diferenciar entre los diferentes niveles operacionales de intervención y niveles de acción analítica (OILs y AALs, respectivamente) a partir de los cuales se establecen los protocolos de medida a seguir. Estos criterios se basan en establecer límites de dosis para reducir la aparición de efectos estocásticos y evitar los efectos deterministas en las personas. Antes de poder calcular la dosis es necesario caracterizar las muestras según los radionúclidos y actividades específicas. Además, se fijan criterios de cribado para las medidas de emisores gamma además de los índices de alfa y beta totales presentes en diferentes matrices ambientales (EPA 2008, 2009, 2012; IAEA 2011).

1.2 Motivación de la Tesis

Uno de los principales problemas al realizar mediciones mediante espectrometría gamma, es la calibración en eficiencia de los detectores de semiconductor. La eficiencia de detección del sistema no depende únicamente del detector utilizado, sino de la configuración de la medida, incluyendo el tipo de geometría, así como la composición y densidad de la muestra a medir, entre otros factores. Además, la curva de eficiencia es función también de la energía de las emisiones gamma de los radionúclidos presentes en la muestra. Por tanto, antes de poder realizar mediciones es necesario tener calibrado el detector para unas condiciones de medición concretas (Gilmore 2008). Aunque es posible realizar las calibraciones mediante técnicas experimentales, estos procedimientos son laboriosos debido a que es necesario utilizar fuentes patrón de la misma geometría y matriz que las muestras a medir. En este contexto, el método de Monte Carlo permite complementar estos procedimientos y mediciones realizando simulaciones realistas y rápidas de cualquier tipo de muestra, optimizando así el procedimiento de calibración experimental.

Una de las aplicaciones más comunes en la espectrometría gamma es la cuantificación de la actividad en muestras ambientales que contienen radionúclidos naturales como el ^{238}U o ^{232}Th . Aunque el ^{238}U y ^{232}Th se encuentran comúnmente en muestras ambientales de carácter natural, también existen casos en los que dichos radionúclidos, o sus descendientes, se han encontrado en fuentes huérfanas tales como pararrayos y detectores de humo, elementos con contaminación natural NORM o piezas de uranio empobrecido (^{238}U) entre otros (CSN 2017), (IAEA 2013). Asimismo, estas fuentes huérfanas pueden ser también accesibles para organizaciones terroristas y pueden emplearse en la fabricación de Dispositivos de Dispersión Radiológica (RDD, por sus siglas en inglés), conocidos comúnmente como bombas sucias (EPA 2009).

Aunque este tipo de radionúclidos pueden caracterizarse mediante espectrometría alfa y beta, las técnicas asociadas a estos procedimientos requieren pretratamientos de separación química que demoran significativamente el análisis de la muestra. Sin embargo, se están realizando nuevos procedimientos de espectrometría alfa y beta enfocados en emergencias para aumentar su eficiencia y reducir el tiempo necesario de respuesta (Sáez-Muñoz 2019).

Por otro lado, en el caso de objetos provenientes de RDDs, es posible que no puedan medirse mediante espectrometría alfa y beta por la imposibilidad de someterlos a los procesos químicos necesarios y por limitaciones estructurales en los detectores utilizados.

Existe la posibilidad de realizar mediciones por espectrometría gamma que no requieren pretratamientos, pero en este caso surge otro problema. En muchas ocasiones no es posible medir directamente los principales elementos de las series naturales y es necesario acudir a su progenie, seleccionando para ello aquellos radionúclidos de la cadena de desintegración (suponiendo que están en equilibrio secular) con emisiones gamma medibles. Sin embargo, algunos de ellos tienen esquemas de desintegración complejos con emisión de fotones en cascada, presentando problemas de suma por coincidencia y necesiéndose aplicar factores de corrección por pico suma (TSCFs) para estimar la actividad real (Morel, Chauvenet, y Kadachi 1983). Dichos factores pueden obtenerse mediante métodos experimentales, pero de nuevo surgen los problemas descritos anteriormente y se hace necesario disponer de técnicas computacionales como el método de Monte Carlo.

Por otro lado, las amenazas radiológicas debidas tanto a accidentes nucleares o radiológicos como a ataques radiactivos contra la sociedad y el medio ambiente se perciben cada vez más como una posibilidad real. Puesto que la caracterización radiológica de muestras ambientales en una situación de emergencia debe realizarse con celeridad, es necesario desarrollar procedimientos rápidos de análisis y medida para dichas situaciones de emergencia. En este contexto, el LRA-UPV debe adaptar y asegurar la calidad de sus procedimientos de medida de radiactividad ambiental a este nuevo contexto, p.e. métodos rápidos de medida y cribados de emergencia para dar soporte en tales situaciones. En este contexto, los métodos basados en la simulación de

Monte Carlo también pueden resultar de gran ayuda para optimizar los procedimientos, no solo reduciendo el tiempo de preparación y medida de la muestra, sino minimizando el riesgo de exposición del personal a altas dosis de radiación por tratarse de muestras muy activas.

El Servicio de Radiaciones de la UPV también gestiona la evaluación y el control dosimétrico de los trabajadores profesionalmente expuestos que desempeñan su actividad laboral en la instalación radiactiva única que conforma la UPV a través del Servicio de Dosimetría Personal Externa (SDPE). Para ello, utiliza dosímetros de termoluminiscencia (TLDs), modelo TLD-100, con los que evalúa la dosis profunda y superficial equivalentes. Estos dosímetros también deben calibrarse periódicamente para asegurar la relación entre la carga registrada en la lectura de los TLDs y la dosis recibida real y para unas condiciones de irradiación muy concretas. Es por ello por lo que disponer de modelos de simulación por Monte Carlo de estos detectores permitiría poder estudiar su comportamiento en diferentes situaciones, complementando las actividades que realiza el SDPE. En este sentido, cuando el campo de radiación de la fuente corresponde con un nivel energético determinado se han detectado algunas dificultades a la hora de estimar las dosis reales sin sobreestimarlas.

1.3 Objetivo de la Tesis

El objetivo principal de esta Tesis es desarrollar modelos de simulación mediante el método de Monte Carlo, como apoyo a la medida de radiactividad ambiental y dosis, tanto en operación rutinaria como en situaciones de emergencia. Dichos modelos se incluirían en los procedimientos del LRA y del SDPE de la Universitat Politècnica de València para mejorar su capacidad de respuesta en tales contextos.

Con relación al LRA, los modelos de simulación de los dos detectores de semiconductor utilizados actualmente (HPGe GMX-40 y BEGe-5030) se emplearían con dos objetivos:

- Obtención de curvas de calibración en eficiencia para diferentes geometrías de medida y para diferentes matrices, en particular composiciones y densidades de las muestras a medir. Dentro de este objetivo se incluye también la obtención de TSCFs para corregir las curvas de eficiencia experimental de las fuentes patrón y para estimar la actividad real de radionúclidos pertenecientes a series naturales en muestras ambientales. De este modo los modelos de simulación en Monte Carlo se incluirían en los procedimientos rutinarios del LRA, complementándolos.
- Desarrollo de procedimientos logísticos en situaciones de emergencia para medir muestras de alta actividad basados en simulaciones de Monte Carlo. Dicho procedimiento incluye un cribado o *screening* de emergencias que forma parte de una secuencia de medición que varía en función de la actividad de la muestra a medir. La metodología a desarrollar permitiría obtener la

configuración de medición óptima centrándose en reducir el tiempo de respuesta, maximizar la precisión y fiabilidad de los resultados obtenidos, establecer si la muestra necesita algún pretratamiento, reducir el riesgo de contaminación al manipular la fuente y reducir el riesgo de exposición a dosis por parte de los trabajadores del laboratorio.

Por otro lado, el modelo de simulación del TLD-100 tiene el objetivo de complementar la función de control y evaluación dosimétrica del SDPE mediante:

- Análisis de la respuesta relativa del dosímetro ante diferentes condiciones de irradiación.
- Análisis del comportamiento del dosímetro con otros materiales termoluminiscentes o filtros, como los empleados para obtener Hp (3).
- Validar las curvas de calibración experimentales.

1.4 Estructura de la Tesis

El documento de la Tesis se divide en siete capítulos, incluyendo este primero de Introducción y el último que recopila las referencias consultadas.

El segundo capítulo, titulado Estado del Arte, está dividido en dos secciones. La primera sección hace referencia a la espectrometría gamma e incluye una primera parte de fundamentos teóricos sobre la interacción de la radiación gamma con la materia, una descripción de los principios de funcionamiento de los detectores de semiconductor y un análisis bibliográfico sobre la caracterización y calibración de estos detectores mediante el método de Monte Carlo. La segunda parte se centra en la dosimetría por termoluminiscencia, resumiendo los fundamentos teóricos, la dosimetría personal y los dosímetros basados en TLD.

El capítulo tercero abarca el desarrollo y validación de dos modelos de detector de semiconductor para espectrometría gamma, un HPGe GMX-40 de ORTEC y un BEGe-5030 de CANBERRA. Ambos detectores se utilizan en las actividades y procedimientos rutinarios que se realizan en el LRA-UPV. Se detalla el procedimiento de caracterización geométrica de los detectores, así como del volumen activo del cristal de germanio mediante metodologías basadas en el método de Monte Carlo para obtener una serie de parámetros característicos optimizados. La validación de ambos modelos se realiza mediante comparación de la curva de eficiencia simulada y experimental.

El capítulo cuarto engloba diversas aplicaciones relacionadas con los modelos de detector para espectrometría gamma. Las aplicaciones se agrupan en dos secciones principales. En la primera se obtienen factores de corrección por pico suma para corregir la curva de eficiencia experimental obtenida en el LRA, cuando aplique, y se simulan las curvas de calibración en eficiencia para materiales de diferente composición. Se emplean

herramientas o códigos de Monte Carlo y *software* determinista. En la segunda sección se desarrolla una metodología que incluye un cribado o *screening* de emergencias para caracterizar muestras de alta actividad. El trabajo se centra en un procedimiento logístico basado en simulaciones de Monte Carlo para obtener condiciones de medición óptimas y reducir el tiempo de respuesta del laboratorio, así como reducir la exposición a dosis por parte de los trabajadores.

El capítulo quinto consiste en el modelado, en Monte Carlo, de un dosímetro de termoluminiscencia, modelo TLD-100:Mg,Ti, que utiliza el servicio de dosimetría personal de la UPV para monitorizar y evaluar a los trabajadores clasificados como profesionalmente expuestos y que desempeñan su actividad laboral en la instalación radiactiva que conforma la UPV. Una vez se obtiene el modelo de simulación se simula y calcula la respuesta relativa (al ^{137}Cs) del TLD-100 para diferentes ángulos de incidencia del haz de radiación y diferentes materiales termoluminiscentes.

En el sexto capítulo se presentan las conclusiones más relevantes alcanzadas durante el desarrollo de la Tesis en respuesta a los objetivos fijados en su inicio. Por otro lado, se establecen las líneas futuras de investigación que es posible acometer partiendo de los modelos de simulación desarrollados y de los resultados obtenidos en la presente Tesis. Por último, se listan las principales aportaciones en forma de publicaciones en revistas científicas y participaciones en congresos nacionales e internacionales derivadas del trabajo realizado.

A modo de agradecimiento, es importante destacar que el trabajo desarrollado en esta Tesis doctoral ha sido posible gracias a un contrato predoctoral cofinanciado por la Cátedra CSN-UPV Vicente Serradell y el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universitat Politècnica de Valencia, dentro del “Programa propio para la Formación de Personal Investigador (FPI) de la Universitat Politècnica de València - Subprograma 2” de la convocatoria de 2015 convocado por el Vicerrectorado de Investigación, Innovación y Transferencia.

Capítulo 2

Estado del Arte

2.1 Espectrometría gamma

Esta sección tiene como objetivo introducir los fundamentos teóricos relacionados con los detectores utilizados en espectrometría gamma. De los diferentes tipos de detectores, este apartado se centra en aquellos basados en semiconductores y, en particular, en los de germanio de alta pureza (HPGe). Primero se realiza una breve descripción de la interacción de la radiación gamma con la materia para, a continuación, explicar el funcionamiento de este tipo de detectores.

Se incluye una revisión de la caracterización de los detectores tipo HPGe mediante procedimientos experimentales y computacionales. Dentro de este último grupo, la revisión se centra en los métodos de simulación de Monte Carlo.

2.1.1 *Interacción de la radiación con la materia*

El tipo de interacción que se produce entre la radiación y la materia depende en gran medida de su naturaleza y origen, diferenciando en primer lugar entre partículas cargadas y no cargadas. En lo que respecta a partículas cargadas, se puede diferenciar entre partículas pesadas, como las partículas α , los protones o los iones pesados y partículas ligeras, como las partículas β . Las partículas no cargadas pueden clasificarse en partículas con masa o corpusculares (neutrones), y sin masa (radiación electromagnética gamma). Cada tipo de radiación interactúa con la materia de un modo diferente y es necesario estudiarla independientemente.

Las características principales de cada tipo de radiación tales como el poder de penetración, el modo de detectarla o el riesgo para los organismos vivos, entre otras, están influenciadas por los procesos de interacción con el medio. Generalmente, esta interacción produce dos tipos de efectos, ionización y excitación atómica del medio.

Muchas de las reacciones nucleares que se dan en procesos naturales o como resultado de actividades antropogénicas (industria, medicina, ...), conllevan la emisión de radiación gamma (γ). Esta radiación comprende un espectro de energía muy amplio, desde *kilo electron volts* (keV) hasta *mega electron volts* (MeV). La diferencia principal con las partículas cargadas es el tipo de interacciones que pueden experimentar al atravesar el medio material. Así, las partículas cargadas pueden sufrir dos tipos de colisiones, elásticas e inelásticas. Las colisiones elásticas son aquellas en las que se mantiene constante la energía cinética de todo el conjunto, cumpliéndose el principio de conservación de la cantidad de movimiento. En las colisiones inelásticas en cambio, parte de la energía cinética inicial se transforma en otros tipos de energía.

De todos los tipos de interacción de la radiación gamma con la materia, en el ámbito de la medida de radiación, destacan tres en particular: efecto fotoeléctrico, efecto Compton y producción de pares. En todos ellos se produce una transmisión parcial o completa de la energía de la radiación gamma a los electrones/positrones.

2.1.1.1 Efecto fotoeléctrico

En este caso, los fotones inciden con un electrón fuertemente ligado a un átomo y es completamente absorbido. En este proceso, el electrón es eyectado con una energía (E_k) igual a la del fotón ($h\nu$) menos la energía de la unión correspondiente a su capa ($\Phi_{ligadura}$), produciendo así un electrón rápido llamado fotoelectrón (Expresión 2.1 y Expresión 2.2). A menudo, los fotones interactúan con los electrones más internos o de la capa-K del átomo, siempre que sea lo suficientemente energético como para ionizarla.

$$\gamma + \text{átomo} \rightarrow e^- + \text{Ión} \qquad \textbf{Expresión 2.1}$$

$$E_k = h\nu - \Phi_{ligadura} \qquad \textbf{Expresión 2.2}$$

El fotoelectrón emitido crea una vacante en la capa-K, que será rápidamente ocupada por otro electrón de una capa más externa produciéndose una transición para ocuparla. En este proceso se emiten rayos X característicos del elemento, también conocido como fluorescencia de rayos X (Jevremovic 2005).

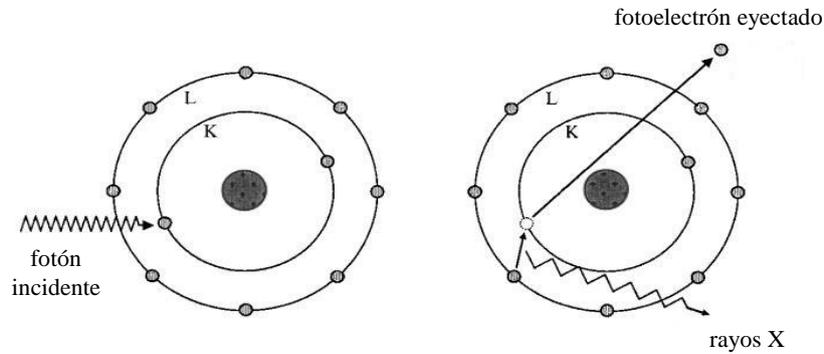


Figura 2.1. Esquema del efecto fotoeléctrico (Jevremovic, 2005)

Un modo alternativo de desexcitación es la emisión de electrones Auger. En este caso, la energía liberada en la transición se transmite a un segundo electrón en lugar de emitir rayos X, expulsándolo del átomo con una energía igual a la energía perdida por el electrón que realizó la transición, menos la energía de enlace del electrón expulsado (Knoll 2000).

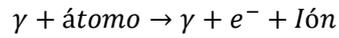
El efecto fotoeléctrico es más intenso para los fotones de menor energía y para materiales absorbentes de alto número atómico (Z). La probabilidad de que se produzca la interacción fotoeléctrica es aproximadamente proporcional a:

$$\frac{Z^n}{E_\gamma^m} \quad \text{Expresión 2.3}$$

donde n y m varían entre 3 y 5 dependiendo de la energía. La relevancia de esta expresión es que átomos más pesados absorben la radiación gamma de un modo más efectivo que los átomos más ligeros, al menos en lo que respecta al efecto fotoeléctrico. Por esta razón los materiales de alto número atómico son más adecuados para el diseño de blindajes y para la detección de radiación gamma (Cooper 2011; Gilmore 2008).

2.1.1.2 Efecto Compton

A diferencia del efecto fotoeléctrico, que ocurre principalmente en electrones fuertemente ligados, la dispersión Compton es una colisión inelástica entre los fotones o los rayos X incidentes y los electrones débilmente ligados (Figura 2.2). El fotón incidente transfiere sólo parte de su energía ($E_\gamma = h\nu$) al electrón ($m_e c^2$) y, como resultado, se obtiene un fotón dispersado con ángulo θ de menor energía ($E'_\gamma = h\nu'$) y un electrón eyectado con un ángulo de dispersión ϕ , y energía E_e (Jevremovic 2005).



Expresión 2.4

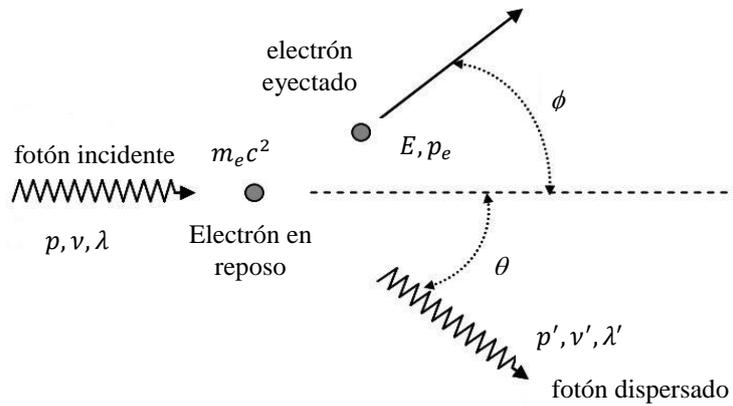


Figura 2.2. Esquema del efecto Compton (Jevremovic, 2005)

Por la ley de la conservación de la energía se obtiene:

$$h\nu + m_e c^2 = E_e + h\nu'$$

Expresión 2.5

La energía del fotón dispersado en función de su ángulo θ está definido por la Expresión 2.6 (Klein y Nishina 1929).

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos\theta)}$$

Expresión 2.6

2.1.1.3 Producción de pares

En este proceso, el fotón incidente es absorbido y se crea un par electrón-positrón (Figura 2.3) en el campo de Coulomb del núcleo siguiendo la Expresión 2.7. Esta interacción tiene un umbral energético igual a la masa en reposo de dos electrones, $2m_e c^2 = 1.022 \text{ MeV}$. Esta interacción también puede producirse bajo la influencia del campo de un electrón, pero la probabilidad de que esto ocurra es mucho menor, con un umbral energético de $4m_e c^2 = 2.044 \text{ MeV}$, lo que lo hace prácticamente despreciable en los

intervalos energéticos empleados comúnmente en espectrometría gamma de entre 0 y 3 MeV (Gilmore 2008; Jevremovic 2005).



En este fenómeno la carga total se conserva, pues un fotón con carga eléctrica cero genera un par con carga total también igual a cero.

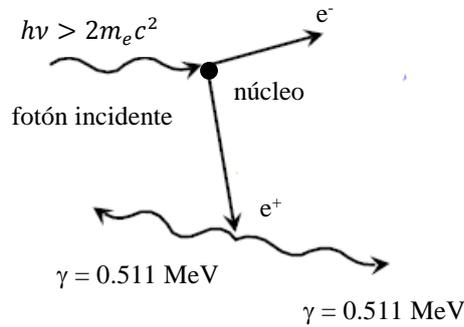


Figura 2.3. Esquema de la producción de pares (Gilmore 2008)

De acuerdo a la ley de la conservación de la energía, la energía del fotón incidente es igual a la energía usada para generar el par, más la energía cinética del positrón y de electrón (Jevremovic 2005):

$$h\nu = 2m_e c^2 + T^+ + T^- = 1.022 + T^+ + T^- \quad (\text{MeV}) \quad \text{Expresión 2.8}$$

El positrón, que se genera muy rápidamente, puede interactuar con otro electrón dando lugar al fenómeno conocido como aniquilación de positrones ($e^+e^- \rightarrow \gamma$), que es el equivalente al proceso inverso a la producción de pares ($\gamma \rightarrow e^+e^-$). En este caso, el balance energético queda como sigue:

$$2m_e c^2 + K^+ + K^- = 2h\nu \quad \text{Expresión 2.9}$$

donde $2m_e c^2$ representa la energía en reposo del par electrón-positrón, K^+ y K^- son las energías cinéticas de ambos antes de la colisión, y $2h\nu$ representa la energía de los dos fotones que se generan en la reacción, cada uno con la misma frecuencia (ν) y energía ($h\nu$). De acuerdo con la ley de la conservación de la energía, el valor de $h\nu$ debe ser al menos $m_e c^2 = 0.511 \text{ MeV}$.

2.1.1.4 Atenuación de rayos γ

La probabilidad total de interacción de un fotón con la materia es la suma de las secciones eficaces de los fenómenos descritos. La Expresión 2.10 resume cómo se obtiene la sección eficaz total microscópica por átomo.

$$\sigma = \sigma_{\text{fotoeléctrico}} + Z\sigma_{\text{Compton}} + \sigma_{\text{pares}} \quad \text{Expresión 2.10}$$

donde la sección eficaz del Compton se multiplica por el número de electrones por átomo, Z . La Figura 2.4 muestra la importancia relativa de estos tres procesos en función de la energía del fotón incidente y del número atómico del medio material.

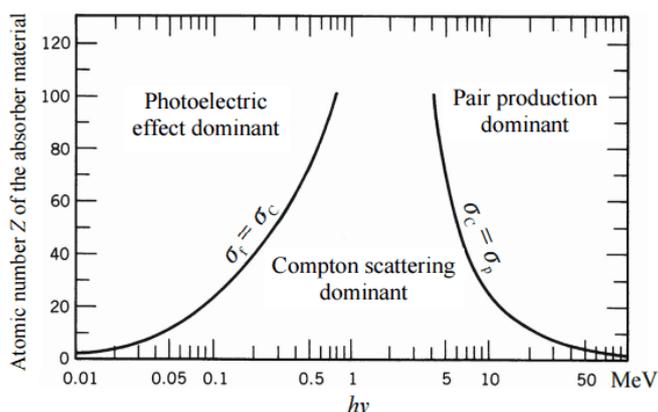


Figura 2.4. Importancia relativa de los tres tipos de interacciones de fotones con la materia (Evans 1955)

Si se multiplica σ por la densidad atómica n_v , se obtiene la probabilidad de interacción por unidad de longitud,

$$\mu = n_v \sigma = \sigma \left(\frac{N_a \rho}{A} \right) \quad \text{Expresión 2.11}$$

con N_a el número de Avogadro, ρ la densidad del material y A el peso molecular. Esto se conoce comúnmente como el Coeficiente de Atenuación Total (Figura 2.5) y es la inversa del recorrido libre medio. Un coeficiente más útil a nivel práctico es el coeficiente de atenuación másico, obtenido al dividirlo por la densidad del material ($\mu_m = \mu/\rho$; [cm^2/g]).

La capacidad de atenuación de un material puede cuantificarse también a través del recorrido libre medio (λ) como se muestra en la Expresión 2.12. Esta magnitud representa la distancia promedio recorrida en el seno del material hasta sufrir una interacción con un blanco.

$$\lambda = \frac{1}{n_v \sigma} \quad \text{Expresión 2.12}$$

La atenuación de la radiación gamma viene dada por la Expresión 2.13, en la que la intensidad del haz de fotones al atravesar una losa de espesor x decrece exponencialmente.

$$N(x) = N_0 e^{-\mu x} \quad \text{Expresión 2.13}$$

siendo N_0 el número de fotones incidentes por unidad de superficie y tiempo y N el número de fotones finales.

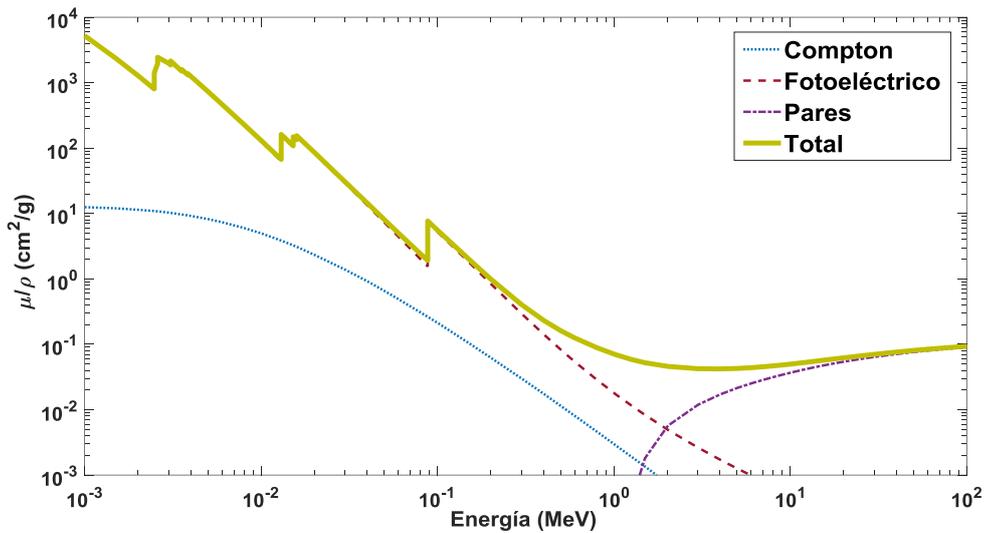


Figura 2.5. Coeficiente de atenuación másico para el plomo (Berger et al. 1998)

2.1.2 Detectores de radiación basados en semiconductor

2.1.2.1 Principios básicos de funcionamiento de un semiconductor

El principio de funcionamiento de los detectores de espectrometría gamma se basa en la interacción de la radiación con la materia al incidir en el detector. Cuando se producen estas interacciones en el volumen activo del detector, se deposita una energía que es transformada en señal eléctrica. Esta señal es proporcional a la energía depositada.

Los detectores de espectrometría gamma pueden clasificarse en tres tipos: gaseosos, de centelleo y basados en semiconductor. Esta sección se centra en este último.

Una de las ventajas de los detectores de semiconductor en espectrometría gamma es que están basados en medios de detección sólidos. Esto se traduce en un volumen sensible con una densidad mayor que el resto, lo que permite reducir su tamaño sin perder eficiencia. Por otro lado, el uso de materiales semiconductores permite alcanzar un elevado número de portadores de carga (pares electrón-hueco) por evento, mayor al del resto de detectores convencionales. De esta forma es posible obtener una excelente resolución en energía, así como el tiempo de medición necesario para obtener resultados precisos y fiables (Knoll 2000).

Un material semiconductor se puede comportar tanto como conductor como aislante dependiendo de factores como el campo magnético, la temperatura de trabajo o la radiación incidente. La mayoría de los detectores de semiconductor que se utilizan actualmente están fabricados con silicio (Si), con germanio (Ge) o con telurio de cadmio (CdTe). Estos materiales forman una estructura cristalina entre ellos mediante enlaces covalentes de sus cuatro electrones de valencia. Esta estructura permite la existencia de bandas de energía (banda de valencia y banda de conducción) para los electrones que forman parte de estos sólidos (Figura 2.6). La conducción eléctrica se produce por el movimiento de los electrones desde la banda de valencia hacia las vacantes de la banda de conducción. Para que esto ocurra es necesario que uno de estos electrones gane suficiente energía para poder superar la banda prohibida.

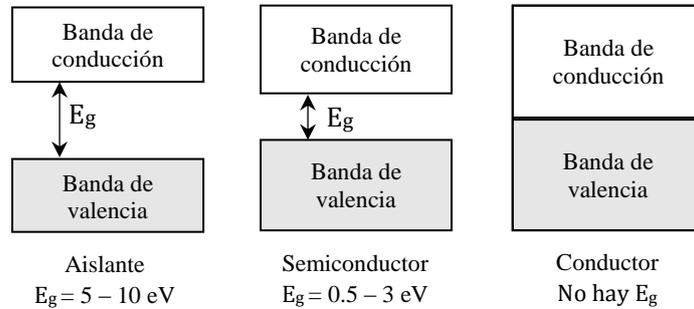


Figura 2.6. Esquema simplificado de la estructura de bandas de un material aislante, semiconductor y conductor. E_g : energía de la banda prohibida.

La banda de valencia se corresponde con los electrones de la capa exterior que están unidos mediante enlaces dentro de la red cristalina. La banda de conducción representa los electrones que son libres de migrar a través del cristal, contribuyendo a la conductividad eléctrica del material. Las dos bandas están separadas por un margen cuyo valor determina si el material se clasifica como semiconductor o como aislante, conocida como banda de energía prohibida. La diferencia entre un aislante y un semiconductor reside en el tamaño de esta banda de energía, el cual es del orden de 10 eV en un aislante y de 1 eV en un semiconductor (Gilmore 2008; Grundmann 2006).

A cualquier temperatura distinta de cero, se comparte una pequeña cantidad de energía térmica por los electrones del cristal. Es posible que un electrón de valencia obtenga suficiente energía térmica para ser elevado a la banda de conducción. Físicamente, este proceso simplemente representa la ionización de un electrón, que normalmente forma parte de un enlace covalente, pudiendo romper el enlace y migrar a la banda de conducción, dejando una vacante o hueco en la banda de valencia cargado positivamente. A esto se le denomina par electrón-hueco (carga negativa-carga positiva). Según los electrones de átomos cercanos llenan esa vacante (creando en el proceso una nueva vacante), esta parece moverse a través del cristal. El movimiento de estas dos cargas contribuye a la conductividad eléctrica del material. Este mecanismo también puede producirse al aplicarse conjuntamente un campo eléctrico y un campo de radiación ionizante.

La probabilidad por unidad de tiempo de que se genere térmicamente un par electrón-hueco viene dada por la Expresión 2.14 (Knoll 2000).

$$p(T) = CT^{3/2} e^{(-E_g/2kT)} \quad \text{Expresión 2.14}$$

donde T es la temperatura absoluta, E_g es la energía de la banda prohibida, k es la constante de Boltzmann y C es la constante de proporcionalidad característica del material. Esta probabilidad es fuertemente dependiente de la ratio de la energía de la

banda prohibida con la temperatura absoluta. Por ello, los materiales aislantes poseen una banda de energía grande, reduciendo drásticamente la conductividad eléctrica.

La principal ventaja de los detectores de semiconductor radica en la baja energía de ionización necesaria para crear los pares de electrón-hueco, siendo de aproximadamente 30 eV en un detector de tipo gas y de 3-5 eV en un semiconductor (2.96 eV para el Ge) (Gilmore 2008). Por lo tanto, el número de portadores de carga es aproximadamente 10 veces mayor para el caso de los semiconductores, para una energía dada. El aumento del número de portadores de carga tiene dos efectos beneficiosos sobre la resolución en energía alcanzable. Por un lado, la fluctuación estadística en la fracción del número de portadores creados por evento se reduce. Por otro, teniendo en cuenta que la resolución a bajas energías puede estar limitada por el ruido electrónico en el preamplificador, un mayor número de portadores por evento implica una mejor relación señal/ruido.

2.1.2.2 *Impurezas y dopantes*

En un semiconductor completamente puro, todos los electrones de la banda de conducción y todos los huecos en la banda de valencia aparecerían por excitación térmica (en ausencia de radiación ionizante). Debido a que en estas condiciones cada electrón debe dejar un hueco en la banda de valencia, el número de electrones en la banda de conducción debe ser el mismo al de huecos en la banda de valencia. Este material recibe el nombre de semiconductor intrínseco. Aunque sus propiedades pueden ser descritas teóricamente, en la práctica es virtualmente imposible de conseguir.

La Figura 2.7 a muestra un esquema simplificado de la estructura cristalina de germanio (o de silicio). Hay que tener en cuenta que cada átomo está influenciado en realidad por más de esos cuatro átomos, como puede verse en la Figura 2.7 b, siguiendo una estructura cristalina de diamante (Ashcroft y Mermin 1976).

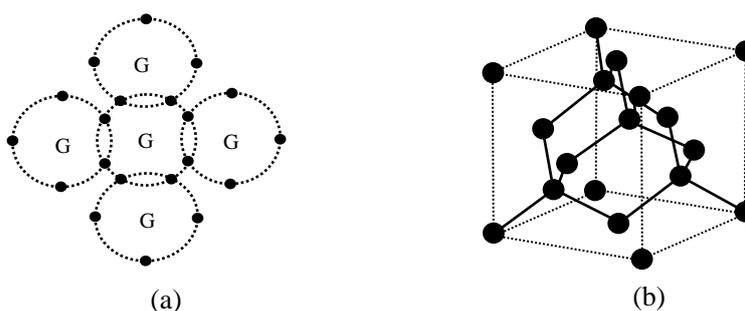


Figura 2.7. Estructura atómica y cristalina del germanio (Ashcroft y Mermin 1976)

Las propiedades eléctricas de los materiales reales tienden a estar dominadas por niveles muy pequeños de impurezas residuales; esto es cierto incluso para el silicio y el

germanio, que son a nivel práctico los semiconductores disponibles con niveles más altos de pureza (Haller, Hansen, y Goulding 1981). Algunas de estas impurezas pueden estar de forma natural dentro de la red cristalina o añadirse deliberadamente para ajustar las propiedades del semiconductor al uso que se le vaya a dar. En el caso que nos ocupa, es posible mejorar la conductividad eléctrica del material al facilitar la migración de los electrones de la capa de valencia a la de conducción. Este tipo de semiconductores recibe el nombre de semiconductor extrínseco o dopado y, en este contexto, existen dos clases, los de tipo p o de tipo n.

Semiconductores tipo n

Los semiconductores de tipo n están dopados con elementos pentavalentes como el antimonio (Sb), arsénio (As) o el fósforo (P). Estos elementos sustituyen un átomo de Ge o Si, aportando un electrón extra (cinco electrones de valencia), como se muestra en la Figura 2.8 a. Este electrón extra está débilmente ligado al átomo dopante, por lo que resulta fácil romper su enlace. Estos electrones se encuentran muy cerca de la banda prohibida y con una aportación baja de energía, migraría a la banda de conducción dejando su correspondiente hueco en la de valencia (Figura 2.8 b). Este tipo de impurezas reciben el nombre de donantes, pues aportan electrones a la banda de conducción. El efecto final en este caso es un gran aumento de la concentración de electrones de conducción junto con una reducción de los huecos en comparación con lo que se tiene en el material puro.

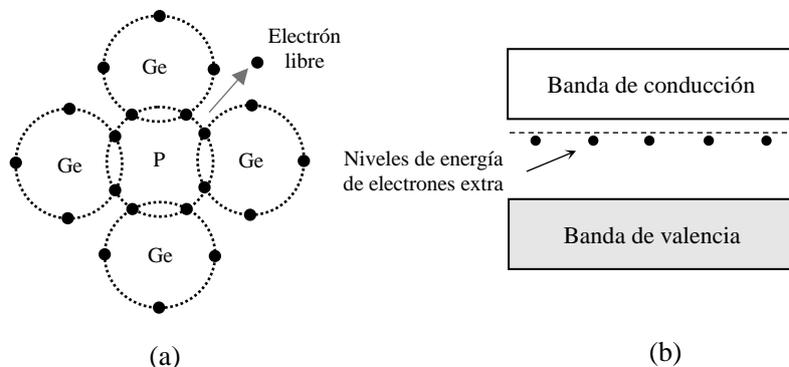


Figura 2.8. Estructura atómica del Ge dopado con P y efecto sobre las bandas de valencia y conducción

Semiconductores tipo p

Los semiconductores de tipo p están dopados con elementos trivalentes como el boro (B), el aluminio (Al) o el galio (Ga). Estos elementos sustituyen un átomo de Ge o Si, creando una vacante o deficiencia de electrones en la banda de valencia (Figura 2.9 a). Aunque dicha vacante representa un hueco similar al que deja un electrón de valencia al

ser excitado hacia la banda de conducción, el nivel energético del enlace del nuevo electrón que lo ocupa es inferior. Esto implica que estas impurezas, llamadas aceptoras, generen una concentración de huecos elevada, también ayudan a crear electrones en la banda prohibida. En este caso, el nivel de estos aceptores se encuentra cerca de la parte baja de la banda prohibida, pues su energía es similar a las posiciones ocupadas por los electrones de valencia (Figura 2.9 b).

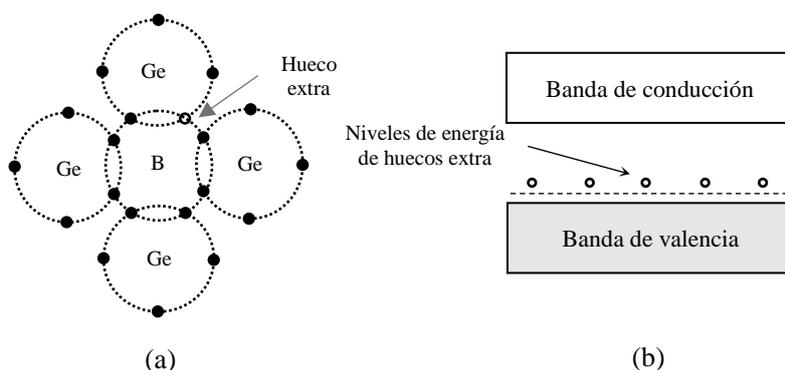


Figura 2.9. Estructura atómica del Ge dopado con B y efecto sobre las bandas de valencia y conducción

2.1.2.3 *Semiconductores como detectores de radiación gamma*

Para aplicaciones relacionadas con la detección de radiación mediante espectrometría gamma, es preferible el germanio frente al silicio debido a su mayor número atómico ($Z=32$ para Ge frente a $Z=14$ para Si). Un mayor Z mejora la eficiencia de detección al incrementar la sección eficaz de absorción. Además, la banda prohibida en el caso del Ge es menor en comparación con la del Si con 0.67 eV y 1.11 eV, respectivamente (Gilmore 2008), aumentando el número de portadores de carga que migran de una banda a otra y por tanto mejorando la resolución en energía del detector.

La interacción de la radiación gamma con el material semiconductor produce electrones primarios con energías considerablemente mayores que las energías térmicas. Esta interacción puede elevar los electrones de las bandas ocupadas por debajo de la banda de valencia a niveles de energía muy por encima de la base de la banda de conducción. Estos huecos y los electrones excitados tenderán a redistribuirse dentro de las bandas de energía disponibles hasta que los huecos se encuentren en la parte superior de la banda de valencia y los electrones en la base de la banda de conducción. En este proceso, puede producirse una posterior excitación, dando lugar a una cascada de pares electrón-hueco para cada interacción de electrones primarios. En presencia de un campo eléctrico, migrarán hacia arriba (electrones) o hacia abajo (huecos) del gradiente de campo. El número de pares electrón-hueco producidos, n , está relacionado directamente con la

energía de la radiación gamma absorbida, E_{abs} , es decir, si ε es la energía media necesaria para crear un par electrón-hueco:

$$n = E_{abs}/\varepsilon \quad \text{Expresión 2.15}$$

La recolección de estos portadores de carga en los contactos del cristal genera impulsos cuya amplitud permite cuantificar la energía absorbida en cada interacción, pudiendo diferenciar entre absorciones totales y parciales. Las diferentes amplitudes obtenidas y su ocurrencia en el tiempo (número de cuentas obtenidas para cada amplitud) terminarán conformando el espectro final de cuentas frente a energía.

Para poder trabajar como detectores de radiación, es necesario utilizar contactos de un material tipo p y otro tipo n en ambos extremos del detector creando una unión P-N (Figura 2.10 a). El exceso de electrones propiciado por el material pentavalente (tipo n, cargado negativamente) tenderá a difundirse hacia el contacto del material trivalente (tipo p, cargado positivamente) en el que existe un exceso de huecos a través de la unión de ambos en donde electrones y huecos se recombinan. Este fenómeno crea una zona empobrecida de portadores de carga libres alrededor de la unión física de ambos tipos de material conocida como zona de depleción. Cuando esto ocurre, la migración de las cargas libres de un lado hacia otro disminuye hasta alcanzarse el equilibrio. Como resultado, en la zona de empobrecimiento del lado N los átomos han perdido electrones que se han recombinado con los huecos de los átomos del lado P. Por tanto, la zona de empobrecimiento del lado N se queda cargada positivamente mientras que la del lado P se queda cargada negativamente (Figura 2.10 b). Se crea así una diferencia de potencial entre los extremos de la zona de depleción llamada barrera de potencial o potencial umbral de aproximadamente 0.4 V (Gilmore 2008; Knoll 2000). La zona de depleción se comporta entonces como una barrera que limita el paso de las cargas libres, ya que para que un electrón libre del lado N migre al lado P deberá superar dicho potencial umbral. Esta configuración responde al tipo de funcionamiento de un diodo.

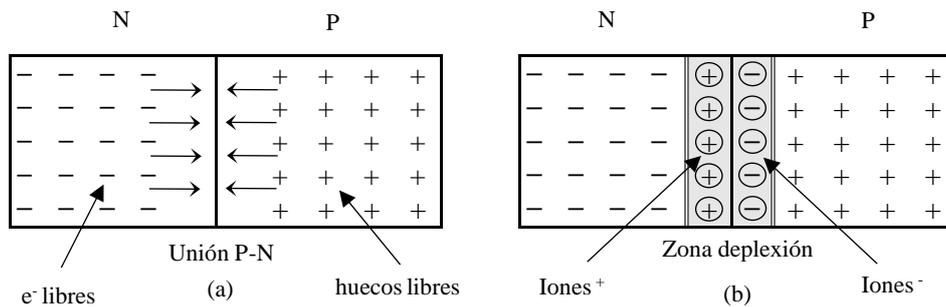


Figura 2.10. (a) Unión P-N antes de redistribución de carga. (b) Zona de depleción tras redistribución.

El ancho de la región de agotamiento es demasiado pequeño como para obtener un rendimiento operacional aceptable. Sin embargo, si se aplica un potencial positivo al extremo N, los electrones libres son atraídos hacia esa zona retirándose de las proximidades de la unión, aumentando la zona de deplexión. Estos electrones abandonan el lado N atravesando el borne positivo y al llegar al lado P se recombinan con los huecos libres cercanos a la zona de deplexión, aumentándola de igual modo (junto con la barrera de potencial). Puesto que el potencial positivo se conecta al semiconductor de tipo negativo y viceversa, se dice que se le aplica una polarización inversa (Figura 2.11). Aunque en la zona de deplexión ya no hay cargas libres, la radiación incidente crea pares electrón-hueco que son acelerados hacia los electrodos de polarización y cuya carga se recoge para caracterizar la energía absorbida. La región de deplexión conforma el volumen activo del detector y su extensión (d) puede regularse a través del potencial inverso aplicado (V_R).

$$d \approx \sqrt{(2\kappa\mu\rho V_R)} \quad \text{Expresión 2.16}$$

donde κ , ρ y μ son la constante dieléctrica, la resistividad del material (Ωm) y la movilidad de las cargas mayoritarias en el material ($m^2V^{-1}s^{-1}$), respectivamente. En un semiconductor de tipo p las cargas mayoritarias son los huecos y en los de tipo n, los electrones.

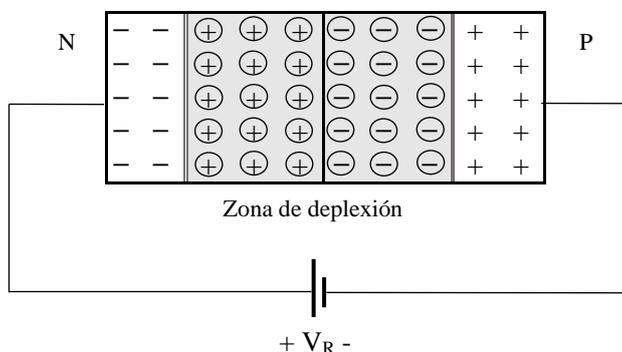


Figura 2.11. Aumento de la zona de deplexión al aplicar un potencial inverso V_R

En la práctica, los detectores de radiación gamma no están compuestos por dos bloques de material semiconductor de diferente tipo en contacto como puede parecer en la Figura 2.10. El proceso de fabricación del detector consiste, a grandes rasgos, en coger como base un bloque de material semiconductor de tipo p o n y convertir una de sus caras en el tipo contrario mediante técnicas de evaporación, difusión o implantación de iones. De este modo, un detector de germanio de tipo p consistiría en un bloque de dicho material siendo una de sus caras de tipo n (Figura 2.12). Esto implica que al aplicar una polarización inversa, la zona de deplexión se crea a través de del material de tipo p. Estos

detectores son conocidos como detectores de germanio de alta pureza (HPGe, High Purity Germanium).

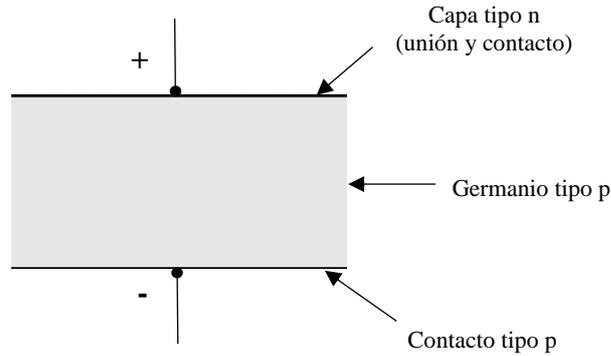


Figura 2.12. Construcción básica de un detector HPGe (Gilmore 2008)

2.1.2.4 Recolección de carga en el detector y formación del impulso

Al crearse un par electrón-hueco como resultado de una interacción gamma en ausencia de ningún campo eléctrico, el par se moverá por el material bajo la influencia de la excitación térmica. Al aplicar un campo eléctrico (E), como el creado por un potencial inverso (V_R) suficiente como para crear una zona de depleción cuya extensión ocupe todo el espesor del cristal (d), los electrones migrarán al contacto positivo y los huecos al negativo (Figura 2.13).

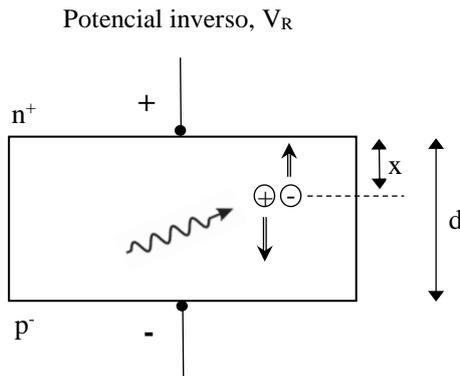


Figura 2.13. Movimiento de los portadores de carga en el semiconductor (Gilmore 2008)

El tiempo de recolección de los portadores de carga dependerá de la distancia que deban recorrer y de su velocidad, teniendo en cuenta que la movilidad del electrón y del hueco son diferentes. En el germanio esta diferencia es de aproximadamente el 15% (Gilmore 2008).

$$\mu = \frac{v}{E} \qquad \text{Expresión 2.17}$$

siendo μ la movilidad de cada portador, v su velocidad de desplazamiento y E la fuerza del campo eléctrico. A intensidades de campo bajas, la movilidad de los portadores de carga es constante. Sin embargo, a intensidades elevadas la velocidad de desplazamiento no aumenta proporcionalmente, sino que termina alcanzando una velocidad de saturación. Si se aplica un potencial lo suficientemente elevado como para alcanzar dicho nivel de saturación, es posible calcular el tiempo de recolección:

$$\text{tiempo de recolección del electrón,} \qquad t_e = \frac{x}{v_e} \qquad \text{Expresión 2.18}$$

$$\text{tiempo de recolección del hueco,} \qquad t_h = \frac{d - x}{v_h} \qquad \text{Expresión 2.19}$$

La contribución de cada portador de carga a la señal eléctrica final depende de la propia carga que transporta y de la fracción de campo eléctrico que ha recorrido. En el supuesto de la Figura 2.13 en la que el par electrón-hueco se ha creado próximo al borne positivo, este llegará antes, pero con una contribución menor a la del hueco. El aumento de la señal eléctrica con el tiempo, es decir, la forma del impulso de salida, depende de la localización en la que se produzca la interacción (Figura 2.14). La forma del impulso generado en el detector y el tiempo de recolección de la carga influyen en el modo de configuración de la electrónica encargada de procesar el impulso. En particular, tiempos de recolección largos, tienen importantes repercusiones en las tasas de recuento medidas (Gilmore 2008).

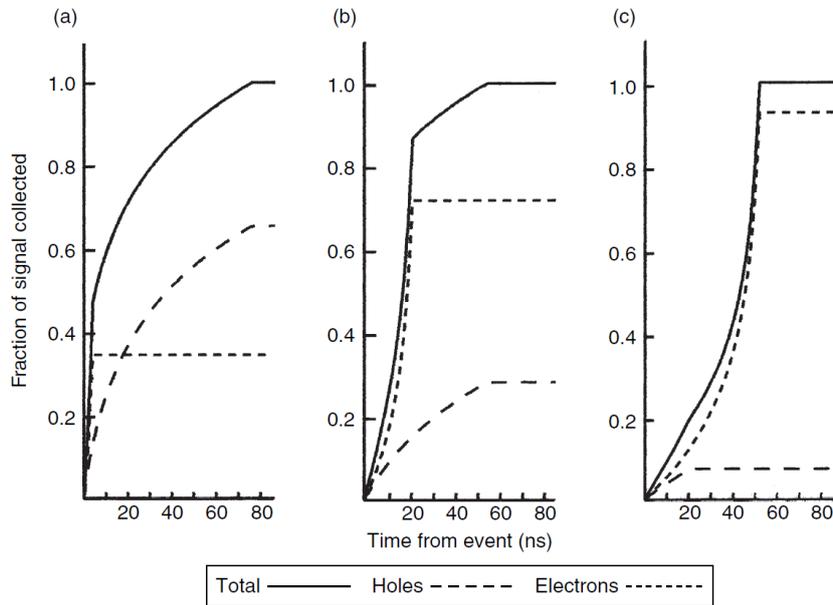


Figura 2.14. Formas de borde del impulso generado en un detector coaxial de tipo n para interacciones en diferentes localizaciones: (a) cerca del núcleo central; (b) punto medio entre el núcleo interno y la superficie externa; (c) cerca de la parte exterior. (Gilmore 2008)

Puesto que la electrónica del detector para generar una señal temporal depende del tiempo de subida del impulso (*rise time*, en inglés), existe una incertidumbre entre el instante preciso en el que se produce la interacción de la radiación gamma en el detector y la aparición de la señal eléctrica. Se considera que el tiempo de subida se inicia desde que el impulso pasa del 10 % hasta que alcanza al 90% de su amplitud final. Este factor no es importante a menos que se realicen mediciones de fuentes cuya probabilidad de generar eventos en coincidencia sea elevada.

2.1.2.5 Interacciones en el detector

En la Sección 2.1.1 se han enumerado las principales interacciones de la radiación gamma con la materia y cómo estas resultan en la transferencia de energía a electrones, o, en el caso de producción de pares a un electrón y a un positrón. Si se compara el intervalo de energía de estas partículas individuales (desde unos pocos keV a varios MeV) con la energía necesaria para crear un par electrón-hueco en el germanio (2.96 keV), se llega a la conclusión de que los electrones primarios crearán a su vez más pares electrón-hueco a medida que se vayan dispersando por el material del detector.

Si se multiplica el número esperado de pares electrón-hueco (descrito en la Expresión 2.15) por la carga de un electrón, se puede calcular un valor estimado de la carga creada en el detector. Son estos electrones secundarios y sus respectivos huecos los que deben ser recogidos para formar la señal eléctrica del detector.

El modo en el que la radiación gamma interactúa en el detector determina la amplitud de la señal para cada emisión gamma en particular, que depende de la energía del fotón, el número atómico del átomo absorbente y, para los eventos Compton, el ángulo entre la radiación gamma incidente y la dispersa. Teniendo en cuenta que en la mayoría de los casos una sola interacción no absorberá completamente la radiación gamma, la localización en la que se produce la interacción dentro del detector cobra especial importancia y, por tanto, el tamaño del detector también pasa a ser un aspecto que considerar según la aplicación a la que esté destinado (Gilmore 2008).

En un detector lo suficientemente grande para que la radiación secundaria no escape al volumen de detección, el espectro obtenido consistiría en picos individuales (cada uno correspondiente a una emisión gamma), pues toda la energía de la radiación gamma se recuperaría al recolectar todos los electrones (tanto los producidos por efecto fotoeléctrico como los secundarios).

En el caso opuesto, con un detector extremadamente pequeño en el que únicamente pudiese producirse una interacción, solo las interacciones fotoeléctricas producirían absorciones completas. Los eventos Compton crearían electrones con una fracción de la energía del fotón incidente y la producción de pares únicamente podría crear picos de escape doble para fotones incidentes con energías superiores a 1.022 MeV (localizados a 1.022 MeV por debajo de la energía del fotopico) y ninguno de escape simple, pues ambos fotones de 511 keV escaparían del detector y su energía se perdería (Gilmore 2008).

En un detector “real” se tendría una situación intermedia, aunque más cercana a la del detector pequeño, con deposiciones de energía tanto completas como parciales (Figura 2.15 y Figura 2.16). En una situación real los espectros tienen una forma más compleja. La deposición de energía de electrones para fotones incidentes de energía media-baja (< 1.022 MeV) daría lugar a un espectro compuesto por un continuo Compton y los fotopicos de absorción completa.

Para energías medias, pueden producirse dispersiones Compton múltiples, cada una de las cuales absorbe un poco más de la energía del fotón antes de que escape del detector. En este caso, si el evento inicial se hubiese producido cerca del borde Compton, la energía extra absorbida podría registrarse entre el borde Compton y el pico de absorción total (Gilmore 2008).

Fotones con energía superior a 1.022 MeV que interaccionen mediante producción de pares, si tras la aniquilación de positrones solo escapase uno de los dos fotones de 511 keV, se registraría en el espectro un pico de escape simple a 511 keV por debajo de la energía de absorción completa. En el caso de que escapasen los dos fotones se registraría

un pico de escape doble. Por otro lado, estos fotones de 511 keV podrían ser parcialmente absorbidos mediante eventos Compton registrándose cuentas a lo largo del espectro y por debajo de la energía del fotón incidente.

Pueden aparecer también picos adicionales resultado de sumas por coincidencias, o un continuo (a parte del fondo ambiental) relacionado con coincidencias aleatorias conocido como *pile-up*.

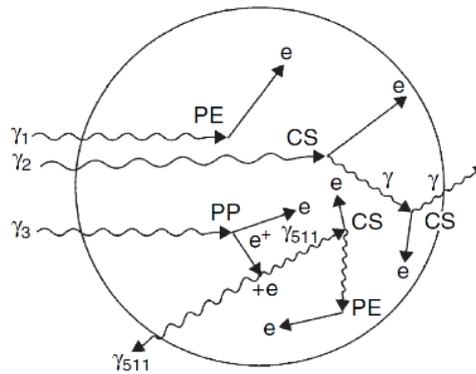


Figura 2.15. Posibles interacciones en un detector “real”. PE, efecto fotoeléctrico; CS, evento Compton; PP, producción de pares (Gilmore 2008)

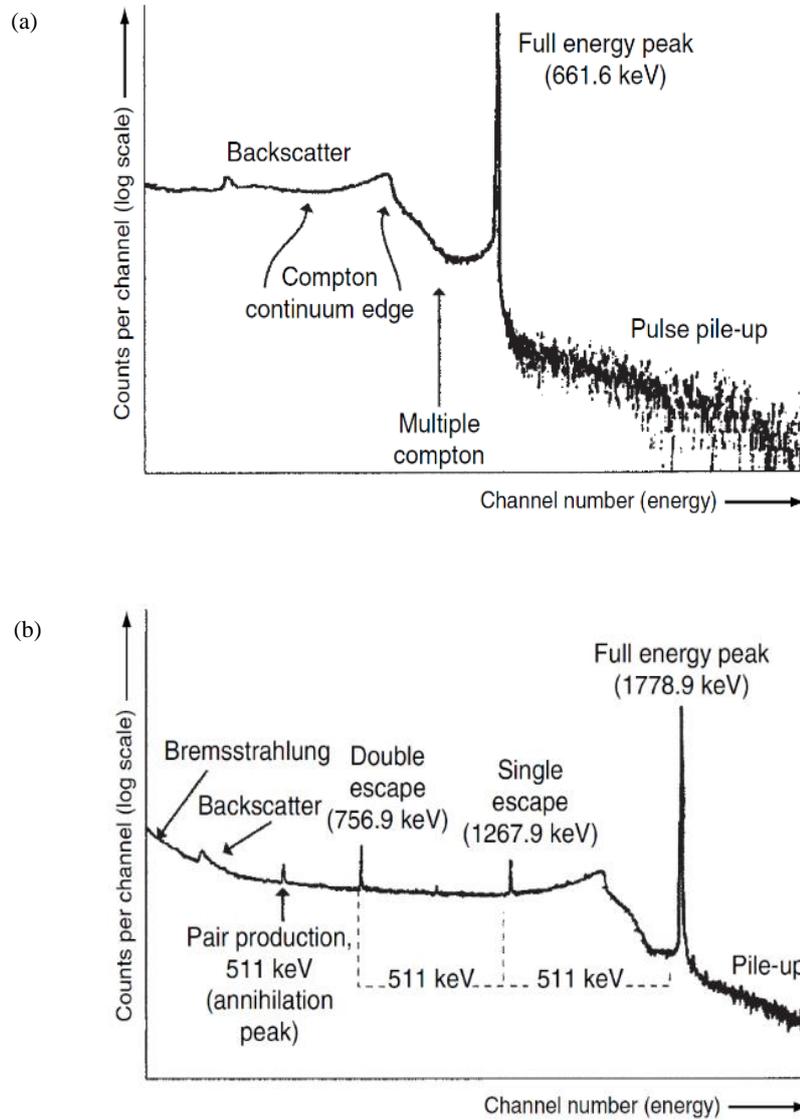


Figura 2.16. (a) y (b) Ejemplo ilustrando las características de un espectro de ^{137}Cs y ^{28}Al , respectivamente (Gilmore 2008)

2.1.3 Propiedades generales de los detectores de radiación

La respuesta de un detector de espectrometría gamma es, en esencia, una carga eléctrica proporcional a la cantidad de energía absorbida, debida a la interacción de la radiación gamma. La función del conjunto de componentes electrónicos que conforman el sistema es la de registrar la carga y el voltaje producidos, medirla, clasificarla y almacenar la información extraída. La carga eléctrica generada resultado de la interacción gamma es tratada por el preamplificador, el cual la transforma en un impulso. A continuación, el amplificador lineal modifica la forma del impulso y aumenta su altura. El analizador multicanal (MCA, *Multichannel Analyser*) discrimina y clasifica los impulsos por su amplitud (voltaje) y cuenta el número de impulsos que se generan para cada intervalo de amplitud.

En cada etapa, el impulso que se genera es diferente y sus características principales, así como el ruido electrónico asociado a cada etapa, afecta a la calibración en energía del MCA, a la resolución en energía del sistema, al tiempo muerto del sistema, a la probabilidad de que aparezcan picos adicionales resultado de eventos registrados en coincidencia y, en última instancia, a la eficiencia de detección del sistema.

2.1.3.1 Calibración en energía

La calibración en energía de los detectores de radiación consiste en establecer una relación entre los canales de un analizador multicanal (MCA), en los que se registran los diferentes eventos, y por tanto en donde aparecen los foto-picos, con su energía correspondiente. Los canales que componen el MCA representan filtros paso de banda que discriminan en función de la amplitud del impulso (Figura 2.17 a) y los clasifica. Cuenta el número de impulsos que se generan para cada intervalo de amplitud y genera un histograma de cuentas frente a canales (Figura 2.17 b). Cada canal representa un intervalo de energía (amplitud del impulso de entrada al MCA).

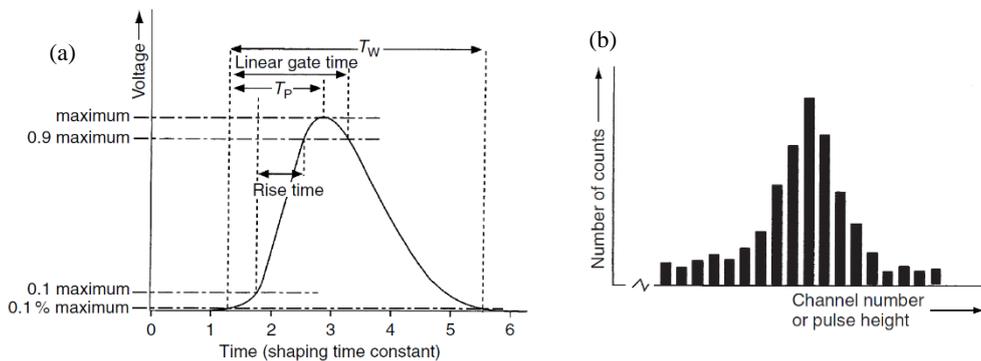


Figura 2.17. (a) Impulso de entrada al MCA, forma y tiempos característicos; (b) Histograma cuentas frente a canales. T_p , tiempo en alcanzar el pico; T_w , ancho de impulso (Gilmore 2008)

El procedimiento estándar consiste en medir fuentes patrón gamma en las que la energía es conocida y relacionando cada foto-pico del espectro con la energía correspondiente (canal donde aparece según la discriminación paso de banda realizada). Es conveniente utilizar radionúclidos con emisiones gammas que cubran un amplio intervalo energético o bien un conjunto de varios radionúclidos diferentes. Generalmente, la relación canal-energía que se establece es lineal o casi lineal y con una relación aproximada de 0.25 – 0.3 keV/canal.

El software GammaVision (ORTEC) por ejemplo, utiliza la siguiente expresión para relacionar energía y canal:

$$E = a_1 + a_2C + a_3C^2 \qquad \text{Expresión 2.20}$$

donde E es la energía, a_i coeficientes de ajuste y C es el número de canal.

2.1.3.2 Resolución en energía

La resolución en energía es una característica intrínseca del detector que determina su capacidad para distinguir entre dos interacciones con energías muy cercanas. Está definido por un parámetro que representa el ancho del foto-pico a la mitad de su altura máxima, conocido como FWHM (*Full Width at Half Maximum*) y expresado comúnmente en keV.

Este parámetro es especialmente importante, pues a mejor resolución más nivel de detalle tendrá el espectro obtenido. Tiene dos implicaciones principales:

- Una mejor resolución en energía facilita la identificación de eventos cuya energía es muy cercana, es decir, permite diferenciar picos cercanos en el espectro (Figura 2.18 y Figura 2.19).

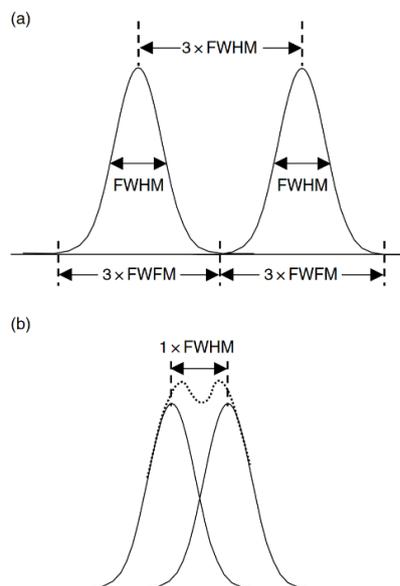


Figura 2.18. Influencia del FWHM en la discriminación entre energías muy cercanas: (a) centroides con una separación $>3 \times \text{FWHM}$ no deberían suponer ningún problema; (b) centroides con una separación $1 \times \text{FWHM}$, requerirían programas de deconvolución. (Gilmore 2008)

- En segundo lugar, una buena resolución permite diferenciar picos con un bajo número de cuentas sobre el fondo al agrupar las cuentas pertenecientes a un mismo evento y estrechando el pico.

En una situación ideal, cada fotón incidente de una misma energía daría lugar a una cuenta en el mismo canal. Sin embargo, esto no es así, los picos se extienden a lo largo de varios canales, siendo el valor central el que identifica la energía del fotón. Esto implica que un mismo evento quede registrado en un intervalo de canales en lugar de en uno solo. Este fenómeno se debe principalmente a las fluctuaciones estadísticas en el número de portadores de carga que se generan al producirse una interacción y en su posterior recolección, así como al ruido electrónico del sistema de detección. Matemáticamente la incertidumbre global asociada al ancho del pico (W_T) puede expresarse del siguiente modo (Debertin y Helmer 1988; Gilmore 2008):

$$(W_T)^2 = (W_I)^2 + (W_P)^2 + (W_C)^2 + (W_E)^2 \quad \text{Expresión 2.21}$$

El término W_I representa la incertidumbre en la energía de la radiación gamma y es inversamente proporcional al tiempo de vida media de sus niveles energéticos. Sin embargo, este factor puede ser despreciado frente al resto, encontrándose varios órdenes de magnitud por debajo.

El término W_p representa la incertidumbre asociada al número de pares electrón-hueco que se crean (n), cuya definición se presentó en la Expresión 2.15. El valor de n en realidad es un valor medio, pues depende de la energía requerida para crear un par electrón-hueco, $\varepsilon = 2.96 \text{ eV}$, que a su vez también es un valor medio. El número real depende del nivel energético al que el electrón es promovido en la banda de conducción. Así pues, existe una incertidumbre asociada a n que conduce a una distribución en la altura de los pulsos y finalmente a extender el ancho de los picos en el espectro.

Aunque este proceso teóricamente sigue una distribución de Poisson, se ha comprobado que en la práctica no es exactamente así. Dicha distribución sería válida si la creación de cada par electrón-hueco fuese independiente. Sin embargo, este proceso puede alterar la distribución de los electrones dentro de la estructura cristalina del material y por tanto la probabilidad de que se cree un nuevo par. La expresión para calcular W_p queda como sigue:

$$(W_p)^2 = (2.35)^2 F \varepsilon E \quad \text{Expresión 2.22}$$

con F el factor de Fano (ratio de la varianza observada en el número de pares electrón-hueco creados en una interacción entre la varianza teórica para un proceso de Poisson), ε la energía requerida para crear un par electrón-hueco (2.96 eV) y E la energía del fotón incidente. Este parámetro es el principal causante de que los detectores de Ge tengan mejor resolución que los de Si y Na, pues ambos tienen valores de F y ε superiores, incrementando así el término W_p .

W_c hace referencia a la incertidumbre producida por las variaciones en la recolección de los portadores de carga, debida principalmente a impurezas e imperfecciones del cristal que en última instancia pueden crear trampas que afectan a su movimiento. La recolección incompleta de portadores de carga hace que los que se pierdan no contribuyan a la altura del impulso de salida del amplificador, moviendo las cuentas desde el centro de la distribución Gaussiana hacia los canales inferiores y produciendo una cola en el lado de baja energía. El estudio de este término no puede llevarse a cabo fácilmente a partir de expresiones matemáticas, sino que requiere realizarse de manera experimental. Este proceso lleva asociado además más fuentes de incertidumbre. Sin embargo, los resultados parecen sugerir que su relación con la energía es lineal, $W_c = cE$, siendo c la constante de proporcionalidad (Gilmore 2008).

W_E es la contribución del ruido electrónico del detector y el resto de instrumentación que forman el sistema (preamplificador, amplificador y multicanal, principalmente). El componente más sensible en este caso es el acoplamiento detector-preamplificador; cualquier incertidumbre aquí se multiplica en el amplificador. El ruido electrónico es independiente de la amplitud del impulso, lo que implica que su efecto es, en proporción, mayor para pulsos pequeños.

La resolución en energía del detector condiciona el detalle del espectro final. En la Figura 2.19, se muestran dos espectros equivalentes obtenidos por un detector de Ge y por uno

de NaI. Puede apreciarse cómo la menor resolución de este último únicamente muestra los picos principales, conteniendo a su vez al resto de picos de menor contaje y, por tanto, enmascarando la información que proporcionarían.

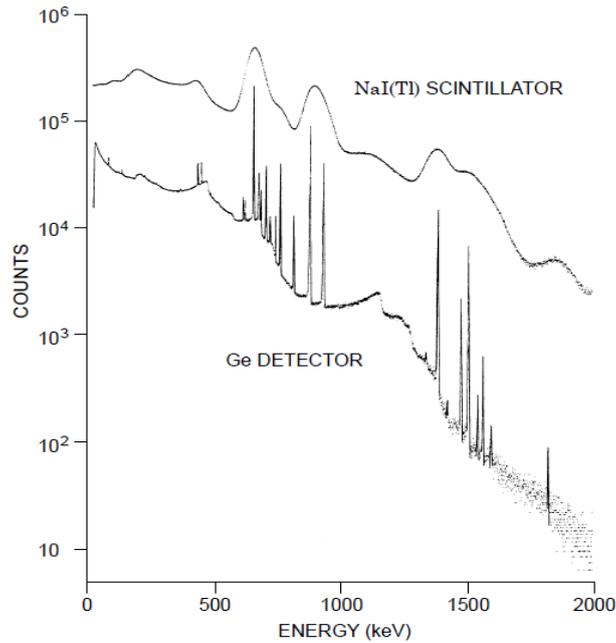


Figura 2.19. Resolución de un espectro obtenido con una detector de semiconductor de Ge y con uno de centelleo de NaI (Knoll 2000)

La calibración en energía y la obtención de la expresión que relaciona la resolución (FWHM) con la energía (que a su vez tiene su correspondencia en el multicanal) se realiza conjuntamente. Este proceso difiere según el programa que se utilice, pues existen diversas aproximaciones para calcular dicha expresión (Tabla 2-1).

Tabla 2-1. Expresiones comunes para ajustar la resolución en función de la energía

Tipo de ajuste	Ecuación
Lineal	$a + bE$
Cuadrática	$a + bE + cE^2$
Genie 2000	$a + b\sqrt{E}$
Debertin y Helmer 1988	$\sqrt{a + b^2E}$
Gilmore 2008	$\sqrt{a^2 + b^2E + c^2E^2}$

El programa GammaVision (ORTEC) ajusta el FWHM con la energía en dos pasos. En primer lugar, del mismo modo que con la calibración en energía (conjuntamente), relaciona el FWHM con el número de canal (F) para posteriormente utilizarla para obtener la expresión en función de la energía, $F(e)$.

$$F = b_1 + b_2C + b_3C^2 \quad \text{Expresión 2.23}$$

$$F(e) = F(c)(a_2 + a_3C) \quad \text{Expresión 2.24}$$

con b_i siendo los coeficientes de ajuste y $F(c)$ el FWHM en canales para el canal C .

2.1.3.3 Calibración en eficiencia

La eficiencia de detección de los sistemas de espectrometría gamma puede diferenciarse en eficiencia intrínseca (ϵ_{int}) y eficiencia absoluta (ϵ_{abs}). La eficiencia absoluta se define como:

$$\epsilon_{abs} = \frac{N^{\circ} \text{ de pulsos registrados}}{N^{\circ} \text{ de fotones emitidos por la fuente}} \quad \text{Expresión 2.25}$$

y depende de las propiedades del detector y del ángulo sólido entre la fuente y el detector.

La eficiencia intrínseca se define como:

$$\epsilon_{int} = \frac{N^{\circ} \text{ de pulsos registrados}}{N^{\circ} \text{ de fotones que inciden en el detector}} \quad \text{Expresión 2.26}$$

y no depende del ángulo sólido entre ambos como un factor implícito.

Ambas eficiencias están relacionadas, en el caso de fuentes isotrópicas, por $\epsilon_{int} = \epsilon_{abs} \cdot (4\pi/\Omega)$, donde Ω es el ángulo sólido entre la fuente y el detector (Knoll 2000). Generalmente, la eficiencia absoluta, se divide en otras dos: eficiencia absoluta de pico (ϵ_{FEP}) y eficiencia absoluta total (ϵ_T).

La eficiencia absoluta de pico considera únicamente el número de fotones que depositan toda su energía en el volumen activo del detector, y que por tanto generaría un foto-pico en su energía característica, del total de fotones emitidos por la fuente. Experimentalmente, la eficiencia absoluta de pico (para cada energía particular) se calcula mediante fuentes patrón con actividades certificadas que emitan fotones cubriendo un amplio intervalo de energía.

$$\varepsilon_{FEP} = \frac{N(E)}{A \cdot I_{\gamma}(E) \cdot t} \quad \text{Expresión 2.27}$$

donde $N(E)$ son las cuentas netas acumuladas en el foto-pico (para una energía determinada) durante la medición, A es la actividad de la fuente (Bq), $I_{\gamma}(E)$ es la probabilidad de emisión de un fotón de energía E y t es el tiempo de medición (s).

La eficiencia absoluta total tiene en cuenta todas las interacciones en el volumen activo del detector y no únicamente aquellas en las que se deposita toda la energía del fotón. Es decir, registra todos los pulsos que generan el espectro global, ya sean del foto-pico o del continuo Compton. Esta eficiencia cobra especial importancia para calcular los factores de corrección por pico suma en aquellos radionúclidos con emisión de fotones en cascada.

2.1.3.4 Tiempo muerto

En los sistemas de detección existe una separación temporal mínima para poder procesar y almacenar un evento conocida como tiempo muerto. Es decir, se requiere un lapso mínimo para poder distinguir entre dos impulsos generados de manera consecutiva. Mientras, el sistema no puede procesar más eventos, por lo que un segundo evento quedaría sin registrar y se perdería. El tiempo muerto es una característica intrínseca del sistema detector y de su electrónica analógica-digital asociada con la cadena de medida.

Por ejemplo, debido a la naturaleza aleatoria de los procesos de desintegración radiactiva, el tiempo entre dos desintegraciones consecutivas no es constante, por lo que siempre hay una probabilidad de que ocurran dos desintegraciones consecutivas que se registran como una sola si estas se producen con una separación temporal inferior al tiempo muerto (Knoll 2000). Estas pérdidas por tiempo muerto pueden llegar a ser severas en condiciones de alta tasa de contaje, por lo que cualquier medición precisa realizada en estas condiciones debe incluir una corrección para tener en cuenta estas pérdidas (ICRU 1994).

A grandes rasgos, existen dos situaciones para estudiar el comportamiento del tiempo muerto, ya sea un sistema no extensible o un sistema extensible (Figura 2.20). En un sistema no extensible, los eventos que ocurren durante el tiempo muerto no se registran y se pierden sin afectar al comportamiento del detector. En uno extensible, estos eventos, aunque no se registren como cuentas, sí que afectan al detector ampliando el tiempo muerto por un nuevo periodo. Esto puede producir en última instancia que, para fuentes muy activas, el detector pueda llegar a saturar y dejar de medir al hacer que el tiempo muerto aumente.

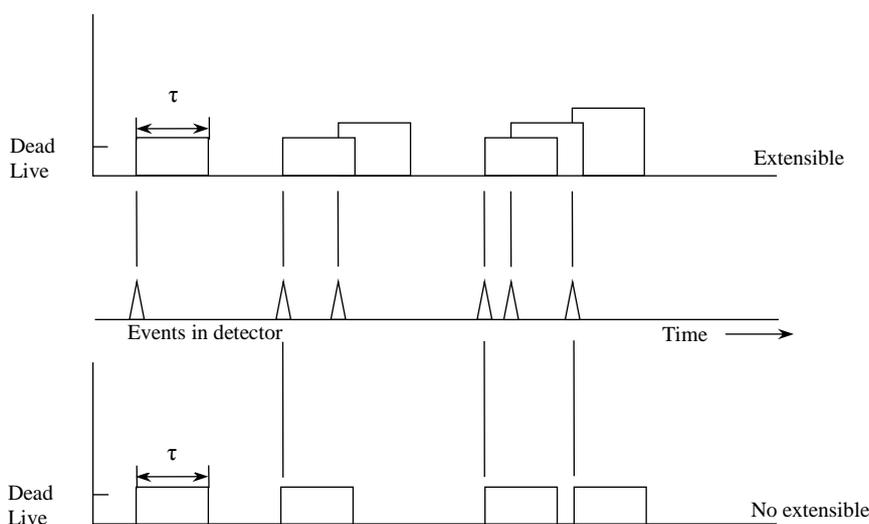


Figura 2.20. Modelos de comportamiento del tiempo muerto para detectores de radiación (Knoll 2000)

En este esquema se presenta un caso en el que se producen seis eventos aleatorios espaciados en el tiempo (figura central), siendo τ el tiempo muerto tras cada evento. Aquellos eventos que ocurren durante el tiempo muerto se pierden independientemente del comportamiento del detector.

La parte inferior se corresponde con un sistema no extensible, y registraría cuatro de los seis eventos. En esta situación, la fracción de tiempo en la que el sistema no puede procesar eventos es $R_m \tau$, siendo R_m la tasa de contaje medida en el analizador multicanal (MCA). El tiempo, en cada segundo, durante el cual el sistema está disponible, i.e. puede aceptar pulsos, es $1 - R_m \tau$. La tasa de interacción real (R_0) y la tasa de contaje medida (R_m) entonces quedan como sigue:

$$R_0 = \frac{R_m}{(1 - R_m \tau)} \quad \text{Expresión 2.28}$$

$$R_m = \frac{R_0}{(1 + R_0 \tau)} \quad \text{Expresión 2.29}$$

La parte superior de la Figura 2.20 representa el comportamiento de un sistema extensible, en el que cada nuevo evento que ocurre durante el tiempo muerto, además de no registrarse lo vuelve a extender por otro periodo de τ s, registrándose solo tres de los seis eventos. En esta situación la Expresión 2.29 ya no sería válida, pues los tiempos muertos ya no siguen una extensión fija. La aparición de un nuevo evento durante el tiempo muerto sigue una distribución de Poisson, de modo que la tasa de interacción real en este caso es:

$$R_m = R_0 e^{-R_0 \tau} \quad \text{Expresión 2.30}$$

No obstante, para tasas de conteo bajas, en las que el efecto de apilamiento (*pile-up*) es despreciable, la Expresión 2.30 podría aproximarse a la Expresión 2.29.

A efectos prácticos, el tiempo muerto es la suma de otros tres, definidos como (Gilmore 2008):

- T_{LG} : tiempo que tarda el SCA (*Single-Channel Analyzer*) en reconocer un evento y poder registrarlo (Tiempo de puerta lineal).
- T_D : tiempo que tarda el ADC (*analogue-to-digital converter*) en digitalizar la señal.
- T_S : tiempo de almacenamiento en memoria, también conocido como tiempo de ciclo de memoria.

La Figura 2.21 muestra un esquema de los tiempos involucrados en la creación de un impulso, su digitalización y su almacenamiento.

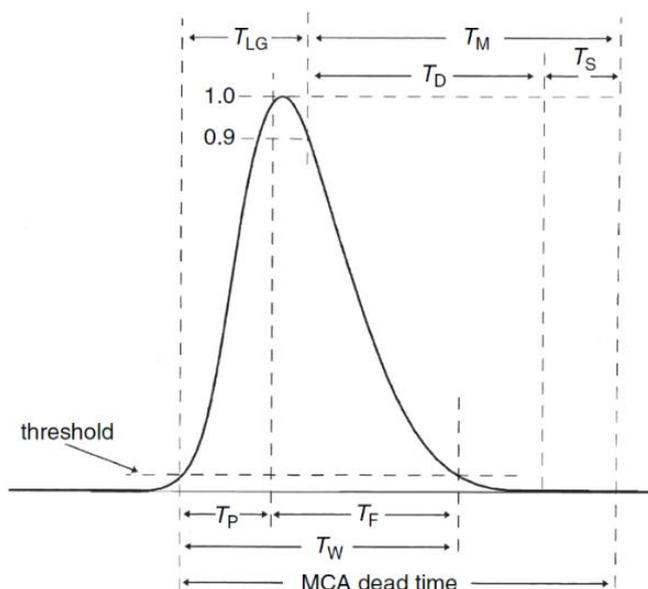


Figura 2.21. Especificación de tiempos de un impulso semi-Gaussiano y su digitalización. T_P , tiempo en alcanzar el pico; T_{LG} , tiempo de puerta lineal; T_F , tiempo de caída del pico; T_W , ancho de impulso; T_D , tiempo de digitalización; T_S , almacenamiento en memoria; $T_M = T_D + T_S$ (Gilmore 2008)

2.1.3.5 Efecto de suma por coincidencia

Muchos radionúclidos emiten dos o más fotones en la misma desintegración (emisión en cascada). Cuando esto sucede, puede darse la situación en la que dichos fotones interaccionen casi simultáneamente en el detector. La diferencia temporal de emisión de dichos fotones (del orden de picosegundos) es normalmente inferior al tiempo de resolución del detector, definido como el tiempo mínimo necesario para que el sistema pueda diferenciar dos eventos como dos pulsos independientes. Existe por tanto una muy alta probabilidad de que el detector no sea capaz de diferenciarlos y se registre un único evento con una energía igual a la suma de las energías depositadas individualmente. Es decir, se registraría un impulso cuya amplitud sería la suma de los dos por separado (Debertin 1991). Este fenómeno recibe el nombre de efecto de suma por coincidencia (*True Coincidence Summing Effect*). La suma por coincidencia es independiente de la actividad de la fuente medida y es proporcional a la eficiencia de detección de cada emisión gamma en coincidencia. La corrección de este efecto tiene una mayor importancia para detectores de alta eficiencia y geometrías de medición cercanas, como

las que se suelen realizar en mediciones de muestras ambientales de baja actividad (Montgomery y Montgomery 1995)

El efecto de suma por coincidencia puede producirse mediante dos mecanismos diferentes, conocidos como *Summing In* y *Summing Out*. En la Figura 2.22 se muestra un esquema de desintegración sencillo.

- *Summing Out*: en este tipo de evento dos o más fotones depositan su energía en el detector simultáneamente (E_1 y E_2 en la Figura 2.22). Al no poder diferenciarlas, se genera una cuenta con una energía igual a la suma de ambas, lo que disminuye las cuentas que deberían registrarse en cada una de las energías individualmente. Así, la eficiencia de pico aparente para E_1 y E_2 es inferior a la real, lo que llevará a una sobreestimación de la actividad.
- *Summing In*: este evento es similar al anterior, pero en este caso se produce cuando la emisión gamma de interés (E_3) es igual a la suma de otras dos emisiones de su mismo esquema de desintegración (Figura 2.22). Ahora la suma de E_1 y E_2 producirá un exceso de cuentas en E_3 , lo que aumentará su eficiencia de pico aparente y por tanto subestimando su actividad.

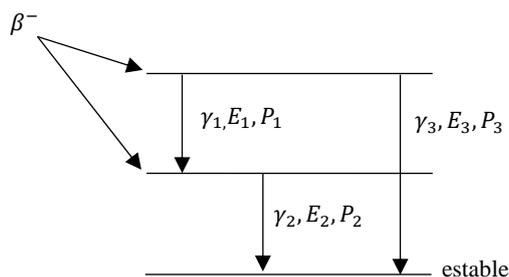


Figura 2.22. Esquema de desintegración para ejemplificar el efecto de suma por coincidencia (Debertin 1991)

2.1.4 Caracterización y calibrado en eficiencia de detectores HPGe

En la actualidad, los detectores de germanio de alta pureza se emplean comúnmente en los laboratorios de radiactividad ambiental para caracterizar la actividad y los radioisótopos en muestras de diversa geometría, composición y densidad. Cada una de estas características puede afectar a la eficiencia de detección del sistema de un modo diferente, por lo que antes de realizar mediciones es necesario calibrar el detector para unas condiciones de medición concretas (Gilmore 2008). La calibración en eficiencia del detector puede realizarse mediante diferentes técnicas, agrupadas principalmente en tres categorías: procedimientos experimentales o empíricos, método de transferencia y métodos computacionales (simulación).

2.1.4.1 *Métodos experimentales*

Los procedimientos experimentales pueden resultar complejos a nivel logístico, pues se requiere preparar muestras con fuentes patrón (cubriendo el mismo intervalo energético) contenidas en la misma matriz (composición y densidad) y geometría que la muestra a medir. La curva de eficiencia de estas fuentes patrón se obtiene tras medirlas, en el mismo detector que se vaya a emplear posteriormente, y se extrapola a la nueva muestra (Vukanac et al. 2008). Este método puede, además, presentar problemas al distribuir homogéneamente la muestra en matrices complejas, existiendo también la posibilidad de cometer errores durante la preparación que conlleven una pérdida en su trazabilidad. Otro inconveniente del método empírico es la excesiva generación de residuos radiactivos, con los consiguientes problemas de eliminación, especialmente si el número de muestras y matrices es elevado.

2.1.4.2 *Método de transferencia de eficiencias*

El método de transferencia de eficiencias es una técnica empleada para calibrar geometrías cuando no es posible medirlas directamente. El método original desarrollado por (Moens et al. 1981) se basa en que la relación entre la eficiencia de pico (*Full Energy Peak Efficiency*, FEPE) y la eficiencia total (para una energía en particular) es independiente tanto de la geometría como de la composición y densidad de la matriz de medida, por lo que:

$$\frac{\varepsilon_{FEPm}(E)}{\varepsilon_{Tm}(E)} = \frac{\varepsilon_{FEPp}(E)}{\varepsilon_{Tp}(E)} \quad \text{Expresión 2.31}$$

donde ε_{FEP} y ε_T son las eficiencias de pico y total, respectivamente, el subíndice m hace referencia a la muestra y p al patrón. Este método resulta útil al aplicarse a medidas ambientales (Gilmore 2008) y se ha probado tanto de manera experimental como mediante simulaciones por Monte Carlo por autores como (Erten, Aksoyoğlu, y Göktürk 1988; Vidmar, Çelik, et al. 2010; Vidmar y Likar 2004). En un principio, la aplicación de este método incluía únicamente fuentes puntuales y un modelo analítico simplificado de detector de geometría puntual (Notea 1971), y posteriormente se mejoró para considerar modelos de detectores más realistas y muestras volumétricas, integrando simulaciones de Monte Carlo en el análisis de dichos sistemas (Vidmar 2005; Vidmar, Vodenik y Nečemer 2010).

El método de transferencia de eficiencias puede emplearse sin necesidad de disponer de las dimensiones reales del detector, pues atendiendo a la Expresión 2.31 el factor de transferencia se obtiene a partir de la relación de eficiencias calculadas bajo unas condiciones en particular, eliminando las incertidumbres asociadas a la geometría del detector. No obstante, la eficacia de este método depende también de la similitud entre la geometría patrón y la geometría de la muestra a medir, obteniéndose resultados

satisfactorios cuando no hay diferencias muy importantes (Lepy et al. 2001; Sima y Arnold 2002; Vidmar, Vodenik, et al. 2010).

2.1.4.3 Métodos de simulación Monte Carlo

Una buena definición de los métodos de Monte Carlo se puede encontrar en la referencia (Halton 1970), "El método Monte Carlo se define como la representación de la solución de un problema como un parámetro de una población hipotética, y utilizando una secuencia aleatoria de números para construir una muestra de la población, a partir de la cual se pueden hacer estimaciones estadísticas del parámetro obtenido". En otras palabras, los métodos de Monte Carlo proporcionan soluciones aproximadas a problemas realizando experimentos de muestreo estadístico con números aleatorios.

La utilización de los métodos de Monte Carlo para modelizar procesos físicos permite la evaluación de sistemas complejos en su conjunto, como resolver el transporte de las partículas emitidas por una fuente radiactiva y su interacción con un detector. Las propiedades matemáticas más importantes de los métodos de Monte Carlo se describen por la ley de los grandes números y por el teorema central del límite. La ley de los grandes números establece que una estimación de Monte Carlo de la integral de una función, usando 'n' números aleatorios, converge al valor real de la integral para un número elevado de 'n' (James 1980):

$$\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n f(n_i) \rightarrow \frac{1}{b-a} \int_a^b f(x) dx \quad \text{Expresión 2.32}$$

donde $f(n_i)$ es la función a integrar y n_i es un conjunto de n números aleatorios distribuidos uniformemente dentro de los límites $x = a$ y $x = b$. El lado izquierdo de la Expresión 2.32 representa la estimación de Monte Carlo de la integral y el lado derecho de la integral real de la función entre los puntos a y b. Esta ley es particularmente importante ya que determina los resultados de los cálculos de Monte Carlo como estimaciones consistentes. Por lo tanto, dos cálculos de Monte Carlo idénticos deberían dar como resultado la misma estimación (considerando su incertidumbre estadística).

El teorema central del límite describe cómo las estimaciones de Monte Carlo se acercan al valor real de la integral (James 1980). De acuerdo con el teorema, la estimación Monte Carlo sigue una distribución normal alrededor del valor real de la integral cuando 'n' es grande. La desviación típica del cálculo de Monte Carlo viene dada por la raíz cuadrada de la variación de la función dividida por la raíz cuadrada de 'n'.

La aplicación del método Monte Carlo a la resolución de un problema de espectrometría gamma simula estadísticamente los procesos físicos involucrados entre la muestra, el sistema detector y el medio que lo rodea. El código de simulación sigue cada fotón desde su aparición hasta que se produce una interacción, dando lugar a partículas secundarias que también son seguidas (normalmente). Este proceso termina una vez la partícula es

absorbida habiendo transferido toda su energía o abandona el volumen de control que establece los límites físicos del problema. La energía depositada por aquellos fotones que interactúan mediante efecto fotoeléctrico es almacenada creando los diferentes foto-picos, junto con los procesos que contribuyan a la absorción total. La eficiencia de pico para una determinada energía se puede calcular como la ratio de las cuentas registradas en ese foto-pico entre los fotones reales emitidos por la fuente. De un modo análogo también puede obtenerse la eficiencia total para una determinada energía, solo que las cuentas a considerar son las registradas en todo el espectro energético.

El método Monte Carlo empezó a aplicarse a detectores de semiconductor por (De Castro y Levesque 1967; Wainio y Knoll 1966). En la actualidad existen códigos de Monte Carlo de carácter general, pensados para resolver problemas de transporte de partículas, como MCNP6 (Monte Carlo team 2013), GEANT4 (Agostinelli et al. 2003), PENELOPE (Salvat, Fernández-Varea, y Sempau 2011), FLUKA (Böhlen et al. 2014; Ferrari et al. 2005), EGS4 (Nelson, Hirayama, y Rogers 1985), entre otros. Por otro lado, también se han desarrollados códigos deterministas específicos para resolver problemas como la calibración en eficiencia y correcciones por pico suma y auto absorción como EFFTRAN (Vidmar 2005), GESPECOR (Sima, Arnold, y Dovlete 2001), ETNA (Piton et al. 2000), ANGLE (Jovanović et al. 1997) y DETEFF (Díaz y Vargas 2008) entre otros, o el software LABSOCS/ISOCS (Bronson y Venkataraman 2000; Kalb et al. 2000) que combina MCNP con un método matemático para la calibración en eficiencia.

2.1.4.4 Calibración en eficiencia y caracterización del detector mediante el método de Monte Carlo

A diferencia de los métodos analíticos y de transferencia, en los cuales se asumían simplificaciones en el modelo del sistema, la simulación Monte Carlo permite modelar dicho sistema con un elevado nivel de detalle y realismo. Por otro lado, y según el código empleado, es posible simular la desintegración completa de los radionúclidos y por tanto, el efecto de suma por coincidencia (Giubrone et al. 2016; Hauf et al. 2013; Hurtado, Garcia-Tenorio, y Garcia-Leon 2009). Este método permite realizar calibraciones en eficiencia complejas de un modo rápido y realista al simular cualquier geometría y matriz de medida, reduciendo así los residuos generados por el laboratorio en procedimientos experimentales.

No obstante, en comparación con el método de transferencia, en este caso es indispensable tener una caracterización geométrica precisa de la muestra y del detector. En este contexto, surge uno de los principales problemas de aplicar el método Monte Carlo, pues no siempre se dispone de las características geométricas del detector. Numerosos autores han concluido que las eficiencias obtenidas empleando directamente los parámetros geométricos proporcionados por el fabricante, difieren de la realidad (Huy 2010; Jurado Vargas y Guerra 2006). Parámetros como la capa inactiva, el volumen del detector o la distancia entre la ventana del detector y el cristal de germanio son de especial importancia en la cuantificación de la eficiencia del sistema (Chham et al., 2015;

García-Talavera et al., 2000; Hurtado et al., 2004; Peyres & García-Toraño, 2007; Ródenas et al., 2003). Otros estudios como el de (Maidana et al. 2016) profundiza en la comparación entre eficiencias experimentales y simuladas diferenciando zonas del cristal, en el que se observa cómo las mayores diferencias se localizan en los bordes del cristal, así como en las superficies pasivas. Resultados similares se presentaron también en (Aguayo et al. 2013; Utsunomiya et al. 2005).

(Gasparro et al. 2008) analizó el efecto de los bordes redondeados del cristal frente a bordes rectos, así como la inclinación del cristal sobre su eje longitudinal sobre la eficiencia del sistema. Dicho estudio determinó que la inclinación del detector no parecía tener consecuencias relevantes sobre la eficiencia. La forma de los bordes en cambio sí que tiene un efecto importante, concluyéndose que un modelo simplificado con los bordes rectos daría como resultado una sobreestimación de las eficiencias, lo que llevaría probablemente a obtener un espesor de la capa inactiva superior al real para contrarrestar este efecto. Este último efecto se estudia en la presente Tesis, en la Sección 3.4.1.2.

(Vargas et al. 2002) analizó el efecto del diámetro y la altura del cristal de germanio, la altura del núcleo interno y la distancia entre la ventana y el cristal en un detector coaxial de NaI. Determinó que variaciones de 3 mm en el diámetro del detector producía como resultado desviaciones de entre el 10% y el 20% en la eficiencia para altas energías, en función de la geometría de la fuente. El efecto de la altura del cristal resultó ser muy bajo, de alrededor del 1% para cambios de hasta 3 mm, teniendo en cuenta que únicamente se emplearon fuentes en geometría *top* y no envolventes como recipientes Marinelli, en las que el efecto podría ser mayor. El mismo cambio en la altura del núcleo interno produjo desviaciones del 10% aproximadamente a partir de 662 keV. Por último, 2 mm de diferencia en la distancia entre la ventana y el cristal dio como resultado desviaciones de entre el 1% (fuente puntual) y el 15% (fuentes extensas).

Como se ha explicado en la Sección 2.1.2, un detector tipo HPGe es un diodo fabricado a partir de un cristal de alta pureza de germanio. Para poder ser utilizado como detector de radiación ionizante, las superficies externas e internas son dopadas creando capas inactivas en las que no se recoge la energía depositada por la radiación (Eberth y Simpson 2008). El espesor de la capa inactiva tiene un efecto importante en la eficiencia de detección del foto-pico para energías bajas y medias debido a la gran atenuación que sufren al penetrar en el cristal de germanio (Clouvas et al. 1998; Ródenas, Martinavarro, y Rius 2000). Por otro lado, la relación eficiencia total a pico aumenta con el espesor de dicha capa (Dryak, Kovar, y Gudelis 2010).

El efecto total de la capa inactiva puede considerarse en dos términos diferentes (Campbell y McNelles 1974):

- La capa inactiva real, en la que no se recoge carga alguna y por tanto la energía depositada por los fotones al interactuar en esta zona ni genera pulsos ni contribuye al espectro obtenido a ningún nivel.
- La zona de transición o zona efectiva de capa inactiva en la que la interacción de fotones contribuye principalmente al continuo, pero no al foto-pico

Por tanto, la capa inactiva de germanio produce una disminución de la eficiencia debido a dos efectos diferentes, blindaje y la disminución del volumen activo del cristal (Ródenas et al. 2003).

En particular, el estudio de la influencia de la capa inactiva sobre la eficiencia del detector ha sido ampliamente analizado, principalmente para energías superiores a 60 keV (Dryak y Kovar 2006; Elanique et al. 2012; Hardy et al. 2002) obteniéndose valores optimizados de las capas inactivas que muestran diferencias que van desde aproximadamente el doble hasta uno o dos órdenes de magnitud. Otros autores como (Mohanty et al. 2008; Salgado, Conti, y Becker 2006) analizaron este parámetro para energías bajas, por debajo de los 60 keV, obteniendo también resultados similares a los anteriores. Trabajos como los desarrollados por (Courtine et al., 2008) y (Ashrafi, Likar, y Vidmar 1999) se centran en analizar la capa inactiva en función de la altura del cristal de germanio, obteniendo espesores no homogéneos. A la incertidumbre asociada a este parámetro hay que añadir que el espesor total de la capa inactiva varía a lo largo de la vida útil del detector y es el factor principal en la reducción de la eficiencia de detección en función del tiempo transcurrido. En particular, (Huy et al., 2007) registró cambios en el espesor de la capa inactiva pasando de 0.35 mm a 1.16 mm en un periodo de 9 años, junto con una caída de eficiencia de aproximadamente el 13% y en un estudio posterior (Huy, 2010) determinó una reducción de eficiencia del 18.5% para energías comprendidas entre 511 – 1332 keV tras 13 años de uso pasando de una capa inactiva inicial de 0.35 mm a una final de 1.46 mm.

No obstante, según el tipo de detector (tipo n o tipo p), los espesores de las capas inactivas externas e internas cambian. Así, en un detector de tipo n el espesor de la capa inactiva interna puede superar fácilmente 1 mm de espesor (un ejemplo del modelado de un detector de tipo n puede encontrarse en (Cabal et al. 2010). En estos casos, las fuentes gamma de baja energía no serían adecuadas para caracterizar esta capa muerta, pues serían atenuadas antes de alcanzarla. Empleando energías altas (generalmente por encima de 500 keV) sí que sería posible, aunque el efecto de este parámetro podría verse enmascarado por otros focos de incertidumbre como el del volumen del cristal de germanio (Chuong et al. 2016).

Por todo lo expuesto hasta ahora, el empleo del método Monte Carlo para realizar calibraciones en eficiencia pasa por realizar previamente una caracterización geométrica del detector. Este proceso generalmente se realiza modificando los principales parámetros geométricos y comparando las eficiencias simuladas con las experimentales empleando fuentes patrón, tanto puntuales (Andreotti et al. 2014; Blank et al. 2015), como volumétricas (Chham et al. 2015; Semkow et al. 2015) llegando a analizar también fuentes extensas (Sima et al. 2004). Otro aspecto a considerar es la composición y densidad de las matrices de medida, pues pueden surgir problemas relacionados con la auto absorción en el seno de la matriz, llegando a distorsionar las eficiencias obtenidas, en especial a energías por debajo de los 60 keV (García-Talavera et al. 2000; Jurado Vargas et al. 2002).

Para analizar la influencia del modelo de simulación empleado en la calibración en eficiencia, (Lepy et al. 2001) desarrolló una intercomparación en la que los participantes calibraron diferentes geometrías de medida a partir de las eficiencias experimentales obtenidas de fuentes puntuales y los principales parámetros del detector. Cada participante pudo optimizar aquellos parámetros desconocidos libremente empleando sus propios medios. Por lo tanto, el modelo final utilizado para realizar las calibraciones era diferente entre participantes, concluyendo que este factor podría ser el causante de las diferencias observadas en los resultados finales.

En otro ejercicio de intercomparación posterior (Vidmar et al. 2008), se decidió comparar los códigos de Monte Carlo más utilizados en espectrometría gamma. Sin embargo, a diferencia de la intercomparación anterior, los participantes disponían de todos los parámetros característicos necesarios para realizar el modelo del detector, limitando así las posibles diferencias que pudiese haber entre los modelos geométricos de cada participante. Los resultados mostraron desviaciones notables en las eficiencias (total y de pico), en particular para energías por debajo de 45 keV. Estos resultados fueron atribuidos principalmente al empleo de diferentes bases de datos para las secciones eficaces.

El método Monte Carlo se utiliza generalmente para caracterizar la geometría del detector, tal y como puede comprobarse en muchas de las referencias incluidas en esta sección. Además, existen métodos avanzados como el desarrollado por (Guerra et al. 2015) en el que se utiliza un algoritmo evolutivo para el ajuste de parámetros junto con el modelo de simulación por Monte Carlo desarrollado para calibrar el detector. De esta manera se busca optimizar los parámetros característicos del detector automáticamente y guiada por la inteligencia artificial que aporta el uso complementario del algoritmo evolutivo.

Puesto que la correcta caracterización de la capa inactiva puede verse afectada o enmascarada por diversos parámetros geométricos del detector, como la distancia entre la ventana del detector y el cristal de germanio, el espesor de la ventana o incluso las propias dimensiones del cristal, algunos autores recurren a las radiografías de alta resolución (Figura 2.23) para acotar dichos parámetros y reducir estas fuentes de incertidumbre. Diversos trabajos en los que se realizaron radiografías a los detectores, determinaron que las dimensiones principales del detector diferían de las especificadas por el fabricante en algunos casos, tales como las propias dimensiones del cristal (altura y diámetro), con diferencias de ~1 mm, o la distancia a la ventana, con diferencias de hasta ~2.5 mm. Otros parámetros del propio detector, como el radio del núcleo interno o su profundidad, en el caso de detectores coaxiales no pueden estimarse directamente con radiografías convencionales, pues las energías utilizadas generalmente no consiguen penetrar tanto en el cristal. Para ello es necesario utilizar fuentes más energéticas como

^{137}Cs , ^{192}Ir o ^{60}Co , con tiempos de exposición elevados en comparación con los utilizados en radiografías (Chuong et al. 2016; Dryak y Kovar 2006; Saraiva et al. 2016).

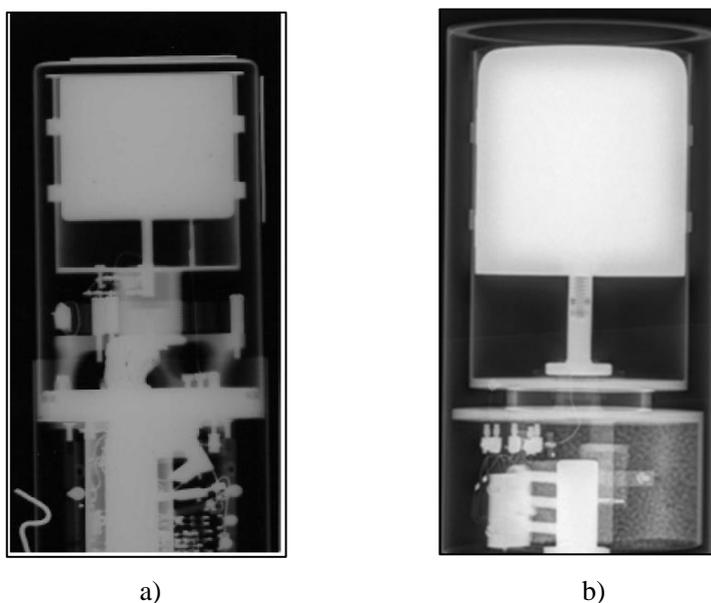


Figura 2.23. Radiografía de un detector HPGe. a) Driak & Kovar, 2006 b) Saraiva et al., 2016

Así como una radiografía puede ayudar a ajustar la geometría del detector, pero no el espesor de la capa inactiva existe una técnica alternativa que hace lo contrario. La Universidad de Salamanca ha desarrollado una técnica basada en el análisis de la respuesta eléctrica del cristal de germanio (SALSA, *Salamanca Lyso-based Scanning Array*) que permite aproximar las zonas inactivas del cristal en las que no se recogen suficientes impulsos (Hernández-Prieto et al. 2016; Hernández-Prieto y Quintana 2013). De este modo es posible caracterizar el volumen activo del cristal (Figura 2.24) para poder realizar un modelo más realista. Este método utiliza como elementos principales una fuente puntual de ^{22}Na , una gamma-cámara de alta resolución espacial y una plataforma mecánica que permite rotar el sistema alrededor del detector a caracterizar. Estos elementos, junto con la electrónica asociada, tienen por objeto obtener las señales eléctricas producidas en el detector, cada una de ellas asociada a un punto de interacción dentro del cristal. La fuente radiactiva utilizada genera dos fotones de 511 keV procedentes de la aniquilación de positrones emitidos en la desintegración del ^{22}Na con electrones adyacentes. La gamma-cámara, provista con tubos fotomultiplicadores PSPMT (*pixelated position sensitive photomultiplier tube*) se posiciona en frente de la fuente para detectar uno de los dos fotones de 511 keV emitidos. Su función es

proporcionar el punto de interacción del fotón en la gamma-cámara detectado en coincidencia con el otro que interacciona en el detector a caracterizar (dando lugar a una respuesta eléctrica o impulso característico relacionado con la posición en la que se ha producido). La dirección de emisión del fotón interactuando en el cristal estará dada por la línea recta definida por los dos puntos citados. Tras obtener la dirección de emisión, para determinar la posición exacta en la que el fotón interacciona en el cristal, la fuente de ^{22}Na junto con la gamma-cámara se rota 90° (se analizan dos configuraciones) alrededor del detector en donde se vuelve a obtener un conjunto de emisiones gamma en coincidencia con sus direcciones y respuestas eléctricas. La respuesta eléctrica asociada a cada trayectoria se corresponde con un punto de interacción desconocido en el detector. Para obtener este punto de interacción con precisión, deben encontrarse dos trayectorias, una en cada configuración, que definan el mismo punto de interacción en el detector. Para decidir qué dos trayectorias corresponden al mismo punto de interacción, es necesario comparar estadísticamente las dos respuestas eléctricas asociadas a cada una.

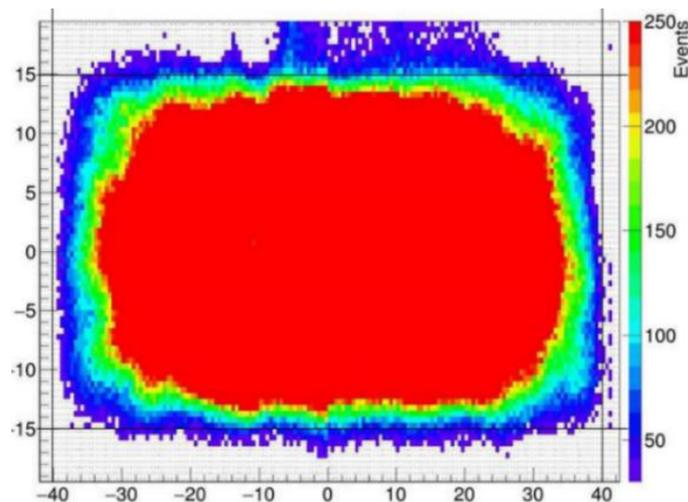


Figura 2.24. Respuesta eléctrica del cristal de Germanio del detector BEGe-5030

Este tipo de técnicas no son siempre viables, por lo que el proceso de caracterización del detector debe ser exhaustivo para tratar de optimizar por separado cada parámetro estudiando su efecto sobre la eficiencia del sistema. Una de las formas de reducir incertidumbres en ciertos parámetros es utilizar diferentes tipos de fuentes, tanto puntuales como volumétricas. En este último caso, conviene emplear fuentes volumétricas de diverso volumen y geometría, incluyendo muestras en posición top (justo encima de la ventana del detector) y envolventes (recipientes Marinelli). En el capítulo 3 se presenta una metodología de caracterización geométrica que incluye tres tipos de fuentes volumétrica y se estudia cómo afecta cada parámetro a su eficiencia. De

este modo, es posible reducir el número de parámetros que podrían quedarse sin analizar al no observarse ningún efecto sobre el resto de las geometrías.

Uno de los problemas que surge al realizar calibraciones en eficiencia es la necesidad de realizar correcciones debido al efecto de suma por coincidencia cuando las muestras a medir contienen radionúclidos que emiten fotones en cascada. La eficiencia de estos radionúclidos se ve fuertemente afectada y distorsionada por las coincidencias tanto de rayos gamma como de rayos X (Debertin y Schötzig 1979), lo que implica finalmente un cálculo erróneo de la actividad de la muestra analizada. Por tanto, es necesario calcular factores de corrección por pico suma (TSCFs) independientes para cada radionúclido y energía que produzca dicho efecto (De Felice et al. 2002). Autores como (Sinkko y Aaltonen 1985) elaboraron bases de datos para la obtención de factores de corrección por pico suma para radionúclidos emitiendo en cascada.

En el caso de fuentes puntuales, es posible calcular factores de corrección con un alto nivel de precisión mediante métodos analíticos que tienen en cuenta tanto el efecto *summing in* como el *summing out* (Schima y Hoppes 1983). Sin embargo, en el caso de fuentes volumétricas el cálculo no es trivial, aumentando considerablemente su complejidad debido principalmente a que la eficiencia, y por tanto el factor de corrección, depende de la posición del punto de emisión (Abbas 2001).

Por otro lado, las muestras ambientales suelen contener fuentes radiactivas de baja actividad, lo que requiere detectores HPGe con geometrías muestra-detector cercanas, maximizando la eficiencia del sistema. Sin embargo, esta configuración también aumenta el efecto de suma por coincidencia, pudiendo llegar fácilmente a errores del 15%, por lo que la consideración de los TSCFs es obligatoria en estas circunstancias (Daza et al. 2001; Debertin y Schötzig 1979; García-Talavera et al. 2001; Quintana y Fernandez 1995). Son muchos los factores que afectan a este fenómeno, como el tipo de fuente radiactiva, el esquema de desintegración, la correlación angular entre los fotones emitidos (García-Toraño, Pozuelo, y Salvat 2005; Muhlberger 2017), la geometría de la fuente, la distancia entre la muestra y el detector y las propias características del detector (De Felice et al. 2000; Gilmore 2008). En (Chionis et al. 2014) se calculan eficiencias y factores de corrección para fuentes puntuales y volumétricas con el mismo radionúclido, obteniendo factores de corrección mayores para el caso de las fuentes puntuales. Otro factor para tener en cuenta relacionado con la muestra a medir es la matriz, en particular la densidad de la muestra. Aunque generalmente el efecto de la geometría, relacionado directamente con el ángulo sólido entre la muestra y el detector, es mayor que el de la matriz (Giubrone et al. 2016), en aquellos casos en los que se tengan densidades altas en la muestra, los fotones de baja energía o rayos X en coincidencia podrían atenuarse, reduciendo el efecto de suma por coincidencia en comparación con los que se obtendrían en muestras de baja densidad.

Una de las primeras técnicas para resolver este problema fue propuesta por (Andreev et al. 1972, 1973) partiendo de un modelo teórico para calcular los factores de corrección mediante métodos numéricos. Posteriormente se desarrollaron diferentes métodos

numéricos que consideraban factores más complejos (Abbas 2007; Korun y Martinčič 1995; McCallum y Coote 1975; Vidmar y Korun 2006), así como procedimientos experimentales o semi-empíricos (Blaauw y Gelsema 2003; Quintana y Fernandez 1995). Sin embargo, los métodos analíticos o experimentales no siempre resultan prácticos o precisos, sobre todo cuando se trata de muestras ambientales que contienen radionúclidos naturales con series extensas y esquemas de desintegración complejos. En este contexto, los métodos computacionales resultan herramientas muy útiles para realizar calibraciones que tengan en cuenta el efecto de suma por coincidencia. Así, el método Monte Carlo empezó a emplearse por (Décombaz, Gostely, y Laedermann 1992) para posteriormente combinarlos con métodos computacionales analíticos (Haase, Tait, y Wiechen 1993). En los últimos años se han desarrollado numerosos códigos y diferentes métodos de cálculo para obtener TSCFs para fuentes extendidas.

KORSUM (Debertin y Schötzig 1979), CORCO (Morel et al. 1983) y CSCOR (Sinkko y Aaltonen 1985) fueron algunos de los primeros códigos específicos para el cálculo de las TSCF basados en el trabajo de (Andreev et al. 1972) y (McCallum y Coote 1975).

ETNA (*Efficiency Transfer for Nuclide Activity measurements*) aplica el método analítico de transferencia de eficiencias basado también en la fórmula recursiva propuesta por Andreev utilizando bases de datos de NUCLÉIDE (Lépy, Bé, y Piton 2004; Piton et al. 2000). Este código necesita las curvas de eficiencia total y de pico para una geometría de referencia.

GESPECOR (*Germanium Spectroscopy Correction factor*) utiliza un método acoplado de Monte Carlo y técnicas analíticas para la calibración de la eficiencia y el cálculo de las TSCF (Sima y Arnold 2000).

TRUECOINC (Sudar 2002) aplica un método combinatorio para el cálculo de las TSCF, requiriendo como datos de entrada las eficiencias de pico y total del detector y configuración de medida.

MCNP (Monte Carlo team 2013) , GEANT (Brun et al. 1994) o PENELOPE (Salvat et al. 2011), entre otros son herramientas de Monte Carlo utilizadas para la calibración en eficiencia que se han utilizado en combinación con otros códigos que simulan el esquema de desintegración. En otros trabajos, estos códigos de Monte Carlo se han empleado en solitario comparando las eficiencias simuladas con las experimentales atribuyendo la diferencia entre las cuentas netas del foto-pico como el efecto de suma por coincidencia (Dziri et al. 2012). Este último método, en el que se compara la eficiencia simulada con la experimental requiere disponer de un modelo de caracterización del detector prácticamente perfecto para asegurar que las diferencias encontradas únicamente sean debidas al efecto de suma por coincidencia. En este ámbito, el conjunto de herramientas GEANT4 (Agostinelli et al. 2003) representa una mejora del GEANT3 al poder simular directamente el esquema de desintegración de los radionúclidos, siendo posible simular el efecto de suma por coincidencia directamente (Hurtado et al. 2004; Truscott 2002).

2.2 Dosimetría por Termoluminiscencia

2.2.1 Fenómeno de termoluminiscencia

La Termoluminiscencia (TL) es una de las grandes ramas del fenómeno de luminiscencia. En la práctica se utilizan detectores de termoluminiscencia (TLD, por sus siglas en inglés) para medir la exposición a radiación ionizante.

Cuando una partícula alfa, un fotón gamma u otra radiación ionizante de alta energía atraviesa la materia, por ejemplo, el TLD, le transfiere parte de su energía produciendo electrones excitados que se desligan de sus átomos originales. El electrón y el hueco (portadores de carga) se mueven independientemente a través de sus respectivas bandas hasta que se recombinan o hasta que caen en una trampa (defectos del cristal). Generalmente, dichas trampas se crean artificialmente en un TLD mediante la introducción de impurezas o dopantes en la estructura cristalina original y representan niveles de energía específicos en la banda de energía prohibida (Figura 2.25). Estos nuevos niveles de energía son ocupados por los portadores de carga que se crean, sirviendo así de almacenamiento una vez el material deja de ser irradiado.

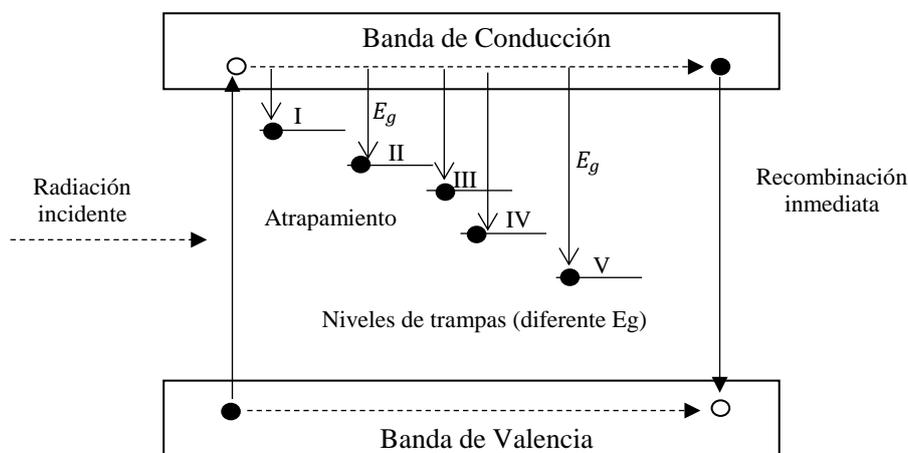


Figura 2.25. Esquema simplificado del proceso de absorción de energía proveniente de radiación ionizante; I, II, III y IV representan diferentes niveles de energía específicos creados por los dopantes (trampas a distinta E_g).

Si se eleva la temperatura del cristal irradiado, la probabilidad de escape del electrón atrapado aumenta rápidamente. A medida que se liberan estos electrones atrapados, algunos de ellos caen a energías más bajas y se recombinan con el hueco emitiendo un

fotón de luz. Esta emisión de luz producida por la liberación térmica de los electrones almacenados se denomina Termoluminiscencia. Las cargas atrapadas más próximas a la banda de conducción serán liberadas antes que aquellas localizadas en trampas más profundas. A medida que aumenta la temperatura, se emite luz según una serie de máximos discretos. Cada uno de los máximos de la intensidad de la luz se corresponde con una cierta energía de los electrones atrapados y está relacionado con la estructura del cristal (Figura 2.26). Suponiendo que la concentración de trampas es uniforme, el número de cargas atrapadas depende y es función de la cantidad de energía absorbida por unidad de masa por el material durante la irradiación. Se conoce esta magnitud como “dosis absorbida”. Así pues, al calentar el material irradiado es posible estimar la dosis absorbida analizando los diferentes niveles de emisión de luz. Si se asegura la reproducibilidad de este proceso (lectura) en el material, se tiene un dosímetro. La dosimetría por termoluminiscencia requiere realizar previamente una calibración que relacione las emisiones termoluminiscentes con una magnitud radiológica como la dosis absorbida, por ejemplo.

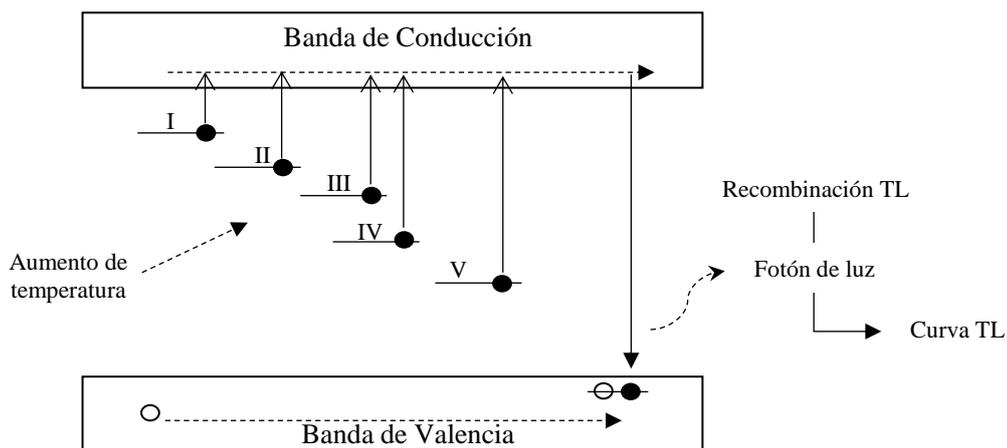


Figura 2.26. Esquema simplificado del proceso de lectura de un dosímetro al aplicar temperatura; I, II, III y IV representan diferentes niveles de energía específicos creados por los dopantes (trampas a distinta E_g).

En términos generales, el fenómeno de termoluminiscencia depende de dos factores principalmente, las trampas de electrones, que actúan a modo de almacenamiento de dosis absorbida debida a la radiación ionizante, y el proceso de liberación-recombinación, que la transforman en fotones de termoluminiscencia mientras se realiza la lectura del dosímetro.

2.2.1.1 Curva de Luminiscencia (Glow Curve)

La forma normal de mostrar los datos de TL es trazar la intensidad de la luminiscencia en función de la temperatura, conocida como "curva de luminiscencia", compuesta por distintos picos que aparecen a diferentes temperaturas. Estos picos están relacionados con los niveles energéticos correspondientes a las trampas de electrones presentes en el material cristalino. El área bajo cada pico, así como su altura, está relacionada con el número de trampas llenas (y por tanto del nivel de defectos en el cristal), lo que a su vez puede ser considerado como medida de la exposición a la radiación ionizante. Las trampas localizadas en niveles energéticos cercanos a la banda de conducción, como el I en la Figura 2.25 y Figura 2.26, tienen una probabilidad de escape muy alta, pudiendo no ser lo suficientemente estables incluso a temperatura ambiente y recombinarse antes de leer el dosímetro. Sin embargo, aquellas trampas "más profundas" tienen una probabilidad muy baja y sus picos asociados tienden a ser muy estables. Por tanto, en procedimientos de dosimetría no se consideran aquellas trampas más cercanas a la banda de conducción.

La curva de luminiscencia (Figura 2.27) se describe como la representación gráfica de la intensidad de la luz (I) emitida durante el proceso de lectura del dosímetro frente a la temperatura a la que este es sometido (T) gradualmente.

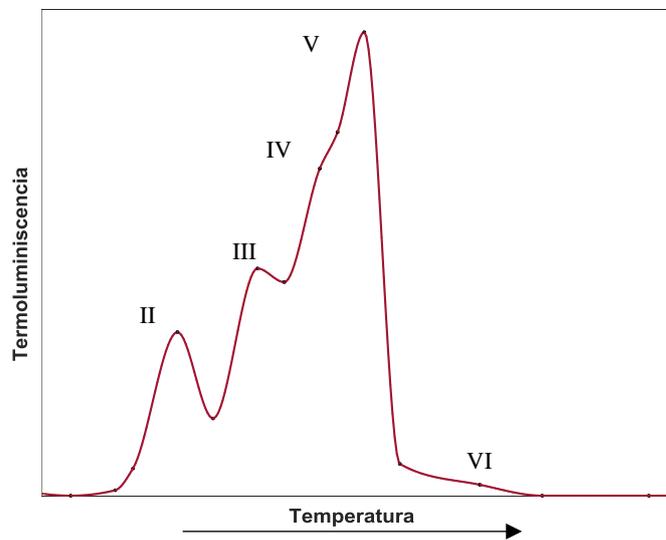


Figura 2.27. Curva de termoluminiscencia aproximada del TLD LiF:Mg,Ti

Supongamos un material hipotético con un cierto contenido en impurezas que da lugar a una única trampa en la que los portadores de carga se recombinan justo después de ser

estimulados térmicamente. Si E (eV) es la profundidad a la que se encuentra dicha trampa, o la energía necesaria para liberar al electrón (Randall y Wilkins 1945a), en un cierto instante t , la trampa contiene una concentración de electrones n (m^{-3}) y el material se encuentra a una temperatura T (K). La probabilidad p de que un electrón sea liberado de la trampa está descrita por la ecuación de Arrhenius y es proporcional a la concentración efectiva de electrones en la trampa:

$$p = s \cdot \exp(-E/kT) \quad \text{Expresión 2.33}$$

siendo k la constante de Boltzman ($8.617 \cdot 10^{-5} \text{ eV} \cdot \text{K}^{-1}$) y s el factor de frecuencia (s^{-1}) asociado a la red de defectos del material en cuestión (Horowitz, Moscovitch, y Wilt 1986).

La intensidad de la emisión de luz es proporcional a la tasa de recombinación y esta es igual a la tasa de liberación de los portadores de carga tras la estimulación térmica ($-dn/dt$), suponiendo que la concentración de electrones libres en la banda de conducción es prácticamente estacionaria y electrones atrapados y huecos se producen en parejas durante la irradiación (Chen y McKeever 1997). Si se asume además que los electrones liberados no vuelven a ser atrapados (Randall y Wilkins 1945a, 1945b) y que todos ellos producen emisión de luz, la intensidad (I) queda como sigue:

$$I = -C \frac{dn}{dt} = C \cdot n \cdot s \cdot \exp(-E/kT) \quad \text{Expresión 2.34}$$

con C una constante relacionada con el rendimiento termoluminiscente y n el número de electrones atrapados. Si el material se calienta a velocidad uniforme $R = dT/dt$, de modo que $dn/dt = R \cdot dn/dT$, entonces sustituyendo en la Expresión 2.34 e integrando se obtiene:

$$\ln\left(\frac{n}{n_0}\right) = - \int_{T_0}^T \frac{1}{R} \cdot s \cdot \exp(-E/kT) dT \quad \text{Expresión 2.35}$$

donde el subíndice n_0 representa el número de electrones en la trampa en t_0 a una temperatura T_0 . Finalmente, sustituyendo en la Expresión 2.34 se llega a la expresión que permite obtener la intensidad de emisión de luz (I) al liberarse los electrones de la trampa en E .

$$I = C \cdot n_0 \cdot s \cdot \exp\left(- \int_{T_0}^T \frac{1}{R} \cdot s \cdot \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) dT\right) \cdot \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \quad \text{Expresión 2.36}$$

2.2.2 Dosimetría personal

La dosimetría personal pertenece a la familia de la dosimetría de radiaciones, una de las diversas aplicaciones de la termoluminiscencia. Consiste en el control y evaluación de la dosis recibida por el personal que desempeña su labor en puestos de trabajo en los que existe un riesgo potencial de verse expuestos a radiaciones ionizantes. Este tipo de trabajadores están catalogados como “Trabajadores Profesionalmente Expuestos” (TPE) y su control dosimétrico es legalmente obligatorio cuando las exposiciones a las que pueden estar sometidos puedan alcanzar determinados niveles en función de los límites establecidos (BOE-A-2001-14555 2001; ICRP-103 2007).

La dosis incorporada por fuentes de radiación externas al organismo se mide a través de los dosímetros personales, cuyos formatos se adaptan al tipo de actividad laboral que realiza el trabajador (Figura 2.28). Una característica común de estos dispositivos es que para estimar la dosis absorbida deben reproducir la atenuación que sufriría la radiación al penetrar en el cuerpo humano, es decir, deben absorber la radiación de un modo similar al que lo haría el tejido humano. En este contexto, los dosímetros de termoluminiscencia son los dispositivos más ampliamente utilizados para llevar el control dosimétrico de los TPE.

La regulación actual obliga a los Servicios de Dosimetría Personal de las Instalaciones Nucleares y Radioactivas a llevar el control dosimétrico de los TPE. En el (BOE-A-2001-14555 2001) se recopilan las magnitudes dosimétricas que se deben controlar, tales como la dosis equivalente personal profunda, superficial y al cristalino (Hp(10), Hp(0.07) y Hp(3), respectivamente). En la UPV, esta labor se realiza por el SDPE del Servicio de Radiaciones mediante la utilización de dosímetros TLD-100 como el mostrado en la Figura 2.28 (a). Estos dispositivos disponen de ventanas con filtros específicos para simular la atenuación que sufriría la radiación al penetrar en el tejido humano a una determinada profundidad. Cada TLD puede utilizar filtros de diferentes materiales y espesores, tales como teflón, cobre, plástico ABS o aluminio, principalmente. Según el material que se emplee, el filtro tendrá un espesor de acuerdo con la densidad del material para simular la profundidad en el tejido humano a la cual se pretenda obtener la dosis equivalente. Para poder discriminar la energía del haz de irradiación se comparan las respuestas relativas de la energía depositada en los cristales con distinto filtrado y se obtienen relaciones de las RREs entre diferentes ventanas. Una vez se obtienen estas relaciones, se comparan con los espectros energéticos

característicos empleados durante el proceso de calibrado. De este modo, es posible determinar la energía media de la radiación incidente

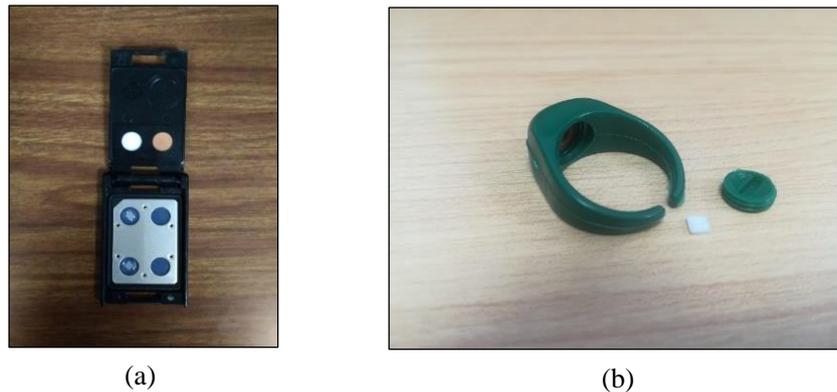


Figura 2.28. Dosímetro de tarjeta (a, situado generalmente en la ropa en la zona pectoral) y dosímetro de anillo (b, colocado en los dedos de la mano). Fuente: SDPE-UPV

2.2.2.1 Magnitudes de protección radiológica

Estas magnitudes especiales se emplean para evaluar la dosis incorporada debida a la exposición en un campo de radiación ionizante. Se basan en la medición de la energía depositada en los diferentes órganos y tejidos del cuerpo humano y considerando también la influencia de los diferentes tipos, o calidades, de radiación sobre los efectos biológicos.

- Dosis absorbida (D): expresa la cantidad de energía absorbida por unidad de masa y se define como el cociente $d\bar{\epsilon}/dm$. Se expresa en unidades de J/kg o la unidad denominada Gray (Gy). Esta magnitud dosimétrica es válida para cualquier tipo de radiación y requiere especificar el material en el que se deposita la energía.
- Dosis equivalente (H_T): dosis absorbida, en el tejido u órgano (T), ponderada en función del tipo y calidad de la radiación incidente (R). Así pues, la dosis equivalente introduce factores de peso diferentes para cada tipo de radiación (ICRP-60 1991), y se define como el producto de la dosis absorbida promediada sobre el tejido u órgano ($D_{T,R}$) por este factor de peso (W_R). Se expresa en J/kg o la unidad denominada Sievert (Sv). La dosis equivalente es un indicador básico de protección radiológica, ya que especifica los límites de radiación para los TPE (BOE-A-2001-14555 2001; ICRP-103 2007).

$$H_{T,R} = W_R D_{T,R} \quad \text{Expresión 2.37}$$

Cuando el campo de radiación se compone de tipos y energías con valores diferentes de W_R (BOE-A-2001-14555 2001) la dosis equivalente total, H_T viene dada por la siguiente expresión:

$$H_T = \sum_R W_R D_{T,R} \quad \text{Expresión 2.38}$$

- Dosis efectiva (E): es la suma de las dosis equivalentes ponderadas en todos los tejidos y órganos del cuerpo a causa de irradiaciones internas y externas. Se define como el producto de la dosis equivalente total (H_T) recibida por cierto tejido u órgano, por su respectivo factor de ponderación tisular (W_T). Este factor de ponderación cuantifica la radiosensibilidad del órgano o tejido irradiado (BOE-A-2001-14555 2001; ICRP-103 2007). Se expresa en J/kg o en Sievert (Sv).

$$E = \sum_T W_T H_T = \sum_T W_T \sum_R W_R D_{T,R} \quad \text{Expresión 2.39}$$

2.2.2.2 Magnitudes de protección radiológica operacional

Estas magnitudes surgen para dar una aproximación razonable de las magnitudes anteriormente explicadas de dosis equivalente y efectiva, ya que estas no pueden medirse directamente (habría que situar los dosímetros en el interior del cuerpo humano), para el monitorizado de la irradiación externa. Por ello, se utilizan los filtros, para poder determinar de manera aproximada la dosis recibida a diferentes profundidades. Se pueden englobar en dos grandes grupos, evaluación individual o ambiental. Se definen a continuación las más empleadas en evaluación individual.

- Dosis equivalente personal $H_p(10)$: dosis equivalente en tejido blando a 10 mm de profundidad, bajo determinado punto del cuerpo (dosis equivalente profunda).
- Dosis equivalente personal $H_p(0.07)$: dosis equivalente en tejido blando a 0.07 mm de profundidad, bajo determinado punto del cuerpo (dosis equivalente superficial o en piel).
- Dosis equivalente personal $H_p(3)$: dosis equivalente en tejido blando a 3 mm de profundidad, bajo determinado punto del cuerpo (dosis equivalente en cristalino).

Estas magnitudes son las que se evalúan empleando los dosímetros personales de termoluminiscencia comentados en esta sección. Los límites de dosis para los TPE se encuentran recogidos en el (BOE-A-2001-14555 2001).

Los filtros que se pueden apreciar en la Figura 2.28 (a), están situados de tal manera que la radiación los atravesará antes de alcanzar el cristal detector. Estos filtros son de un material (densidad) y espesor equivalente a una profundidad X del tejido humano.

2.2.3 Dosímetros de termoluminiscencia (TLDs)

Los detectores de termoluminiscencia (TLDs) se han convertido en uno de los dispositivos más utilizados en el control y evaluación de la dosimetría externa, tanto personal como ambiental, así como en aplicaciones médicas de radiodiagnóstico y radioterapia. Una de sus ventajas es que mediante la aplicación de filtros adecuados es posible evaluar la dosis efectiva y la dosis equivalente sin necesidad de conocer a priori ni la calidad de la radiación ni su espectro energético.

En una primera aproximación, la señal luminiscente asociada con la dosis depende del número atómico de material absorbente (Z_{ef}) y de la energía de la radiación incidente.

Uno de los materiales termoluminiscentes más utilizados en dosimetría personal, en particular en radioterapia y en instalaciones radiológicas/nucleares, es el fluoruro de litio, dopado con magnesio y titanio (LiF: Mg, Ti) (Guimarães y Okuno 2003; Horowitz 1984; IAEA 1995). Existen diversos modelos de dosímetro basados en este material, como el TLD-100, TLD-700 y el TLD-600, cuyas diferencias se encuentran en el porcentaje que tienen de cada uno de los dos isótopos del litio (^7Li y ^6Li). Así, el TLD-100 tiene Li natural (7.5% de ^7Li), el TLD-700 está enriquecido en ^7Li y el TLD-600 en ^6Li . Estas diferencias mejoran su eficiencia en aplicaciones concretas, como por ejemplo en dosimetría de fotones, protones o neutrones. El LiF presenta un número atómico efectivo, $Z_{ef} = 8.2$, próximo al del tejido humano, $Z_{ef} = 7.42$. Hay alternativas que emplean este mismo material base pero con dopantes diferentes y con una eficiencia parecida, como el LiF: Mg,Cu,P (Bilski et al. 1995; Budzanowski et al. 2007), así como el LiF: Mg,Cu,Si (Lee et al. 2006) aunque en términos general su aplicación no está tan extendida como la del TLD-100. Existen otras opciones menos comunes basadas en otros materiales termoluminiscentes que presentan una mayor sensibilidad, como el CaF_2 (TLD-200, TLD-300, TLD-400), el CaSO_4 : Dy (TLD-900) o el $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ (TLD-800), cuyos Z_{ef} son superiores a 15, convirtiéndolos en buenas opciones para dosimetría ambiental.

2.2.3.1 Propiedades fundamentales de los materiales termoluminiscentes

La elección de un material termoluminiscente u otro vendrá dado por sus características en función de la aplicación a la que vaya destinado. La Tabla 2-2 lista las características básicas de los principales materiales TL empleados.

Tabla 2-2. Propiedades generales de materiales TL comúnmente utilizados. (DeWerd 1983)

Material	LiF		CaF ₂		Ca SO ₄	
Dopantes	Ti, Mg	Mg, Cu, P	Mn	Dy	Dy	Tm
Z_{ef}	8.2		16.3		15.3	
RRE (30 keV/1.25 MeV)	1.3	0.8	15	15	12	12
Fading	Bajo	Bajo	Medio	Alto	Bajo	Bajo
Intervalo de trabajo (Gy)	10 ⁻⁵ -10 ³	10 ⁻⁷ -10 ²	10 ⁻⁵ -10 ³	10 ⁻⁶ -10 ³	10 ⁻⁶ -10 ³	10 ⁻⁵ -10 ²
Sensibilidad relativa al TLD-100	1	30	5	15	15	15

Linealidad

Esta propiedad se basa en la relación existente entre la señal TL obtenida y la dosis absorbida por el material, buscándose un material que presente una dependencia lineal entre ambas magnitudes. Sin embargo, no en todo el intervalo de dosis se conserva esta linealidad, perdiéndola a dosis bajas y altas, por lo que la elección del material a emplear debe considerar su intervalo de aplicabilidad. A efectos prácticos, un material con una relación lineal simplifica el proceso de calibración del dosímetro a la obtención de un único punto que se extenderá en todo el intervalo. En caso de tener regiones no lineales a niveles de dosis dentro del intervalo de trabajo del dosímetro, se deberá obtener factores de calibración en más puntos para realizar ajustes no lineales.

Sensibilidad

La sensibilidad de un material TL relaciona la energía media emitida durante la lectura (señal de luz) con la energía media absorbida por el material durante la irradiación (dosis absorbida). El cociente de ambos expresa la eficiencia termoluminiscente del material. Un material que presente una buena sensibilidad tendrá una eficiencia termoluminiscente adecuada al intervalo de dosis en el que se va a emplear. Un TLD que se utilice para dosimetría personal o ambiental, por ejemplo, tendrá que producir señales de luz medibles para intervalos de dosis bajos, cercanas a la contribución del fondo ambiental. En otras aplicaciones como la radioterapia esto no es problema ya que se suele trabajar en intervalos más elevados (2 Gy) y generalmente la mayor parte de los materiales TL producen señales intensas para esos niveles.

Estabilidad

Esta propiedad cobra especial importancia en aquellas aplicaciones en las que los dosímetros van a estar expuestos a diferentes condiciones ambientales al no tener control sobre ellas como la temperatura, la luz o la humedad. Es el caso de aplicaciones relacionadas con la dosimetría ambiental y personal. La estabilidad hace referencia a la ausencia de cambios en la respuesta del dosímetro que finalmente se traducirían en inestabilidades de la señal TL y, por lo tanto, en lecturas de dosis erróneas. El descenso con el tiempo de la señal TL obtenida en el proceso de lectura se conoce como *fading* y describe la liberación espontánea de electrones atrapados en los diferentes niveles energéticos (trampas) del material TL antes de poder realizar la lectura del dosímetro.

Fading

El fading es la pérdida de señal TL que puede producirse durante el almacenamiento del TLD antes o después de ser irradiado. Este defecto puede corregirse aplicando factores de corrección obtenidos mediante algoritmos propios o facilitados por el fabricante (Doremus y Higgins 1994; Lee, Won, y Kang 2014).

La pérdida de señal TL se produce por la liberación espontánea de los portadores de carga atrapados y su posterior recombinación. La probabilidad (P) de que esto suceda viene definida por la Expresión 2.33 en la Sección 2.2.1.1 y el tiempo de vida media de una trampa viene dada por:

$$\tau = \frac{0.693}{P} \quad \text{Expresión 2.40}$$

y se define como el tiempo necesario para reducir a la mitad la población de electrones en un determinado nivel energético. Aunque la temperatura es normalmente la responsable de esta pérdida, otros factores como la luz pueden afectar a la información almacenada en los TLD (DeWerd 1983).

Respuesta a la energía

La respuesta a la energía evalúa la variación de la señal TL obtenida en función de la energía absorbida por el material. El coeficiente de absorción está relacionado con el Z_{ef} del material y en el caso de dosimetría de fotones, esta propiedad se define como el cociente entre el coeficiente de absorción másico (μ_{en}/ρ) del material TL empleado (m) y otro de referencia (ref), como indica la Expresión 2.41 (McKeever 1988).

$$S_E(E) = \frac{(\mu_{en}/\rho)_m}{(\mu_{en}/\rho)_{ref}} \quad \text{Expresión 2.41}$$

En dosimetría personal, un material TL con una buena respuesta en energía, tendrá una $S_E(E)$ cercana a 1, siendo el tejido humano el material de referencia. Esto se consigue

con materiales cuyo Z_{ef} sea similar al del tejido humano ($Z_{ef} = 7.5$), como el LiF ($Z_{ef} = 8.2$).

En la práctica, la determinación de la respuesta en energía del material TL (para fotones), suele expresarse normalizada a la respuesta para una energía en particular, como la del ^{137}Cs (661 keV). Así se obtiene la función de Respuesta Relativa a la Energía (RRE):

$$(RRE)_E = \frac{S_E(E)}{S_E(661 \text{ keV})} \quad \text{Expresión 2.42}$$

El análisis de la RRE permite evaluar la adecuación de un material TL para una aplicación específica, así como para elegir los filtros para la obtención final de las dosis equivalentes (Hp (10), Hp (3), Hp (0.07), ... etc.).

Autores como (D. Davis et al. 2003; Hranitzky, Stadtmann, y Olko 2006) proponen métodos y recomendaciones para obtener y analizar la RRE de un TLD. En estos trabajos la RRE se obtiene partiendo inicialmente de una geometría sencilla en aire relacionando la señal termoluminiscente obtenida en mediciones experimentales ($TL(E)$) y el kerma en aire ($K_a(E)$), normalizado a la energía del ^{137}Cs (661.6 keV).

$$RRE_K(E) = \frac{TL(E)/K_a(E)}{TL(Cs)/K_a(Cs)} \quad \text{Expresión 2.43}$$

La eficiencia termoluminiscente relativa ($\eta(E)$) se obtiene también en aire a partir de la $TL(E)$ medida y de la dosis absorbida obtenida mediante simulaciones de Monte Carlo, $D^{-1}(E, E')$, obteniendo resultados satisfactorios al compararlos con cálculos microdosimétricos con blancos de diámetro variable entre 20 y 40 nm (Hranitzky, Stadtmann, y Kindl 2004; Hranitzky et al. 2006).

$$\eta(E) = \frac{\sum TL(E) \cdot D^{-1}(E, E')}{\sum TL(E') \cdot D^{-1}(Cs, E')} \quad \text{Expresión 2.44}$$

Finalmente, la RRE para modelos realistas de dosímetros se calcula como:

$$RRE(E) = \frac{TL(E)/H(10, E)}{TL(Cs)/H(10, Cs)} = \frac{\sum \left(\frac{D(E, E')}{K_a(E)} \cdot \eta(E') \right) \cdot h_K(10, Cs)}{\left(\frac{D(Cs, E')}{K_a(Cs)} \right) \cdot \eta(E') \cdot h_K(10, E)}$$

Expresión 2.45

donde $H(10, E)$ es la dosis equivalente profunda y $h_K(10, E)$ es el factor de conversión de kerma en aire a dosis equivalente, obteniendo también resultados coherentes con la respuesta obtenida en mediciones experimentales (Hranitzky et al., 2006).

(Eakins et al. 2008) propone una expresión equivalente para calcular la RRE en la que todos los factores se han obtenido a partir de simulaciones Monte Carlo:

$$R(\theta, E) = \frac{K(\theta, E)_{LiF} \times K(0, Cs)_{Air}}{K(\theta, E)_{Air} \times K(0, Cs)_{LiF}} \times \frac{h(0, Cs)}{h(\theta, E)} \times \eta'(E)$$

Expresión 2.46

donde $K(\theta, E)_M$ es la energía absorbida en el cristal de interés ($H_p(10)$ o $H_p(0.07)$), estimado a partir del registro F6 de MCNP6 (MeV/g), para el material del detector, LiF (aproximación a kerma) o aire (kerma), $h(\theta, E)$ es el coeficiente de conversión de kerma en aire a dosis equivalente para una energía y ángulo de incidencia dado en el detector de interés, $\eta'(E)$ es la eficiencia termoluminiscente relativa al LiF en función de la energía y $H_p(X)$ es la energía absorbida obtenida en un cristal (detector) de agua a X mm de profundidad desde la superficie frontal del fantoma, estimada a partir del registro F6.

Capítulo 3

Modelos de simulación para espectrometría gamma

3.1 Introducción

Los detectores de germanio de alta pureza (HPGe) se utilizan comúnmente para medir la actividad en muestras ambientales. Para asegurar la fiabilidad de los resultados es imprescindible obtener la curva de calibración en eficiencia del detector para la muestra específica que se vaya a medir. La eficiencia de detección se puede determinar experimentalmente utilizando patrones de fuentes gamma dentro del intervalo de energía deseado. Sin embargo, el método experimental requiere un número considerable de muestras estándar, con la misma geometría y matriz que las muestras analizadas, por lo que se necesitan métodos alternativos para superar estas dificultades y tener capacidad de respuesta, en particular, ante situaciones de emergencia. En este contexto, los métodos de Monte Carlo, una vez que ha finalizado su puesta a punto, van a permitir complementar las mediciones experimentales, realizando simulaciones realistas y

rápidas de cualquier tipo de muestra e incluso ayudar a optimizar el procedimiento de calibración experimental.

Estudios anteriores concluyen que las eficiencias obtenidas mediante modelos de simulación considerando los datos técnicos proporcionados por el fabricante, difieren de los resultados experimentales (Huy 2010; Jurado-Vargas y Guerra 2006). Es por ello por lo que resulta necesario caracterizar el modelo geométrico del detector. Parámetros como el espesor de la capa inactiva, el volumen de cristal activo de germanio o la distancia ventana - cristal son de particular relevancia en el cálculo de la eficiencia (Chham et al. 2015; García-Talavera et al. 2000; Hurtado et al. 2004; Ródenas et al. 2003).

El objetivo de este capítulo es obtener un modelo fiable y realista con el código de Monte Carlo MCNP6 (Monte Carlo team, 2013) de dos de los detectores de semiconductor empleados en el Laboratorio de Radiactividad Ambiental de la Universitat Politècnica de València. Para ello, es necesario caracterizarlos geoméricamente para analizar el efecto de algunos de sus parámetros característicos sobre la eficiencia del sistema. Las simulaciones se comparan con valores experimentales para diferentes geometrías y composiciones de muestra, siguiendo un proceso iterativo hasta obtener los modelos finales.

Estos modelos se utilizarán para realizar calibraciones en eficiencia rápidas de cualquier tipo de geometría o matriz de muestra que se puedan requerir tanto en un contexto de trabajo rutinario como en uno de emergencia.

3.2 Materiales

3.2.1 Detector HPGe GMX-40

El detector de espectrometría gamma empleado es un HPGe tipo N modelo GMX-40 de ORTEC (Figura 3.1). Este detector tiene una eficiencia relativa del 40% a 1.33 MeV y una resolución nominal de 0.76 keV y 2 keV a 5.9 keV y 1.33 MeV, respectivamente. Las características geométricas proporcionadas por el fabricante se listan en la

Tabla 3-2. Asimismo, se utiliza un analizador multicanal con un intervalo de energía ajustado entre 0 keV y 2040 keV con 8192 canales. Los espectros gamma se analizan con el programa GammaVision (ORTEC). La eficiencia, ε , de cada foto-pico se calcula mediante la siguiente expresión:

$$\varepsilon = \frac{N}{t \cdot A \cdot I_{\gamma}} \quad \text{Expresión 3.1}$$

donde N es el número de cuentas netas del foto-pico, t es el tiempo de medición (s), A es la actividad de la fuente (Bq) y I_{γ} es la intensidad de emisión gamma (Marie-Martine 2011). Se han determinado las curvas de calibración en eficiencia para muestras en

matrices de agua y de diferente geometría. Cada muestra contiene una solución acuosa de un patrón multigamma que cubre un intervalo de energía comprendido entre 59.54 keV y 1836.01 keV, conteniendo los siguientes radionúclidos (Tabla 3-1): ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{88}Y , ^{65}Zn , y ^{60}Co . Las geometrías analizadas son: recipiente Petri de 15 ml y 100 ml y Marinelli de 500 ml.

Tabla 3-1. Datos de la fuente patrón multigamma

Fuente	E (keV)	Iγ (%)
^{241}Am	59.5	35.90
^{109}Cd	88.0	3.61
^{57}Co	122.0	85.59
^{139}Ce	165.9	79.9
^{113}Sn	391.7	64.16
^{85}Sr	514.0	98.30
^{137}Cs	661.7	85.21
^{54}Mn	834.0	99.97
^{88}Y	898.0	93.70
^{65}Zn	1115.5	50.74
^{60}Co	1173.0	99.90
^{60}Co	1332.5	99.98
^{88}Y	1836.0	99.35



Figura 3.1. Detector HPGe GMX-40 (ORTEC). Fuente: Elaboración propia

Tabla 3-2. Características geométricas del detector HPGe GMX-40 (Fuente: ORTEC)

Parámetros	Valores nominales (mm)
Diámetro del cristal de Ge	60
Longitud del cristal de Ge	71.1
Radio de curvatura del cristal de Ge	8
Longitud del núcleo interno	63.1
Radio del núcleo interno	4.5
Capa inactiva de Ge superior	0.0003
Capa inactiva de Ge lateral	0.0003
Capa inactiva de Ge del núcleo interno	0.7
Distancia ventana-cristal	4.0
Espesor de Be de la ventana	0.5
Espesor capas de Al/Mylar	0.03/0.03
Espesor de Al del soporte interior	0.8
Espesor de Al del soporte exterior	1.0

La geometría del cristal de germanio se caracteriza teniendo en cuenta la curvatura de los bordes del cristal, así como la del núcleo interno. En el modelo de Monte Carlo se

han incluido los materiales absorbentes circundantes, tales como capas inactivas, ventana de berilio, capas de aluminio/Mylar o estructuras de soporte de aluminio (Figura 3.2).

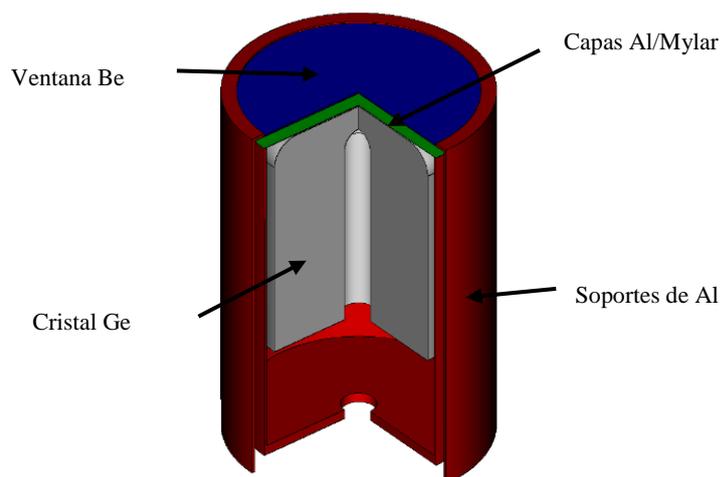


Figura 3.2. Modelo en MCNP6 del detector HPGé GMX-40

La geometría de los recipientes Petri y Marinelli y la composición de sus materiales se incluyen en cada modelo (Figura 3.3).

- Petri de 100 ml: polietileno de 1.7 mm de espesor
- Petri de 15 ml: polietileno de 1.3 mm de espesor.
- Marinelli de 500 ml: polipropileno de 2.4 mm de espesor

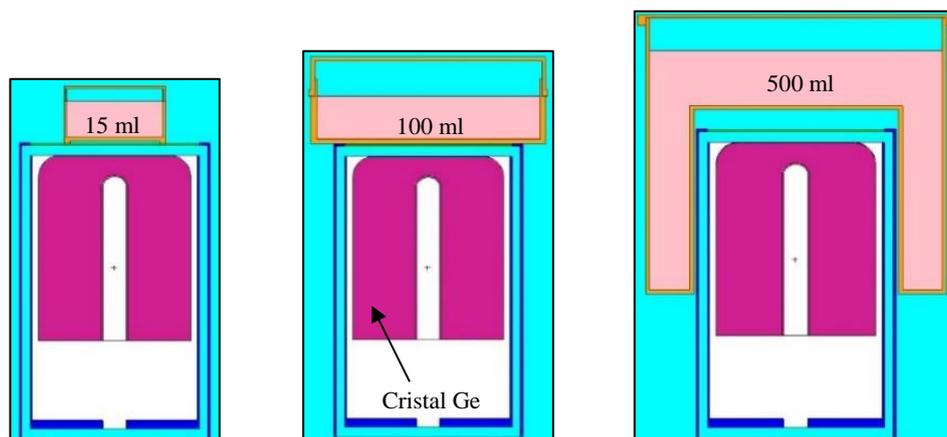


Figura 3.3. Petri de 15 ml (izq.), Petri de 100 ml (centro), Marinelli de 500 ml (der.)

3.2.2 Detector BEGe 5030

El detector empleado es un BEGe (*Broad - Energy Germanium*) tipo p de CANBERRA (Figura 3.4). Este detector tiene una eficiencia relativa del 48% a 1.33 MeV y resolución nominal de 0.5 keV, 0.75 keV y 2.0 keV a 5.9 keV, 122 keV y 1332.5 keV, respectivamente. Las características geométricas proporcionadas por el fabricante se detallan en la Tabla 3-3. El analizador multicanal tiene un intervalo de energía ajustado entre 0 keV y 2040 keV distribuido en 8192 canales. Los espectros gamma se analizan con los con programas GENIE2000 (Canberra 2009) y con GammaVision.



Figura 3.4. Detector BEGe-5030. Fuente: Elaboración propia

Tabla 3-3. Características geométricas del detector BEGe-5030 (Fuente: CANBERRA)

Parámetros	Valores nominales (mm)
Diámetro del cristal de Ge	81
Longitud del cristal de Ge	30
Diámetro del contacto inferior	20
Espesor del contacto inferior	2
Capa inactiva de Ge superior	0.0004
Capa inactiva de Ge lateral/inferior	0.5
Distancia ventana-cristal	5.0
Espesor de la ventana (carbono)	0.6

Se han obtenido curvas de calibración en eficiencia para muestras en matrices de agua y de diferente geometría. Cada muestra contiene una solución acuosa de un patrón

multigamma que cubre un intervalo de energía comprendido entre 59.54 keV y 1836.01 keV, conteniendo los siguientes radionúclidos: ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{88}Y , ^{65}Zn , y ^{60}Co . Las geometrías volumétricas analizadas son: recipiente cilíndrico con un volumen máximo de 50 ml y un recipiente Petri de 100 ml (Figura 3.5)

Por otro lado, se han empleado fuentes puntuales de ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{133}Ba y ^{60}Co , todas ellas de $1\mu\text{Ci}$ ($\pm 3\%$, $k=2$) de actividad inicial (01/07/2019). La fuente se encuentra contenida en una perla de 1 mm de diámetro y encapsulada en una matriz de $23.5 \times 11 \times 2 \text{ mm}^3$ de poliestireno (Figura 3.6).

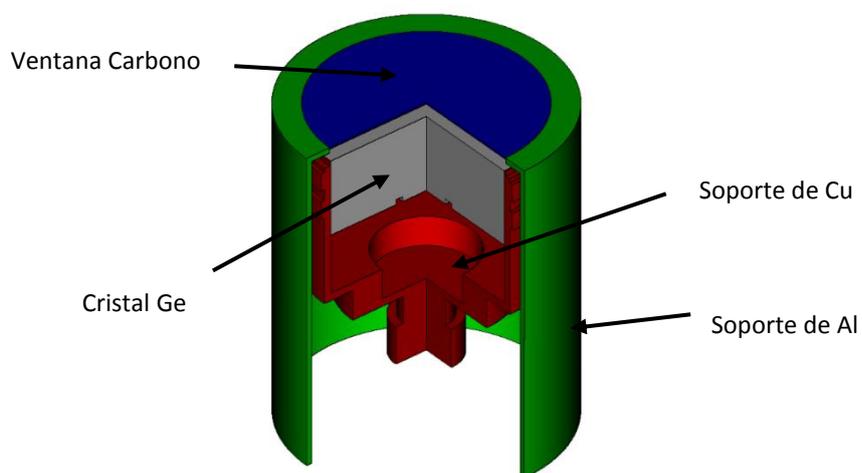


Figura 3.5. Modelo del detector BEGe-5030 (MCNP6)

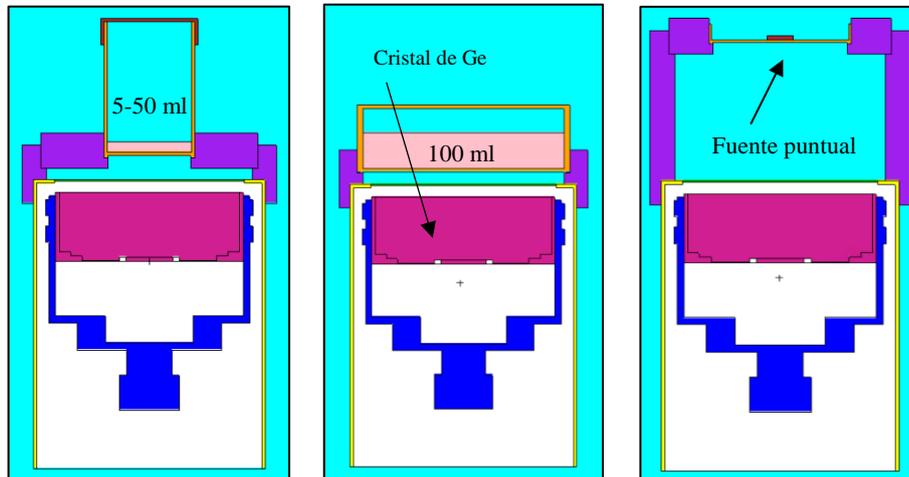


Figura 3.6. Geometrías de calibración y corte axial del modelo de detector BEGe-5030 (MCNP6). Recipiente de 5 ml - 50 ml en posición top (izquierda), Petri de 100 ml (centro) y fuente puntual (derecha).

3.2.3 Simulación con MCNP6

Todas las simulaciones se han realizado con el código MCNP6 versión 1 (Monte Carlo team 2013).

El multicanal se ha modelado con el Tally F8, simulando los 8192 canales cubriendo desde 0 keV hasta 2040 keV siguiendo la calibración en energía obtenida experimentalmente (Figura 3.7). Este registro proporciona la distribución en altura de los pulsos generados en esta celda (*Pulse Height Distribution*, PHD) por fotón emitido. Los errores estadísticos obtenidos en la simulación de las curvas de eficiencia son inferiores al 1.5%.

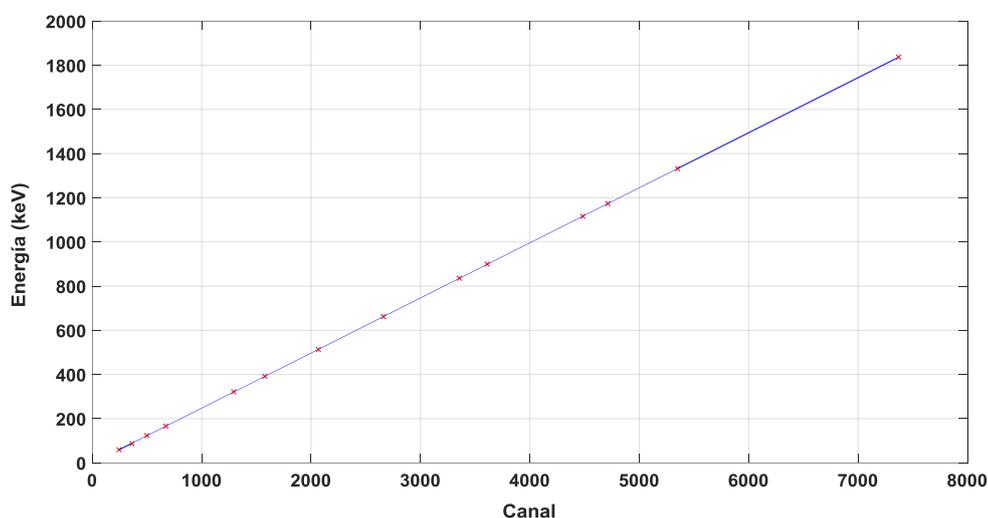


Figura 3.7. Calibración en energía; GMX-40; Muestra de 100 ml

Uno de los factores principales a tener en cuenta al modelar el detector, es la resolución en energía. La resolución del detector se ha determinado a partir de las mediciones experimentales en el intervalo de energía de interés (59.54 keV – 1836.01 keV) en términos del parámetro *Full Width at Half Maximum* (FWHM). Como ya se ha introducido en la Sección 2.1.3.2, la resolución en energía depende del detector y de la electrónica asociada al sistema de medición (Figura 3.8).

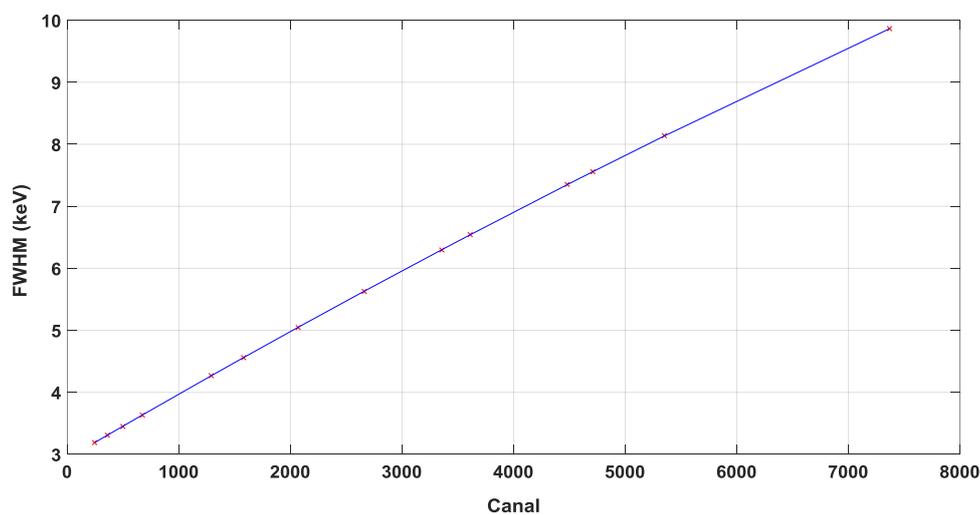


Figura 3.8. Resolución en energía (FWHM); GMX-40; Muestra de 100 ml

El código MCNP6 simula el parámetro FWHM y, por tanto, la resolución en energía del detector, usando la tarjeta *Gaussian Energy Broadening* (GEB) siguiendo la Expresión 3.2.

$$FWHM(E) = a + b \cdot \sqrt{E + c \cdot E^2} \quad \text{Expresión 3.2}$$

donde E representa la energía del fotón y a , b y c tienen unidades de MeV, $\text{MeV}^{1/2}$ y MeV^{-1} , respectivamente (Monte Carlo team 2013).

Este parámetro ha sido implementado en el modelo de simulación del detector GMX-40 durante el proceso de caracterización geométrica. Para ello, se ha partido de los valores del FWHM experimentales obtenidos durante la medición de las muestras con el software GammaVision (Tabla 3-4) para cada energía de interés. A continuación, se ha obtenido una función de ajuste siguiendo la Expresión 3.2 mediante regresión matemática (Medeiros, Rebello, y Lopes 2015) empleando el software MATLAB (The MathWorks 2016). Se obtiene así la Expresión 3.3 incluida en el modelo de simulación de MCNP6.

Tabla 3-4. Valores experimentales de FWHM para cada energía de interés (GammaVision)

Energía (keV)												
59	88	122	320	391	514	661	834	898	1115	1173	1332	1836
FWHM (keV)												
0.79	0.82	0.86	1.06	1.14	1.26	1.40	1.57	1.63	1.83	1.88	2.02	2.44

$$FWHM(E) = 6.019 \cdot 10^{-4} + 6.749 \cdot 10^{-4} \cdot \sqrt{E + 1.707 \cdot E^2} \quad \text{Expresión 3.3}$$

Además de para simular el multicanal, el registro F8 se ha utilizado para obtener la energía depositada en la celda correspondiente al cristal de germanio activo (para fotones y electrones). Se ha hecho uso del registro F4MESH para obtener la fluencia (cm^{-2}) de fotones y electrones sobre una malla superpuesta al cristal para el caso particular del detector GMX-40. Este procedimiento permite determinar la atenuación y absorción de los fotones y electrones en el cristal de germanio. La malla superpuesta se ha dividido en $10 \times 10 \times 100$ nodos correspondientes a los ejes X e Y (celdas radiales) y al eje Z (celdas axiales), respectivamente. El valor de fluencia se obtiene en el centro de cada celda. Tal y como se presentará más adelante, la Figura 3.15 muestra un diagrama 3D para estudiar cómo las partículas se atenúan al penetrar en el cristal de germanio.

Para reducir el tiempo computacional, se ha aplicado una técnica de reducción de varianza consistente en truncar (*cut-off*) los electrones de energías inferiores a 10 keV.

Las eficiencias se han calculado siguiendo el mismo método que en las mediciones experimentales, exportando para ello los datos de salida de MCNP6 al programa GammaVision. Este procedimiento, junto con la simulación del multicanal (calibración en energía) y la inclusión de la tarjeta GEB para simular la resolución en energía, permite obtener un espectro comparable al experimental. La Figura 3.9 muestra dos espectros superpuestos, uno obtenido experimentalmente por el detector HPGe GMX-40 con una muestra de agua de 100 ml y el patrón multigamma (azul) y otro a partir de la simulación Monte Carlo con el código MCNP6 (rojo). A parte de los fotónicos característicos de cada elemento, puede apreciarse un pico de escape simple a 1325 keV y otro de escape doble a 814 keV, ambos del ^{88}Y . Además, a 200 keV aproximadamente aparece un pico menor que no aparece en las simulaciones de MCNP6 y que podría identificarse como un pico suma perteneciente al ^{139}Ce , que presenta el efecto de suma por coincidencia para su emisión gamma a 165.86 keV y emisiones de rayos X a 33 y 38 keVs (Novković et al. 2007).

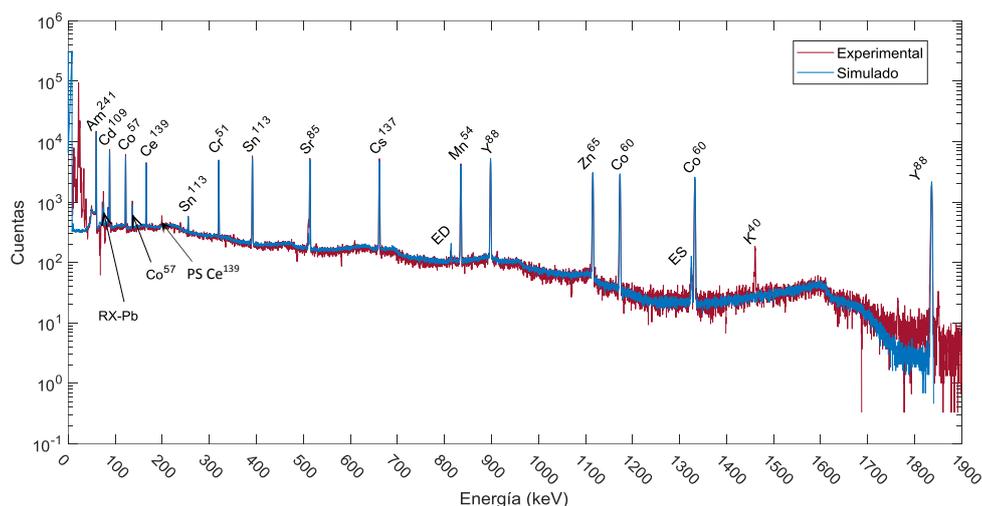


Figura 3.9. Espectros obtenidos experimentalmente y simulado; GMX-40; Muestra de 100 ml

3.3 Método

3.3.1 Caracterización del detector GMX-40

La caracterización del detector se ha realizado mediante un estudio paramétrico de sus principales características geométricas. El procedimiento consiste en comparar las eficiencias obtenidas mediante calibraciones experimentales con las calculadas por un código de Monte Carlo. Para ello se ha realizado un modelo en MCNP6 partiendo de los

datos facilitados por el fabricante (caso base) y se ha llevado a cabo una primera calibración en eficiencia. El análisis de los resultados se realiza a partir de la ratio obtenida entre la eficiencia simulada y la obtenida experimentalmente, con un intervalo de aceptación de [0.95, 1.05].

Para asegurar la aplicabilidad del modelo, las curvas de eficiencia se han obtenido para el mismo intervalo de energía de las calibraciones experimentales, así como con los mismos radionúclidos. De este modo, es posible estudiar cada parámetro por separado analizando su efecto en la eficiencia del sistema en función de la energía.

Esta metodología tiene la ventaja de poder aplicarse a cualquier detector de espectrometría gamma independientemente del código de simulación que se emplee. Existen técnicas alternativas para eliminar parte de las incertidumbres en las medidas geométricas del detector, como realizar una radiografía acotada (Saraiva et al. 2016). Mediante este método se podría asegurar con cierta exactitud parámetros como las dimensiones reales del cristal o la distancia entre la ventana del detector y el cristal de germanio. No obstante, la finalidad de la metodología presentada es obtener un modelo optimizado y realista sin tener que recurrir a técnicas adicionales ya que no siempre son viables o no es posible acceder a ellas. Es por ello por lo que se necesita realizar la caracterización del detector usando diferentes geometrías de medición cuyas eficiencias se vean afectadas en mayor o menor medida por los parámetros geométricos del detector.

Partiendo del modelo principal, se analizan en orden los siguientes parámetros: capa inactiva externa de Ge, capa inactiva interna de Ge, volumen de cristal activo de Ge y finalmente, distancia ventana-cristal, variando su valor dentro de intervalos realistas hasta obtener ratios de eficiencias aceptables.

El estudio paramétrico se ha llevado a cabo sobre la forma del cristal (Gasparro et al. 2008) (bordes rectos o redondeados) y sus características geométricas. Para realizar estos análisis, se desarrollan diferentes modelos. El primer modelo representa el caso base, considerando los parámetros proporcionados por el fabricante (Tabla 3-2) y una geometría del cristal simplificada (con bordes rectos). Se implementa un segundo modelo, igual que el primero, pero incluyendo una caracterización más realista del cristal al sustituir los bordes rectos por unos redondeados. A continuación, se realiza un estudio paramétrico para determinar el efecto de este cambio sobre la eficiencia.

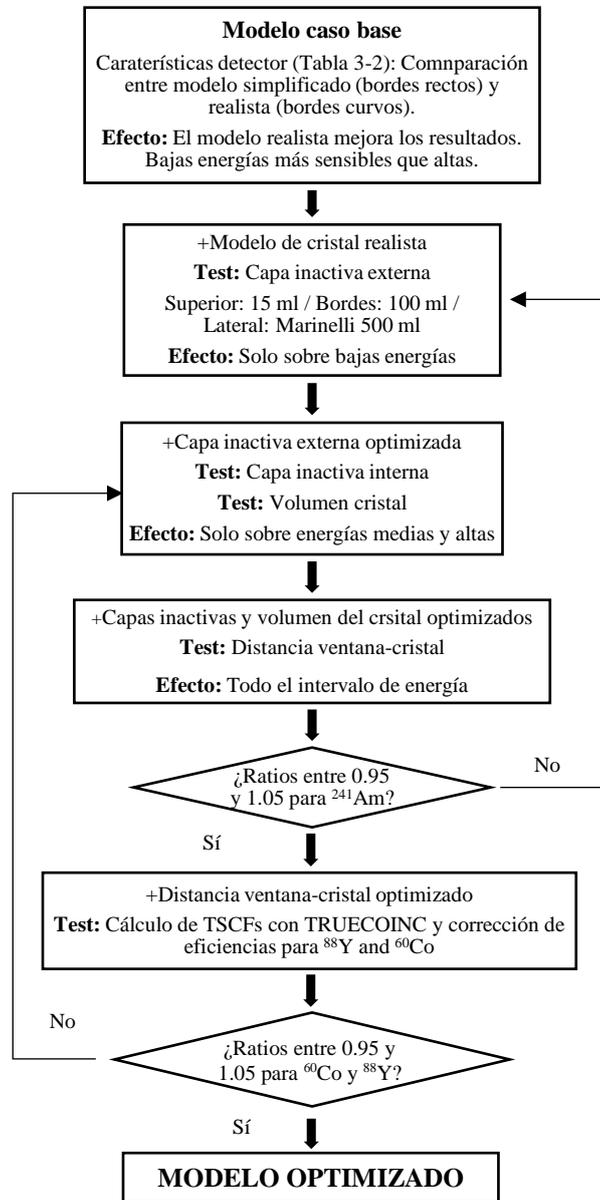


Figura 3.10. Procedimiento para la caracterización geométrica del detector HPGe GMX-40

Los parámetros considerados son las capas inactivas externas (superior, bordes y lateral / inferior), la capa inactiva interna, el volumen de cristal activo y la distancia entre la ventana y el cristal. La Figura 3.10 resume el procedimiento seguido. En todos los casos, se calcula la eficiencia y se obtiene la ratio entre la simulada y la experimental para las tres muestras consideradas.

Las mediciones experimentales se realizan con las geometrías de muestra ya expuestas y situadas sobre el detector, sin dejar ningún espacio entre la muestra y la ventana del detector.

La capa inactiva superior se ha ajustado analizando la eficiencia obtenida para la muestra de 15 ml, los bordes a su vez se ajustan usando la muestra de 100 ml y la capa inactiva lateral / inferior con la Marinelli de 500 ml. Únicamente la geometría Marinelli es la adecuada para caracterizar la capa inactiva lateral.

Una vez que se han optimizado las capas inactivas externas, se estudia la capa inactiva del núcleo interno para las tres geometrías de muestra. Este parámetro afecta a medias y altas energías, sin variar prácticamente las eficiencias a bajas energías, con lo que no entra en conflicto con la caracterización de la capa inactiva externa y pueden estudiarse por separado.

Con todas las capas inactivas optimizadas, el volumen de cristal activo se analiza modificando el diámetro del núcleo interno. En este caso, el volumen del cristal afecta al mismo intervalo de energías que la capa inactiva del núcleo interno. Los fotones de baja energía no llegan a penetrar lo suficiente en el cristal como para verse afectados por estos dos parámetros. Es por ello por lo que no se pueden tratar completamente por separado, debiéndose de trabajar en conjunto hasta llegar a un compromiso entre ellos, tratando de obtener siempre valores realistas.

La distancia entre la ventana y el cristal es el último parámetro que se analiza para estudiar el efecto del ángulo sólido sobre la eficiencia del sistema y afecta a todo el intervalo de energía. Llegados a este punto, las eficiencias para energías bajas quedan ajustadas, por lo que modificar este parámetro podría afectar a los ajustes realizados hasta el momento. Es necesario comprobar los nuevos valores de eficiencia para energías bajas y modificar las capas inactivas externas en caso de que sus eficiencias no coincidan con las experimentales.

De los radionúclidos presentes en el patrón multigamma, no todos presentan eficiencias que puedan compararse directamente con las simuladas, para las condiciones de medición dadas. Los radionúclidos ^{139}Ce (165.86 keV) ^{60}Co (1173.24 keV y 1332.50 keV) y ^{88}Y (898.02 keV y 1836.01 keV) presentan el efecto de suma por coincidencia que subestima sus eficiencias experimentales. Este efecto se produce en geometrías cercanas al detector, cuando un radionúclido emite dos o más fotones (o rayos X) en cascada que interaccionan con el detector dentro de su tiempo resolución. El sistema no puede diferenciar entre cada energía, sumándolas y tratándolas como una sola. Para contrarrestar este fenómeno es necesario calcular los factores de corrección por pico

suma (TSCFs). Observando las energías de estos radionúclidos y del espectro bajo estudio (Tabla 3-1), la metodología presentada sin aplicar los factores de corrección por pico suma se podría validar hasta la energía del ^{65}Zn (1115.5 keV).

La eficiencia del ^{139}Ce , ^{60}Co y del ^{88}Y se evalúa después de realizar el estudio paramétrico, con el modelo optimizado hasta los 1115.5 keV. Por lo tanto, sus eficiencias se han excluido de este procedimiento hasta llegar al primer modelo optimizado.

Ya que el código MCNP6 no simula este fenómeno, se procede a validar las eficiencias calculando los TSCFs mediante el programa TRUECOINC (Sudar 2002) al que se hace referencia más adelante. Si tras aplicar estos factores de corrección, las ratios eficiencia simulada/experimental están en el intervalo de aceptación, el modelo queda finalmente optimizado. En caso contrario, es necesario reevaluar aquellos parámetros geométricos que afectan a energías altas (capa inactiva interna, volumen de cristal activo y distancia ventana-cristal) y recalcular los TSCFs con el nuevo modelo (Figura 3.10).

3.3.2 Caracterización del detector BEGe 5030

Como en el caso del detector GMX-40, el análisis de los resultados se realiza a partir de la ratio obtenida entre la eficiencia simulada y la obtenida experimentalmente, con un intervalo de aceptación del 5 % [0.95, 1.05].

En los detectores de este tipo se tienen dos contactos: uno puntual de tipo N (litio) situado en la cara inferior del cristal y un contacto tipo P (boro), implantado en toda la superficie del cristal salvo la que contiene al contacto de tipo N. Las zonas inactivas del cristal se encuentran, por un lado, alrededor del contacto de litio, hasta una cierta profundidad y por otra rodeando la unión con el contacto de boro.

La caracterización del detector BEGe-5030 se ha realizado de un modo diferente al anterior. Para eliminar ciertas incertidumbres sobre el volumen y sobre la forma del cristal activo de germanio, se ha realizado un análisis de su respuesta eléctrica mediante el método SALSA (*Salamanca Lyso-based Scanning Array*) (Hernández-Prieto et al. 2016). Esta técnica ha permitido obtener una imagen de la región activa del cristal, eliminando así una de las fuentes de incertidumbre más importantes en la caracterización. De este modo, se ha realizado el modelo del detector con una geometría del cristal activo más cercana a la realidad. No obstante, la imagen no proporciona información sobre el espesor de la capa inactiva superior al tener un valor muy pequeño, de unas pocas micras.

La Figura 3.11 representa una mitad de la sección radial localizada en el centro del cristal. La figura está orientada de manera que la parte superior de la imagen se corresponde con la parte inferior del cristal, en la que se encuentra el contacto puntual de tipo N. En dicha imagen se ha delimitado la zona inactiva situada en la parte inferior del cristal (en color verde), que se corresponde con la región alrededor del contacto de tipo N y extendiéndose hacia la periferia del cristal hasta alcanzar la esquina. Como

resultado, se obtiene una región inactiva de 2 mm de profundidad y 26 mm de diámetro donde se sitúa el contacto puntual, 1 mm de profundidad entre el contacto y las esquinas inferiores del cristal y 9 x 3.5 mm (valores medios) en las esquinas. El resto de los parámetros característicos, tanto del cristal como de la estructura del detector se han aproximado considerando los datos proporcionados por el fabricante. Se han utilizado fuentes puntuales de ^{133}Ba , ^{137}Cs y ^{60}Co , medidas a 6 cm y 11 cm de distancia.

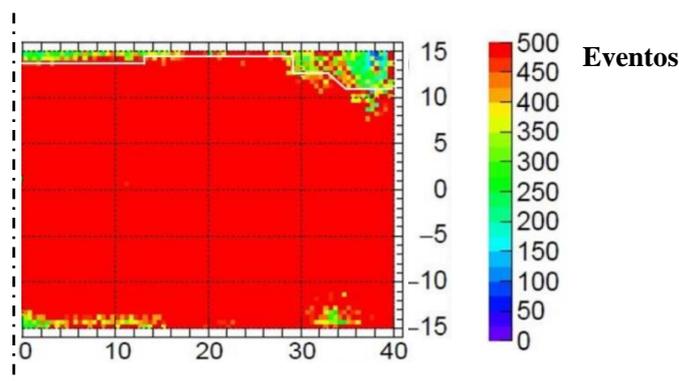


Figura 3.11. Eventos registrados y regiones activas e inactivas del detector BEGe-5030

El espesor de la capa inactiva frontal se ha caracterizado mediante la ratio de eficiencias para el ^{241}Am , con una fuente volumétrica (muestra de 5ml) y con una puntual situándolas a diferentes distancias con respecto a la ventana del detector. Con una actividad de $1\mu\text{Ci}$, la fuente puntual se situó a 6 cm y 11 cm de distancia sobre el detector para reducir su eficiencia y obtener así un tiempo muerto de medición menor, limitando el error experimental. La muestra volumétrica en cambio, con una actividad reducida, se situó sobre el detector (posición *top*) en un soporte que la eleva 0.5 cm sobre la ventana del detector y a 6 cm de altura. Una vez se ha ajustado el espesor de la capa inactiva frontal hasta obtener ratios de eficiencia simulada/experimental comprendidos entre 0.95 y 1.05, se ha comparado con los valores experimentales del ^{241}Am , ^{57}Co y ^{122}Cd de la muestra conteniendo 5 ml de patrón multigamma.

Para finalizar el proceso de validación del modelo, se han comparado las eficiencias simuladas con las experimentales del resto de radionúclidos, con energías comprendidas entre el ^{113}Sn (391 keV) y el ^{88}Y (1836.01 keV).

Del mismo modo que con el detector GMX-40, para validar el modelo hasta los 1836 keV, se calculan los TSCFs necesarios para corregir las eficiencias experimentales del ^{60}Co e ^{88}Y . Por otro lado, el ^{133}Ba , que se ha utilizado para validar el volumen activo del modelo, presenta suma por coincidencia, con un esquema de desintegración complejo en comparación con el ^{60}Co e ^{88}Y (Figura 4.4, Figura 4.5 y Figura 4.6), por lo que se requiere calcular factores de corrección. En ambos casos se utiliza el programa TRUECOINC (Sección 4.1.2).

3.4 Resultados de la caracterización

3.4.1 *Detector GMX-40*

A continuación, se presentan los resultados obtenidos mediante el proceso de caracterización geométrica del detector HPGe GMX-40. Los resultados mostrados en esta sección se centran en determinar el efecto de los parámetros geométricos estudiados sobre la eficiencia del sistema y se dividen en:

- Eficiencias del caso base.
- Cristal con bordes redondeados frente a bordes rectos.
- Capa inactiva externa.
- Capa inactiva interna.
- Volumen de cristal de germanio activo.
- Distancia ventana-detector.
- Modelo optimizado.

3.4.1.1 *Eficiencias del caso base*

La Figura 3.12 muestra las curvas de eficiencia experimentales para las tres geometrías en estudio. La muestra de 15 ml tiene las mayores eficiencias, ya que presenta una geometría más cercana a la de una fuente puntual (máxima eficiencia). El recipiente Marinelli representa el caso opuesto, con las eficiencias más bajas, por tratarse de la geometría más extensa.

La Tabla 3-5 lista las ratios obtenidas para las eficiencias simuladas frente a las experimentales, observándose altas discrepancias entre ellas, con ratios superiores a 1.05. El hecho de que modelo base sobreestime las eficiencias en todo el intervalo de energía considerado, indica que es necesario analizar diferentes parámetros geométricos puesto que su efecto sobre la eficiencia depende de la energía. Las discrepancias observadas a bajas energías, hasta el ^{57}Co , se deben a un espesor de la capa inactiva externa inferior al real. A partir del ^{113}Sn en cambio, el motivo podría deberse a diversos parámetros geométricos como el volumen activo o a la capa inactiva del núcleo interno entre otros, pues su efecto sobre la eficiencia cobra importancia en medias y altas energías.

Analizando las ratios en función de la geometría de la muestra, se puede apreciar como la Marinelli de 500 ml presenta las discrepancias más importantes. Esto se debe a que la Marinelli tiene una geometría que envuelve al detector, pudiéndose ver afectada por parámetros geométricos con un menor efecto sobre el resto de las geometrías.

Estos resultados preliminares ponen de manifiesto la necesidad de llevar a cabo una caracterización geométrica del detector para lograr una calibración en eficiencia precisa.

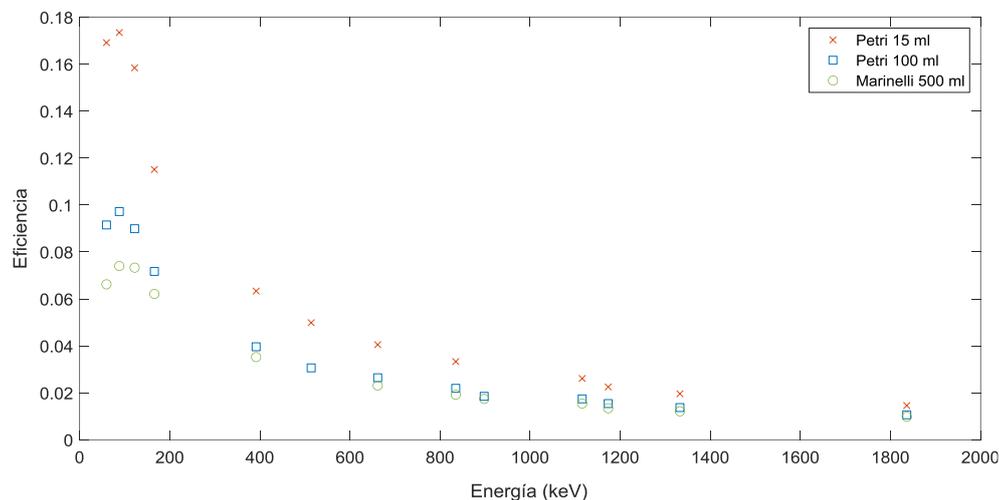


Figura 3.12. Eficiencias de foto-pico experimentales

Tabla 3-5. Ratios de eficiencias simuladas frente a experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)

Radionúclidos	E(keV)	Muestra 15 ml	Muestra 100 ml	Marinelli 500 ml
²⁴¹ Am	59.54	1.061 (0.012)	1.081 (0.014)	1.212 (0.015)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.030 (0.025)	1.026 (0.026)	1.118 (0.029)
⁵⁷ Co	122.06	1.048 (0.017)	1.063 (0.019)	1.095 (0.019)
¹³⁹ Ce	165.86	1.252 (0.016)	1.204 (0.018)	1.184 (0.019)
¹¹³ Sn	391.69	1.122 (0.019)	1.125 (0.020)	1.121 (0.021)
⁸⁵ Sr	513.99	1.127 (0.021)	1.177 (0.023)	-
¹³⁷ Cs	661.66	1.132 (0.023)	1.103 (0.023)	1.137 (0.025)
⁵⁴ Mn	834.83	1.150 (0.015)	1.144 (0.016)	1.182 (0.019)
⁸⁸ Y	898.02	-	1.269 (0.019)	1.225 (0.019)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.182 (0.023)	1.166 (0.023)	1.198 (0.025)
⁶⁰ Co	1173.24	1.309 (0.017)	1.262 (0.018)	1.304 (0.022)
⁶⁰ Co	1332.50	1.366 (0.019)	1.276 (0.020)	1.306 (0.022)
⁸⁸ Y	1836.01	1.418 (0.024)	1.293 (0.022)	1.267 (0.024)

3.4.1.2 Bordes del cristal redondeados frente a rectos

Se comparan dos modelos (Figura 3.13), uno con una forma simplificada de cristal (bordes rectos) y otro con una caracterización más realista del cristal (bordes redondeados). El modelo simplificado aumenta el volumen del cristal, incrementándose la eficiencia en todo el intervalo de energía en estudio (Tabla 3-6). La eficiencia de los fotones de baja energía (59.54 keV, 88.03 keV y 122.06 keV) es muy sensible al cambio en la forma de los bordes. Esto se debe a que el volumen adicional que introduce el modelo con los bordes rectos se localiza en la superficie superior del cristal, potenciando la absorción de fotones de baja energía. La diferencia máxima de eficiencias entre ambos modelos es del 15%, correspondiente a 59.54 keV (^{241}Am) del caso de la muestra de 15 ml. Por otro lado, las eficiencias de las energías medias y altas (391.69 keV - 1836.01 keV) se ven afectadas menos del 3% (máximo a 391.69 keV para el caso de 15 ml) porque la mayor penetración en el cristal reduce este efecto. Sin embargo, la geometría Marinelli no es tan sensible como las otras dos, mostrando una diferencia máxima de 5.7% (^{241}Am).

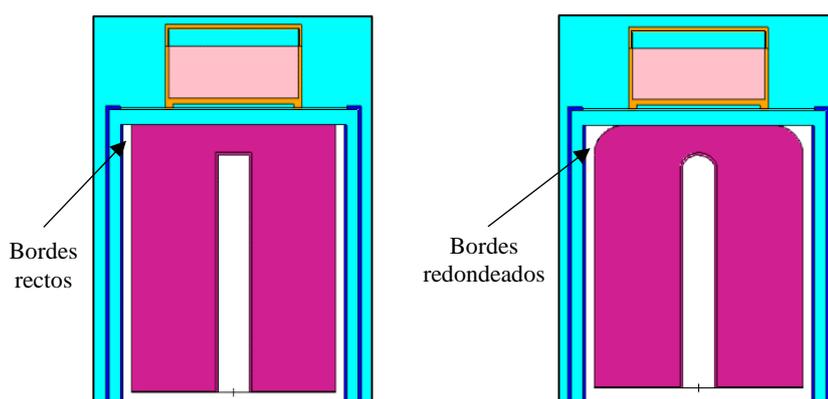


Figura 3.13. Modelos con bordes rectos (izquierda) y redondeados (derecha)

Si se considera un modelo simplificado con bordes rectos, las eficiencias se sobreestiman. Este hecho se traduce en una incorrecta aproximación de la capa inactiva superior ya que se partiría de unos valores de eficiencia superiores, con lo que su espesor final se vería reducido. El resto de los parámetros geométricos, como afectan en mayor medida a altas energías, no se ven prácticamente afectados por emplear un modelo u otro.

Teniendo en cuenta estos resultados, el modelo base sobre el que se realiza la caracterización geométrica es el modelo con los bordes redondeados.

Tabla 3-6. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Bordes rectos vs curvos

Radionúclido	E (keV)	Muestra 15 ml		Muestra 100 ml		Marinelli 500 ml	
		Curvos	Rectos	Curvos	Rectos	Curvos	Rectos
²⁴¹ Am	59.54	1.061 (0.012)	1.220 (0.014)	1.081 (0.014)	1.233 (0.016)	1.212 (0.015)	1.285 (0.016)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.030 (0.025)	1.153 (0.028)	1.026 (0.026)	1.126 (0.029)	1.118 (0.029)	1.175 (0.030)
⁵⁷ Co	122.06	1.048 (0.017)	1.136 (0.018)	1.063 (0.019)	1.130 (0.021)	1.095 (0.019)	1.135 (0.019)
¹¹³ Sn	391.69	1.122 (0.019)	1.157 (0.020)	1.125 (0.020)	1.160 (0.021)	1.121 (0.021)	1.145 (0.022)
⁸⁵ Sr	513.99	1.127 (0.021)	1.163 (0.022)	1.177 (0.023)	1.207 (0.024)	-	-
¹³⁷ Cs	661.66	1.132 (0.023)	1.162 (0.023)	1.103 (0.023)	1.135 (0.024)	1.137 (0.025)	1.155 (0.025)
⁵⁴ Mn	834.83	1.150 (0.015)	1.182 (0.015)	1.144 (0.016)	1.157 (0.016)	1.182 (0.019)	1.201 (0.019)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.182 (0.023)	1.212 (0.023)	1.166 (0.023)	1.192 (0.024)	1.198 (0.025)	1.211 (0.025)

3.4.1.3 Caracterización de la capa inactiva externa

La dependencia de la eficiencia con el espesor de la capa inactiva superior se muestra en la Figura 3.14 para los radionúclidos cuyas eficiencias son más sensibles a este parámetro: ²⁴¹Am (59.54 keV), ¹⁰⁹Cd (88.03 keV) y ⁵⁷Co (122.06 keV) y para el modelo geométrico de la muestra de 15 ml. La eficiencia del ²⁴¹Am tiene una gran sensibilidad a este parámetro debido a la baja penetración de los fotones en el cristal, con una reducción de eficiencia del 5.69% entre un espesor de 0.3 μm (caso base) y el final de 45 μm (optimizado). Para el ¹⁰⁹Cd y el ⁵⁷Co, sus eficiencias apenas se ven afectadas por el espesor de la capa inactiva, que muestra una reducción de la eficiencia del 2.05% y 0.9% entre ambos valores, respectivamente.

Para los fotones del ²⁴¹Am, las interacciones ocurren principalmente en una región cercana a la superficie del cristal, depositando una gran parte de su energía en la capa inactiva, siguiendo la ley de atenuación exponencial (Figura 3.15). La fluencia de fotones/electrones se reduce notablemente (~ 85%) en 1000 μm de profundidad en el cristal. Por lo tanto, un aumento de la capa inactiva externa conlleva a una disminución importante de la eficiencia de detección de fotones de baja energía.

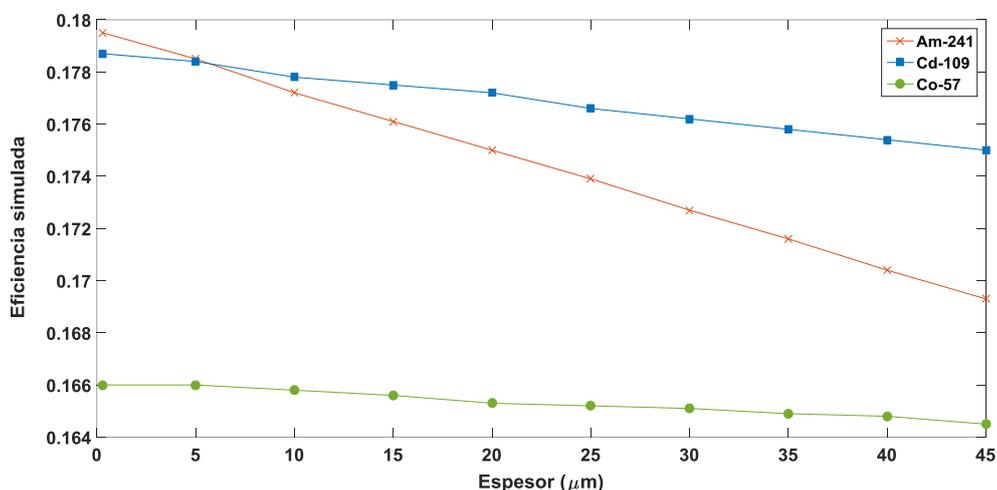


Figura 3.14. Dependencia de la eficiencia frente al espesor de la capa inactiva frontal

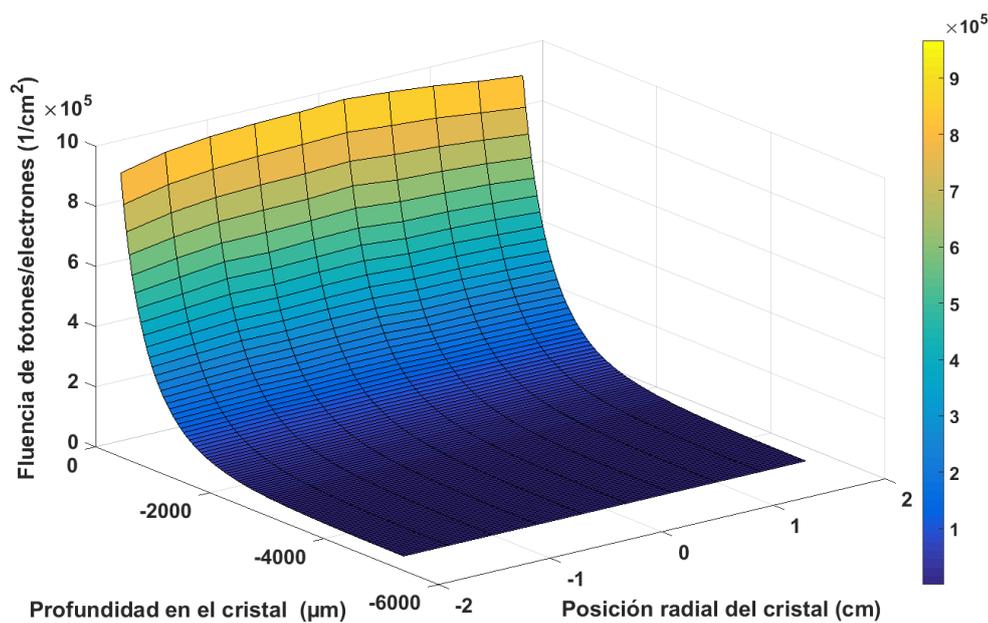


Figura 3.15. Dependencia de la fluencia (^{241}Am) con la profundidad del cristal. La intersección entre los ejes “profundidad” y “fluencia” representa la superficie superior del cristal de Ge

En consecuencia, la caracterización de la capa inactiva externa se ha llevado a cabo teniendo en cuenta la eficiencia del ^{241}Am .

La capa inactiva superior se ha establecido en 45 μm obteniendo una ratio para el modelo de 15 ml de 1.00, y un valor para el caso de 100 ml de 1.04. No obstante, la eficiencia en el modelo de 100 ml se puede mejorar incrementando el espesor la capa inactiva situada en el borde del cristal hasta 25 μm , alcanzando así una nueva ratio de 1.02, mientras que en el modelo de 15 ml la eficiencia permanece prácticamente constante.

En la Figura 3.3, se aprecia que la muestra de 15 ml únicamente ocupa el centro del cristal, mientras que la de 100 ml sobresale por los laterales, viéndose más afectada por la capa inactiva de los bordes del cristal. La capa inactiva lateral se ha elevado hasta 130 μm , mejorando la ratio de eficiencias de la Marinelli de 500 ml hasta 1.02 sin afectar las eficiencias de los otros dos modelos. En consecuencia, es posible lograr eficiencias precisas a bajas energías para la geometría de 15 ml ajustando únicamente la capa inactiva superior y en el caso de la geometría de 100 ml, ajustando la capa inactiva superior incluyendo los bordes. En contraposición, la Marinelli de 500 ml requiere la caracterización de la capa inactiva lateral ya que está envolviendo al cristal. El espesor final de la capa inactiva de los bordes redondeados, que hace de transición entre la superficie frontal y la lateral, tiene un valor inferior al obtenido para estas dos zonas. El motivo puede estar relacionado con el proceso de mecanizado que suaviza los bordes del cristal (Ashrafi et al. 1999).

En la Tabla 3-7 se listan las eficiencias y las ratios de eficiencia simulada a experimental, obtenidas hasta alcanzar los espesores de las capas inactivas optimizadas. Los datos de la primera fila se corresponden con el modelo base de bordes redondeados.

Tabla 3-7. Ratios de eficiencias (^{241}Am) simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)

Espesor de la capa inactiva (μm)			Ratios para el ^{241}Am		
Superior	Bordes	Lateral/inferior	15 ml	100 ml	500 ml
0.3*	0.3*	0.3*	1.061 (0.012)	1.081 (0.014)	1.212 (0.015)
45	0.3	0.3	1.001 (0.012)	1.035 (0.013)	1.192 (0.015)
45	25	0.3	0.992 (0.012)	1.017 (0.013)	1.183 (0.015)
45	25	130	0.993 (0.012)	0.997 (0.013)	1.017 (0.013)

*Caso base: espesor de la capa inactiva proporcionada por el fabricante

3.4.1.4 Capa inactiva interna

Las Tabla 3-8, Tabla 3-9 y Tabla 3-10 listan las ratios de eficiencia obtenidas cuando la capa inactiva del núcleo interno varía desde 0.7 mm (caso base) hasta 2.7 mm. Cada caso tiene en cuenta las capas inactivas externas óptimas logradas en el apartado anterior.

Las eficiencias de los fotones de baja energía, 59.54 keV - 122.06 keV, no se ven afectadas debido a su baja penetración. El efecto sobre la eficiencia es más significativo cuando se aumenta la energía debido a la mayor penetración de los fotones en el cristal. La capa inactiva que mejor se ajusta a los valores de eficiencia experimentales es la de 2.7 mm de espesor. Sin embargo, la Marinelli de 500 ml (Tabla 3-10) todavía muestra ratios fuera de los límites de aceptación (> 1.05) a altas energías (834.83 keV y 1115.52 keV). Según la literatura, la capa inactiva del núcleo interno en los detectores HPGe de tipo N generalmente no es tan alta (entre 1.0 mm y 2.2 mm). Estudiando los resultados para los diferentes casos, un espesor de 1.7 mm representa una buena aproximación (Blank et al. 2015; Chuong et al. 2016; García-Talavera et al. 2000), obteniéndose resultados que, aunque todavía no están completamente ajustados, mejoran notablemente el modelo. En consecuencia, para alcanzar resultados aceptables para las tres geometrías, es necesario estudiar un parámetro adicional que afecte a altas energías, pero no a bajas en la medida de lo posible. Por ello, se analiza el volumen del cristal de germanio.

Tabla 3-8. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: 15 ml

		Muestra de 15 ml			
		Espesor de la capa inactiva interior (mm)			
Radionúclido	E (keV)	0.7	1.7	2.2	2.7
²⁴¹ Am	59.54	0.993 (0.012)	0.992 (0.012)	0.992 (0.012)	0.993 (0.012)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.005 (0.025)	1.003 (0.025)	1.003 (0.025)	1.001 (0.025)
⁵⁷ Co	122.06	1.037 (0.017)	1.029 (0.017)	1.025 (0.017)	1.018 (0.016)
¹¹³ Sn	391.69	1.110 (0.019)	1.070 (0.018)	1.050 (0.018)	1.021 (0.018)
⁸⁵ Sr	513.99	1.114 (0.021)	1.070 (0.020)	1.048 (0.020)	1.021 (0.019)
¹³⁷ Cs	661.66	1.122 (0.023)	1.072 (0.022)	1.046 (0.021)	1.012 (0.020)
⁵⁴ Mn	834.83	1.136 (0.014)	1.084 (0.014)	1.056 (0.013)	1.025 (0.013)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.169 (0.023)	1.113 (0.022)	1.083 (0.021)	1.049 (0.020)

Tabla 3-9. Ratios de eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: 100 ml

		Muestra de 100 ml			
Radionúclido	E (keV)	Espesor de la capa inactiva interior (mm)			
		0.7	1.7	2.2	2.7
²⁴¹ Am	59.54	0.997 (0.013)	0.996 (0.013)	1.005 (0.013)	0.996 (0.013)
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.994 (0.026)	0.993 (0.026)	0.984 (0.025)	0.985 (0.025)
⁵⁷ Co	122.06	1.019 (0.019)	1.030 (0.019)	1.025 (0.019)	1.022 (0.019)
¹¹³ Sn	391.69	1.111 (0.020)	1.079 (0.020)	1.062 (0.019)	1.044 (0.019)
⁸⁵ Sr	513.99	1.161 (0.023)	1.120 (0.022)	1.094 (0.022)	1.076 (0.021)
¹³⁷ Cs	661.66	1.088 (0.023)	1.038 (0.022)	1.022 (0.021)	1.000 (0.021)
⁵⁴ Mn	834.83	1.127 (0.016)	1.077 (0.015)	1.049 (0.015)	1.022 (0.014)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.150 (0.023)	1.097 (0.022)	1.070 (0.021)	1.042 (0.021)

Tabla 3-10. Ratios de eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 0.7 mm; Muestra: Marinelli de 500 ml

		Marinelli de 500 ml			
Radionúclido	E (keV)	Espesor de la capa inactiva interior (mm)			
		0.7	1.7	2.2	2.7
²⁴¹ Am	59.54	1.017 (0.013)	1.016 (0.013)	1.017 (0.013)	1.016 (0.013)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.043 (0.027)	1.059 (0.027)	1.042 (0.027)	1.060 (0.027)
⁵⁷ Co	122.06	1.056 (0.018)	1.053 (0.018)	1.054 (0.018)	1.050 (0.018)
¹¹³ Sn	391.69	1.100 (0.021)	1.068 (0.020)	1.052 (0.020)	1.036 (0.020)
⁸⁵ Sr	513.99	-	-	-	-
¹³⁷ Cs	661.66	1.123 (0.025)	1.079 (0.024)	1.061 (0.023)	1.039 (0.023)
⁵⁴ Mn	834.83	1.167 (0.018)	1.119 (0.018)	1.098 (0.017)	1.069 (0.017)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.181 (0.025)	1.134 (0.024)	1.103 (0.023)	1.080 (0.023)

3.4.1.5 Caracterización del volumen del cristal de germanio

Teniendo en cuenta los resultados para un espesor de capa inactiva de 1.7 mm (Sección 3.4.1.4.), el volumen del cristal se ha caracterizado mediante el diámetro del núcleo interno. Al aumentar este diámetro y, por tanto, el hueco del núcleo interno, se aumenta el volumen de vacío en su interior sustituyendo el germanio que antes ocupaba ese espacio, siendo posible estudiar únicamente el efecto que tiene el reducir el volumen del cristal sin afectar a otros parámetros. Una alternativa para probar esta característica es modificar las dimensiones del cristal en lugar del diámetro del núcleo interno (Blank et al. 2015). Este método alternativo puede introducir más incertidumbres debido al cambio del ángulo sólido entre el cristal y la muestra.

Por otro lado, el espesor de la capa inactiva del núcleo interno también modifica el volumen activo. Aumentar su espesor implica reducir el volumen del cristal activo. No obstante, la introducción de germanio inactivo que conlleva aumentar este parámetro no es equivalente a aumentar el diámetro del núcleo interno, pues se estaría reemplazando germanio activo por inactivo en un caso y por vacío en el otro. El ángulo sólido no varía como en el caso anterior, pero el efecto sobre las eficiencias es más significativo que el

vacío introducido al aumentar el diámetro interno del núcleo, manteniendo constante la capa inactiva.

Aunque las ratios correspondientes a un volumen de cristal de 192.49 cm³ son aceptables para los modelos de 15 ml y 100 ml, las ratios obtenidas en el modelo de Marinelli todavía son demasiado elevadas. Los resultados para un volumen de 189.86 cm³ (reducción del 3.6%) muestran resultados coherentes con los experimentales en los tres casos, obteniendo relaciones dentro del intervalo de aceptación para todas las energías en cada geometría de muestra (Tabla 3-11, Tabla 3-12 y Tabla 3-13). El nuevo radio interno del núcleo que corresponde a este volumen de 189.86 cm³ se fija en 7.5 mm.

Tabla 3-11. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm³; Muestra: 15 ml

		Muestra de 15 ml		
Radionúclido	E (keV)	Volumen del cristal (cm ³)		
		197.02	192.49	189.86
²⁴¹ Am	59.54	0.992 (0.012)	0.993 (0.012)	0.993 (0.012)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.003 (0.025)	1.001 (0.025)	0.996 (0.025)
⁵⁷ Co	122.06	1.029 (0.017)	1.017 (0.016)	1.006 (0.016)
¹¹³ Sn	391.69	1.070 (0.018)	1.022 (0.018)	0.992 (0.017)
⁸⁵ Sr	513.99	1.070 (0.020)	1.014 (0.019)	0.976 (0.018)
¹³⁷ Cs	661.66	1.072 (0.022)	1.008 (0.020)	0.970 (0.019)
⁵⁴ Mn	834.83	1.084 (0.014)	1.014 (0.013)	0.971 (0.012)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.113 (0.022)	1.034 (0.020)	0.987 (0.019)

Tabla 3-12. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm³; Muestra: 100 ml

Muestra de 100 ml				
Radionúclido	E (keV)	Volumen del cristal (cm ³)		
		197.02	192.49	189.86
²⁴¹ Am	59.54	0.996 (0.013)	0.993 (0.013)	0.992 (0.013)
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.993 (0.026)	0.993 (0.026)	0.988 (0.025)
⁵⁷ Co	122.06	1.030 (0.019)	1.012 (0.019)	1.018 (0.019)
¹¹³ Sn	391.69	1.079 (0.020)	1.037 (0.019)	1.008 (0.018)
⁸⁵ Sr	513.99	1.120 (0.022)	1.060 (0.021)	1.038 (0.020)
¹³⁷ Cs	661.66	1.038 (0.022)	0.988 (0.021)	0.952 (0.020)
⁵⁴ Mn	834.83	1.077 (0.015)	1.013 (0.014)	0.974 (0.014)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.097 (0.022)	1.022 (0.020)	0.981 (0.020)

Tabla 3-13. Ratios eficiencia simulada/experimental (Incertidumbre, entre paréntesis); Caso base: 197 cm³; Muestra: Marinelli de 500 ml

Marinelli de 500 ml				
Radionúclido	E (keV)	Volumen del cristal (cm ³)		
		197.02	192.49	189.86
²⁴¹ Am	59.54	1.016 (0.013)	1.017 (0.013)	1.017 (0.013)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.059 (0.027)	1.059 (0.027)	1.055 (0.027)
⁵⁷ Co	122.06	1.053 (0.018)	1.047 (0.018)	1.047 (0.018)
¹¹³ Sn	391.69	1.068 (0.020)	1.032 (0.020)	1.009 (0.019)
⁸⁵ Sr	513.99	-	-	-
¹³⁷ Cs	661.66	1.079 (0.024)	1.024 (0.022)	1.009 (0.022)
⁵⁴ Mn	834.83	1.119 (0.018)	1.052 (0.017)	1.019 (0.016)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.134 (0.024)	1.057 (0.022)	1.019 (0.021)

3.4.1.6 *Distancia Ventana-Cristal*

La distancia ventana a cristal modifica el ángulo sólido entre la muestra y el cristal. Este parámetro afecta a todo el intervalo de energía, disminuyendo la eficiencia con el aumento de la distancia. El valor para el caso base de la distancia de la ventana al cristal (proporcionada por el fabricante) es de 4 mm. La Tabla 3-14, Tabla 3-15 y Tabla 3-16 muestran los ratios de las eficiencias obtenidas al variar este parámetro entre el 5% y el 25% sobre las eficiencias calculadas en el Apartado 3.4.1.5. Un aumento del 25% (1 mm) en la distancia ventana-cristal, disminuye la eficiencia del sistema en 5%, 4% y 2% para las muestras de 15 ml, 100 ml y 500 ml, respectivamente. Se puede afirmar que la eficiencia de la geometría de muestra de 15 ml es más sensible a las variaciones en este parámetro.

Tabla 3-14. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: 15 ml

		Muestra de 15 ml		
Radionúclido	E (keV)	+5%	+15%	+25%
²⁴¹ Am	59.54	99.1 (0.8)	97.2 (0.8)	95.5 (0.8)
¹⁰⁹ Cd	88.03	99.2 (1.1)	97.3 (1.1)	95.3 (1.0)
⁵⁷ Co	122.06	99.2 (1.2)	97.3 (1.2)	95.4 (1.1)
¹¹³ Sn	391.69	99.0 (1.3)	97.1 (1.2)	95.2 (1.2)
⁸⁵ Sr	513.99	99.3 (1.3)	97.4 (1.2)	95.5 (1.2)
¹³⁷ Cs	661.66	99.2 (1.3)	97.2 (1.3)	95.2 (1.3)
⁵⁴ Mn	834.83	99.4 (1.4)	97.3 (1.4)	95.5 (1.4)
⁶⁵ Zn	1115.52	99.3 (1.7)	97.6 (1.7)	95.7 (1.7)

Tabla 3-15. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: 100 ml

Radionúclido	E (keV)	Muestra de 100 ml		
		+5%	+15%	+25%
²⁴¹ Am	59.54	99.7 (1.1)	98.4 (1.1)	97.3 (1.1)
¹⁰⁹ Cd	88.03	99.8 (1.5)	98.0 (1.5)	96.6 (1.4)
⁵⁷ Co	122.06	98.3 (1.7)	98.3 (1.7)	96.7 (1.7)
¹¹³ Sn	391.69	99.5 (1.5)	97.9 (1.5)	96.4 (1.5)
⁸⁵ Sr	513.99	99.3 (1.5)	97.7 (1.5)	96.2 (1.5)
¹³⁷ Cs	661.66	99.6 (1.6)	98.0 (1.6)	96.6 (1.5)
⁵⁴ Mn	834.83	98.8 (1.7)	98.3 (1.7)	96.4 (1.6)
⁶⁵ Zn	1115.52	99.3 (1.9)	97.4 (1.8)	96.1 (1.8)

Tabla 3-16. Ratios (%) entre eficiencias simuladas al variar la distancia ventana-cristal (Incertidumbre, entre paréntesis). Muestra: Marinelli de 500 ml

Radionúclido	E (keV)	Marinelli de 500 ml		
		+5%	+15%	+25%
²⁴¹ Am	59.54	96.8 (1.0)	96.2 (1.0)	95.6 (0.9)
¹⁰⁹ Cd	88.03	98.8 (1.6)	98.3 (1.5)	97.2 (1.5)
⁵⁷ Co	122.06	99.0 (1.5)	97.8 (1.4)	97.0 (1.4)
¹¹³ Sn	391.69	99.6 (1.7)	98.7 (1.7)	98.0 (1.7)
⁸⁵ Sr	513.99	-	-	-
¹³⁷ Cs	661.66	99.6 (1.8)	98.9 (1.8)	99.0 (1.8)
⁵⁴ Mn	834.83	99.6 (2.0)	98.9 (1.9)	98.7 (1.9)
⁶⁵ Zn	1115.52	99.7 (2.1)	99.3 (2.1)	98.7 (2.1)

3.4.1.7 Modelo optimizado

A continuación, se presenta un modelo del detector HPGe GMX-40 optimizado hasta los 1115.5 keV, energía correspondiente al fotopico de ⁶⁵Zn. Los principales parámetros optimizados con la metodología presentada se listan en la Tabla 3-17.

Tabla 3-17. Parámetros optimizados

Parámetros	Valores optimizados
Capa inactiva de Ge superior	45 μm
Capa inactiva de Ge bordes	25 μm
Capa inactiva de Ge lateral	130 μm
Capa inactiva de Ge inferior	130 μm
Capa inactiva de Ge del núcleo interno	1.7 mm
Volumen del cristal de Ge	189.9 cm^3
Distancia ventana-cristal	4.0 mm

La Tabla 3-18 muestra las ratios de eficiencia simulada/experimental finales. En todos los casos los resultados muestran valores dentro del intervalo de aceptación [0.95, 1.05].

Tabla 3-18. Ratios eficiencia simulada/experimental finales hasta 1115.5 keV (Incertidumbre, entre paréntesis)

Radionúclido	E (keV)	15 ml	100 ml	500 ml
²⁴¹ Am	59.54	0.99 (0.01)	0.99 (0.01)	1.02 (0.01)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.00 (0.02)	0.99 (0.03)	1.05 (0.03)
⁵⁷ Co	122.06	1.01 (0.02)	1.02 (0.02)	1.05 (0.02)
¹¹³ Sn	391.69	0.99 (0.02)	1.01 (0.02)	1.01 (0.02)
⁸⁵ Sr	513.99	0.98 (0.02)	1.04 (0.02)	-
¹³⁷ Cs	661.66	0.97 (0.02)	0.95 (0.02)	1.01 (0.02)
⁵⁴ Mn	834.83	0.97 (0.01)	0.97 (0.01)	1.02 (0.01)
⁶⁵ Zn	1115.52	0.99 (0.02)	0.98 (0.02)	1.02 (0.02)

Para extender la validez del modelo hasta los 1836 keV del ⁸⁸Y, deben aplicarse los TSCFs a las eficiencias experimentales. En la sección 4.1, se expone la metodología seguida para calcularlos, junto con los resultados, y diferentes alternativas y aplicaciones. Se muestran, a continuación, los resultados del proceso de caracterización, ya extendidos hasta los 1836 keV (Tabla 3-19), siguiendo con el paso final de la metodología presentada en la Figura 3.10.

Se aplican los TSCFs obtenidos (Tabla 4-1) a las eficiencias experimentales (Expresión 4.6) para validar finalmente el modelo. Las tres geometrías de muestra presentan ratios entre [0.95, 1.05], por lo que no es necesario recalcular ningún parámetro.

Tabla 3-19. Ratios obtenidas con el modelo final optimizado, extendido hasta los 1836 keV (Incertidumbre, entre paréntesis)

Radionúclido	E (keV)	15 ml Petri	100 ml Petri	500 ml Marinelli
²⁴¹ Am	59.54	0.99 (0.01)	0.99 (0.01)	1.02 (0.01)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.00 (0.02)	0.99 (0.03)	1.05 (0.03)
⁵⁷ Co	122.06	1.01 (0.02)	1.02 (0.02)	1.05 (0.02)
¹³⁹ Ce	165.86	0.99 (0.02)	1.02 (0.02)	1.04 (0.02)
¹¹³ Sn	391.69	0.99 (0.02)	1.01 (0.02)	1.01 (0.02)
⁸⁵ Sr	513.99	0.98 (0.02)	1.04 (0.02)	-
¹³⁷ Cs	661.66	0.97 (0.02)	0.95 (0.02)	1.01 (0.02)
⁵⁴ Mn	834.83	0.97 (0.01)	0.97 (0.01)	1.02 (0.01)
⁸⁸ Y	898.02	-	0.98 (0.01)	0.95 (0.01)
⁶⁵ Zn	1115.52	0.99 (0.02)	0.98 (0.02)	1.02 (0.02)
⁶⁰ Co	1173.24	0.96 (0.01)	0.98 (0.01)	1.00 (0.02)
⁶⁰ Co	1332.50	0.99 (0.01)	0.98 (0.01)	1.01 (0.02)
⁸⁸ Y	1836.01	1.01 (0.02)	0.96 (0.02)	0.95 (0.02)

3.4.2 Detector BEGe 5030

A continuación, se presentan los resultados de la validación del modelo del detector BEGe-5030.

La imagen obtenida con el método SALSA ha permitido diferenciar regiones inactivas del volumen del cristal, en particular la zona de las esquinas inferiores. Además, gracias a las fuentes puntuales se puede reducir incertidumbres originadas al preparar la muestra y al dimensionar y modelar las fuentes. Por todo esto, el proceso de caracterización geométrica de este detector ha resultado menos complejo que con el GMX-40.

3.4.2.1 Eficiencias del caso base

La Figura 3.16 muestra las curvas de eficiencia experimentales de las dos muestras volumétricas que se han utilizado en la caracterización del detector, además de las fuentes puntuales. Cuanto más extensa es la fuente, menor eficiencia presenta en todo el intervalo de energía, con una mayor repercusión a energías bajas (59.54 keV – 122 keV).

La Tabla 3-20 presenta las ratios de eficiencia simulada sobre experimental para estas dos fuentes, presentando valores superiores al límite superior de aceptación de 1.05 a partir de los 661 keV para la muestra de 5ml y en todo el intervalo de energía para la muestra de 100 ml. A pesar de que para la muestra de 5 ml las ratios a bajas energías sí que entran dentro de los límites de aceptación, no lo hacen para la de 100 ml. Es por ello por lo que se procede a ajustar el espesor de la capa inactiva superior a fin de que ambas geometrías presenten ratios adecuados, teniendo en cuenta que el valor final no debería de ser muy superior al del fabricante ($0.4 \mu\text{m}$). De un modo similar, el volumen también necesita una caracterización más detallada, viéndose afectado por el espesor de la capa inactiva lateral e inferior, las cuales presentan valores relativamente altos en este tipo de detector (Zeng et al. 2016).

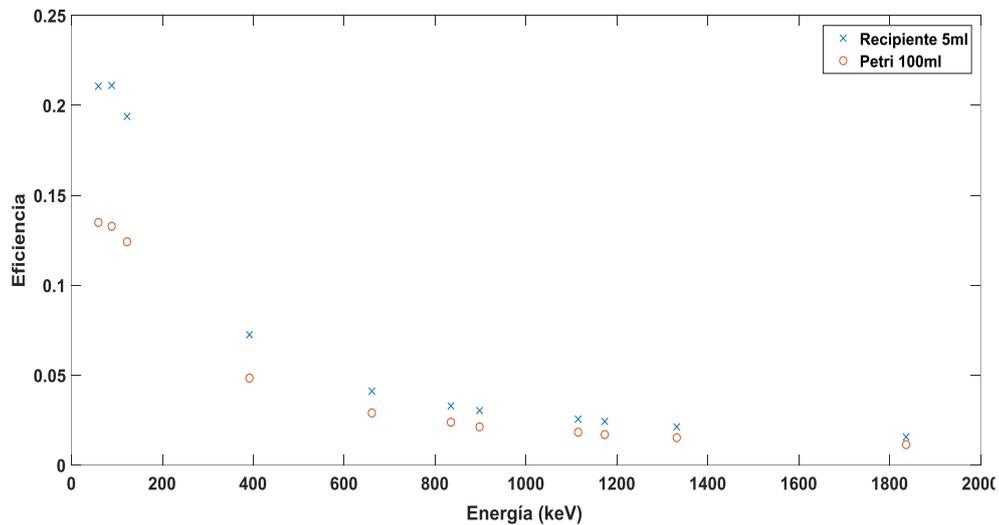


Figura 3.16. Eficiencias de foto-pico experimentales; Posición: top

Tabla 3-20. Ratios de eficiencias simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis)

Radionúclido	E (keV)	5 ml - Top	100 ml - Top
²⁴¹ Am	59.54	1.04 (0.013)	1.07 (0.014)
¹⁰⁹ Cd	88.03	1.02 (0.031)	1.06 (0.032)
⁵⁷ Co	122.06	1.03 (0.015)	1.06 (0.015)
¹¹³ Sn	391.69	1.04 (0.016)	1.10 (0.016)
¹³⁷ Cs	661.66	1.11 (0.026)	1.12 (0.026)
⁵⁴ Mn	834.83	1.11 (0.011)	1.12 (0.011)
⁸⁸ Y	898.02	1.14 (0.011)	1.13 (0.011)
⁶⁵ Zn	1115.52	1.11 (0.026)	1.14 (0.027)
⁶⁰ Co	1173.24	1.12 (0.006)	1.16 (0.006)
⁶⁰ Co	1332.50	1.13 (0.006)	1.16 (0.006)
⁸⁸ Y	1836.01	1.16 (0.009)	1.20 (0.010)

3.4.2.2 Capa inactiva frontal

La capa inactiva frontal se ha analizado empleando la fuente puntual de ²⁴¹Am, situada a 6 cm y a 11 cm de altura sobre la ventana del detector. Con un espesor de 5 µm, se obtienen ratios dentro del intervalo de aceptación. Una vez se ha ajustado su valor, se ha comparado con los valores experimentales del ²⁴¹Am, ⁵⁷Co y ¹²²Cd (59.5 keV, 88.0 keV y 122.1 keV, respectivamente) de la muestra con 5 ml de patrón multigamma. La muestra experimental se ha situado en la posición *top* y a 6 cm de distancia. La Tabla 3-21 lista los resultados obtenidos.

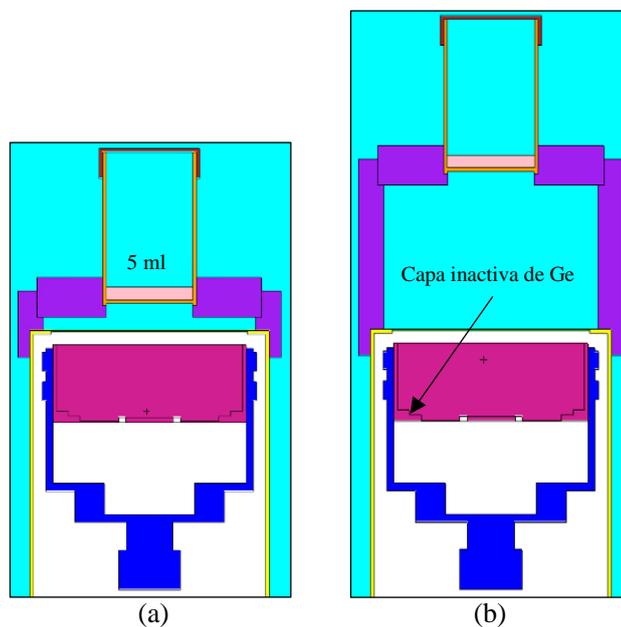


Figura 3.17. Modelo del detector BEGe-5030. (a) posición top. (b) 6 cm de altura.

Tabla 3-21. Ratios eficiencias simuladas sobre experimentales (Incertidumbre, entre paréntesis); Capa inactiva frontal (59.5 keV – 122.1 keV)

Configuración	Radionúclido	Ratio
Puntual – 6 cm	^{241}Am	0.99 (0.012)
Puntual – 11 cm	^{241}Am	0.99 (0.012)
Muestra 5 ml - top	^{241}Am	1.00 (0.013)
	^{57}Co	0.97 (0.029)
	^{122}Cd	0.98 (0.014)
Muestra 5 ml - 6 cm	^{241}Am	0.98 (0.012)
	^{57}Co	0.97 (0.029)
	^{122}Cd	0.98 (0.014)

3.4.2.3 Modelo optimizado

A continuación, se presenta un modelo del detector BEGe-5030 optimizado hasta los 1836.01 keV del ⁸⁸Y. La Tabla 3-22 lista los parámetros geométricos finales.

Del mismo modo que con el detector GMX-40, se han calculado los factores de corrección por pico suma (TSCFs) con el fin de poder validar el modelo para ⁸⁸Y y ⁶⁰Co, hasta los 1836 keV. Los TSCFs se han calculado con TRUECOINC de manera análoga que con el GMX-40. En el Apartado 4.1.3 se presentan los TSCFs obtenidos.

La Tabla 3-23, Tabla 3-24 y Tabla 3-25 listan las ratios obtenidas con el modelo optimizado para las dos fuentes volumétricas y las puntuales. Se incluyen los resultados a diferentes distancias sobre el detector. Se obtienen ratios dentro de los límites de aceptación [0.95, 1.05].

Tabla 3-22. Parámetros optimizados

Parámetros	Valores optimizados
Capa inactiva de Ge superior	5 µm
Capa inactiva de Ge lateral	2.0 mm
Capa inactiva de Ge inferior	1.0 mm
Capa inactiva de Ge esquinas inf. (valor medio); altura x espesor	3.5 x 9 mm
Distancia ventana-cristal	5.0 mm

Tabla 3-23. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Recipiente 5 ml y Petri 100 ml. Posición top y a 6 cm.

Radionúclido	E (keV)	5 ml - Top	5 ml - 6 cm	100 ml - Top
²⁴¹ Am	59.54	1.00 (0.013)	0.98 (0.012)	1.00 (0.013)
¹⁰⁹ Cd	88.03	0.97 (0.029)	0.97 (0.029)	0.99 (0.030)
⁵⁷ Co	122.06	0.98 (0.014)	0.98 (0.014)	1.00 (0.014)
¹¹³ Sn	391.69	0.95 (0.014)	0.97 (0.014)	0.99 (0.015)
¹³⁷ Cs	661.66	0.99 (0.023)	0.98 (0.023)	0.99 (0.023)
⁵⁴ Mn	834.83	0.99 (0.010)	0.98 (0.010)	0.98 (0.010)
⁸⁸ Y	898.02	1.02 (0.010)	0.97 (0.010)	1.03 (0.010)
⁶⁵ Zn	1115.52	0.98 (0.024)	0.98 (0.023)	1.00 (0.024)
⁶⁰ Co	1173.24	1.00 (0.005)	1.02 (0.005)	1.00 (0.005)
⁶⁰ Co	1332.50	1.01 (0.005)	1.02 (0.005)	1.02 (0.005)
⁸⁸ Y	1836.01	1.02 (0.008)	1.00 (0.008)	1.03 (0.008)

Tabla 3-24. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Fuente puntual situada a 6 cm de altura.

Radionúclido	E (keV)	Puntual – 6 cm
²⁴¹ Am	59.54	0.99 (0.012)
¹³⁷ Cs	661.66	1.00 (0.021)
⁶⁰ Co	1173.24	1.01 (0.005)
⁶⁰ Co	1332.50	1.01 (0.005)

Tabla 3-25. Ratios con el modelo final (Incertidumbre, entre paréntesis). Fuente puntual situada a 11 cm de altura

Radionúclido	E (keV)	Puntual – 11 cm
²⁴¹ Am	59.54	0.99 (0.012)
¹³³ Ba	276.40	1.02 (0.014)
¹³³ Ba	302.85	1.01 (0.013)
¹³³ Ba	356.01	1.00 (0.014)
¹³³ Ba	383.85	1.00 (0.014)
¹³⁷ Cs	661.66	1.00 (0.021)
⁶⁰ Co	1173.24	1.01 (0.006)
⁶⁰ Co	1332.50	1.01 (0.006)

3.5 Intercomparación con GEANT4

Este apartado se centra en simular el modelo optimizado del detector HPGe GMX-40 obtenido mediante la metodología presentada en la Sección 3.3.1, con el conjunto de herramientas de GEANT4. Se pretende comparar los resultados finales calculados por ambos métodos de Monte Carlo, pudiendo validar dicho modelo, no únicamente con los resultados experimentales, sino entre códigos.

La comparación se realiza para las tres geometrías de muestra empleadas en la caracterización del detector y se incluye, además, otras dos matrices de diferente composición y densidad (arena de mar y arena de Zr) en la geometría de 100 ml. De este modo, se puede validar el modelo para muestras diferentes a las utilizadas en el proceso de caracterización. Se ha utilizado el mismo patrón multigamma (Tabla 3-1), distribuido homogéneamente en la muestra. La composición de dichas matrices (Tabla 3-26) se ha

analizado mediante microscopía electrónica para reducir la incertidumbre debida a elementos que pudieran distorsionar la eficiencia a bajas y medias energías principalmente.

Tabla 3-26. Composición y densidad de las matrices de arena de mar y arena de Zr

	Arena de mar	Arena de Zr
Dióxido de Silicio	86.57%	57.33%
Calcio	11.48%	-
Aluminio	1.95%	-
Zirconio	-	42.67%
Densidad	1.65 g/cm ³	3.5 g/cm ³

La principal diferencia entre ambos códigos reside en la posibilidad de considerar el efecto de suma por coincidencia con GEANT4 al simular la desintegración de los radionúclidos y, por tanto, la misma fenomenología que aparece en el experimento. Esto implica que las eficiencias obtenidas son completamente comparables con las experimentales, mientras que MCNP6 necesita otra herramienta (como TRUECOINC) para calcular los TSCFs y corregir las eficiencias.

Del mismo modo que con MCNP6, se ha simulado el multicanal de 8192 canales para energías entre 0 keV y 2040 keV. Se ha aplicado un corte para partículas secundarias con un recorrido libre medio inferior a 10 μm . Los errores estadísticos obtenidos han sido inferiores al 1.5%. Por otro lado, las simulaciones de GEANT4 no incluyen la resolución del detector como en MCNP6, por lo que las cuentas registradas para cada energía se han recogido en un único canal, correspondiente a la energía del fotopico simulado.

La Figura 3.18 muestra las eficiencias experimentales de las cinco muestras estudiadas. La matriz de arena de Zr en la geometría de 100 ml (densidad de 3.5 g/cm³), presenta las eficiencias más bajas, especialmente para bajas energías y en particular para el ²⁴¹Am. La arena de mar en cambio, con una densidad más cercana a la del agua, 1.65 g/cm³, muestra eficiencias similares a esta última, aunque ligeramente más bajas.

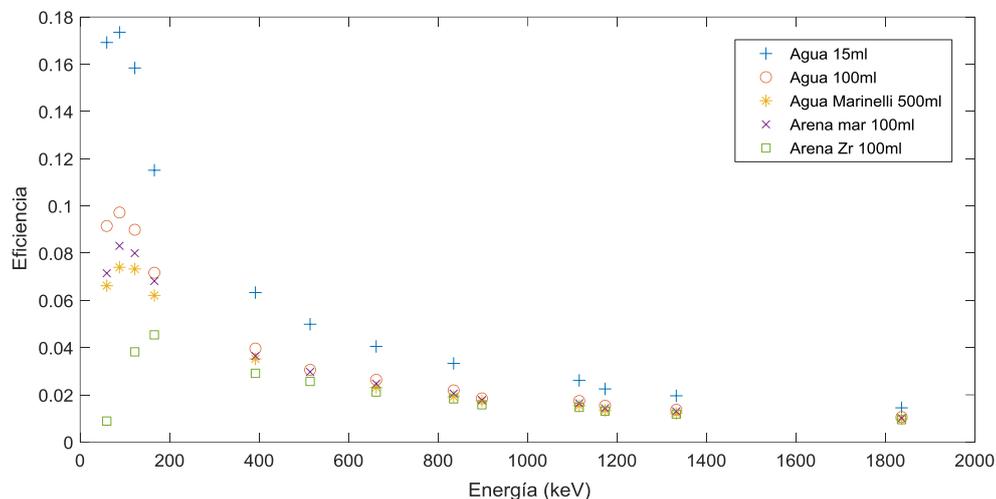


Figura 3.18. Eficiencias experimentales

En la Tabla 3-27 se resumen los resultados para las tres muestras de agua analizadas. Puede observarse que las ratios obtenidas con GEANT4 son prácticamente coincidentes con las de MCNP6.

Tabla 3-27. Ratios eficiencias simulada/experimental; Comparación MCNP6 y GEANT4; Matrices de agua

Radionúclido	E (keV)	Agua 15 ml		Agua 100 ml		Agua 500ml	
		MCNP6	GEANT4	MCNP6	GEANT4	MCNP6	GEANT4
²⁴¹ Am	59.5	0.99	0.99	0.99	0.98	1.02	1.02
¹⁰⁹ Cd	88.0	1.00	0.99	0.99	0.98	1.05	1.06
⁵⁷ Co	122.1	1.01	1.01	1.02	1.01	1.05	1.07
¹³⁹ Ce	165.9	0.99	1.05	1.02	1.03	1.04	1.04
¹¹³ Sn	391.7	0.99	0.99	1.01	0.99	1.01	1.03
⁸⁵ Sr	514.0	0.98	0.98	1.04	1.02	-	-
¹³⁷ Cs	661.7	0.97	0.97	0.95	0.97	1.01	1.02
⁵⁴ Mn	834.8	0.97	0.97	0.97	0.96	1.02	1.03
⁸⁸ Y	898.0	-	-	0.98	0.97	0.95	0.97
⁶⁵ Zn	1115.5	0.99	0.98	0.98	0.98	1.02	1.03
⁶⁰ Co	1173.2	0.96	0.95	0.98	0.96	1.00	1.03
⁶⁰ Co	1332.5	0.99	0.98	0.98	0.97	1.01	1.04
⁸⁸ Y	1836.0	1.01	0.99	0.96	0.96	0.95	0.98

La Tabla 3-28 resume los resultados para las muestras de arena. Los resultados de la arena de mar son coherentes con los experimentales para todo el intervalo de energía, teniendo en cuenta la limitación de MCNP6. La arena de Zr presenta buenos resultados, con ratios dentro del intervalo de aceptación, excepto para el ^{113}Sn en el caso de GEANT4.

Tabla 3-28. Ratios eficiencias simulada/experimental; Comparación MCNP6 y GEANT4; Matrices de arena

Radionúclido	E (keV)	Arena Mar 100 ml		Arena Zr 100 ml	
		MCNP6	GEANT4	MCNP6	GEANT4
^{241}Am	59.5	1.02	1.00	1.04	1.01
^{109}Cd	88.0	1.03	1.02	-	-
^{57}Co	122.1	1.04	1.04	1.05	1.05
^{139}Ce	165.8	1.05	1.04	1.05	1.04
^{113}Sn	391.7	1.05	1.03	1.07	1.06
^{85}Sr	514.0	0.97	1.00	0.99	0.98
^{137}Cs	661.7	0.99	0.98	0.99	0.99
^{54}Mn	834.8	1.00	0.99	0.98	0.98
^{88}Y	898.0	0.98	0.97	0.99	0.96
^{65}Zn	1115.5	1.02	1.00	1.00	0.99
^{60}Co	1173.2	1.01	1.00	0.98	0.97
^{60}Co	1332.5	1.00	0.98	0.99	0.97
^{88}Y	1836.0	0.96	0.97	0.97	0.95

3.6 Conclusiones

Se ha desarrollado un modelo simplificado del detector HPGe GMX-40 con bordes rectos para estudiar el efecto de la forma del cristal sobre la eficiencia del sistema y se ha comparado con uno más realista con bordes redondeados. Los resultados muestran que el modelo simplificado sobreestima las eficiencias en el intervalo de energía estudiado debido al incremento del volumen activo que introducen las esquinas. Con el modelo realista y utilizando las tres geometrías de muestra (15 ml, 100 ml y 500 ml) ha sido posible caracterizar el espesor de la capa inactiva externa (superior, bordes, lateral e inferior) analizando la eficiencia del ^{241}Am (59.54 keV). El volumen del cristal de germanio y la capa inactiva del núcleo interior afectan ambas a las energías medias y altas, no pudiendo asegurar sus valores reales sin ninguna otra técnica, como una radiografía de alta resolución. Sin embargo, ha sido posible obtener resultados aceptables llegando a un compromiso entre ambos parámetros.

Además del código MCNP6, el modelo final optimizado también se ha reproducido con el conjunto de herramientas GEANT4. A parte de las muestras con matrices de agua, se han añadido dos más con la geometría de 100 ml, una de arena de mar y otra de arena de Zr cuyas composiciones químicas se han analizado mediante microscopía electrónica. De este modo es posible ampliar la validación del modelo al comparar las eficiencias obtenidas con MCNP6 con las de GEANT4 y en una segunda comparación con matrices que no se han empleado durante el proceso de caracterización del detector HPGe GMX-40.

La caracterización geométrica del detector BEGe-5030 se ha realizado partiendo de los resultados obtenidos al analizar la respuesta eléctrica del cristal mediante el método SALSA. Esta técnica ha permitido reducir incertidumbres del volumen activo del cristal de germanio y proveer información sobre la zona inactiva localizada en las esquinas inferiores del cristal. Con estos datos como base, el caracterizado final se ha desarrollado empleando fuentes puntuales (^{241}Am para caracterizar la capa inactiva frontal y ^{137}Cs , ^{133}Ba y ^{60}Co para terminar de caracterizar el volumen activo del cristal) y volumétricas (5 ml y 100 ml) que se han posicionado a tres distancias diferentes: posición *top*, 6 cm y 11 cm, cubriendo un amplio intervalo de energía.

Capítulo 4

Aplicaciones de los modelos de simulación para espectrometría gamma

4.1 Obtención de los factores de Corrección por Pico Suma (TSCFs)

4.1.1 *Introducción*

Una de las aplicaciones más comunes de la espectrometría gamma es la cuantificación de la actividad en muestras ambientales que contienen radionúclidos naturales tales como el ^{238}U y el ^{232}Th . A menudo, estos radionúclidos están en equilibrio secular con su progenie y, por lo tanto, es posible cuantificar su actividad midiendo aquellos radionúclidos emisores gamma pertenecientes a sus respectivas cadenas de desintegración. No obstante, algunos de ellos emiten fotones en cascada dando lugar al efecto de suma por coincidencia. Para obtener la actividad real, se deben aplicar los factores de corrección por pico suma (TSCFs) (Morel et al. 1983).

Las muestras ambientales suelen contener fuentes radiactivas de baja actividad, lo que requiere detectores HPGe con geometrías muestra-detector cercanas, maximizando la

eficiencia del sistema. Sin embargo, esta configuración aumenta el efecto de suma por coincidencia, por lo que la consideración de los TSCFs en estas circunstancias es obligatoria (Debertin y Schötzig 1979; García-Talavera et al. 2001).

El objetivo de esta parte del trabajo es aplicar el método de Monte Carlo para calcular los TSCFs para las series de desintegración naturales del ^{238}U y del ^{232}Th y para diferentes muestras (geometría y matriz) utilizando el conjunto de herramientas Monte Carlo GEANT4 (Agostinelli et al. 2003) junto con el Módulo de Desintegración Radiactiva (RDM) (Truscott 2002), siguiendo la metodología propuesta por Hurtado en 2004 (Hurtado et al. 2004).

Por otro lado, se calculan los TSCFs que aplican a la corrección de las eficiencias experimentales de ^{139}Ce , ^{60}Co y ^{88}Y para validar los modelos de detectores presentados en el Capítulo 3 hasta los 1836.0 keV mediante el programa determinista TRUECOINC.

4.1.2 Materiales y métodos

4.1.2.1 Cadenas de desintegración del ^{238}U y ^{232}Th

Del conjunto de elementos, con emisiones gamma, pertenecientes a las series del ^{238}U y del ^{232}Th , no todos son medibles directamente en la práctica, ya sea porque sus emisiones gamma son demasiado débiles o con una energía muy baja o porque se superponen con los foto-picos de otros radionúclidos.

Con respecto a la cadena de desintegración del ^{238}U (Figura 4.1), existen radionúclidos emisores gamma como el ^{234}Th y el $^{234}\text{Pa}^m$, pero ambos presentan altas incertidumbres al medirlos mediante espectrometría gamma. Sin embargo, dentro de su cadena se encuentra el ^{214}Bi , que sí que resulta adecuado para ser medido debido a sus intensas emisiones (609.3 keV y 1120.3 keV). No obstante, ambos fotones tienen efecto de suma por coincidencia, siendo necesario aplicar TSCFs. Otro candidato es el ^{214}Pb , que no presenta dicho efecto.

En un sistema cerrado, el ^{214}Pb y el ^{214}Bi alcanzan el equilibrio secular con el ^{226}Ra en un mes, por lo tanto, la actividad del ^{226}Ra se puede obtener a partir de ellos. Suponiendo que el ^{226}Ra también está en equilibrio secular con el ^{238}U , al menos en matrices sólidas, se puede estimar la actividad del precursor.

En la cadena de desintegración del ^{232}Th (Figura 4.2), el ^{212}Bi y el ^{208}Tl son adecuados para ser medidos teniendo en cuenta sus principales emisiones a 727.3 keV y 583.2 keV, respectivamente. Como en el caso anterior, el ^{212}Bi presenta el efecto de suma por coincidencia y se deben calcular los TSCF.

Suponiendo equilibrio secular, se puede obtener la actividad del ^{232}Th a partir de estos radionúclidos y, por lo tanto, se puede estimar la actividad del precursor.

El cálculo de los TSCFs se ha realizado con el conjunto de herramientas Monte Carlo de GEANT4. Para validar los resultados se utiliza el programa determinista TRUECOINC.

Para estudiar la influencia de la densidad de la matriz y de la geometría de medida (ángulo sólido muestra-detector) sobre los TSCFs, se ha realizado un test estadístico. En este sentido, se han comparado los resultados de las muestras de 100 ml (agua, arena de mar y arena de Zr) y los resultados para las geometrías de 15 ml, 100 ml y 500 ml en matriz de agua, de acuerdo con la siguiente expresión:

$$U = \frac{|V_1 - V_2|}{\sqrt{u_1^2 + u_2^2}} \sim N(0,1) \quad \text{Expresión 4.1}$$

donde U representa al estadístico utilizado para comparar los TSCFs (V_1, V_2), considerando las incertidumbres asociadas (u_x) al cálculo de Monte Carlo (Brookes, Betteley, y Loxston 1979).

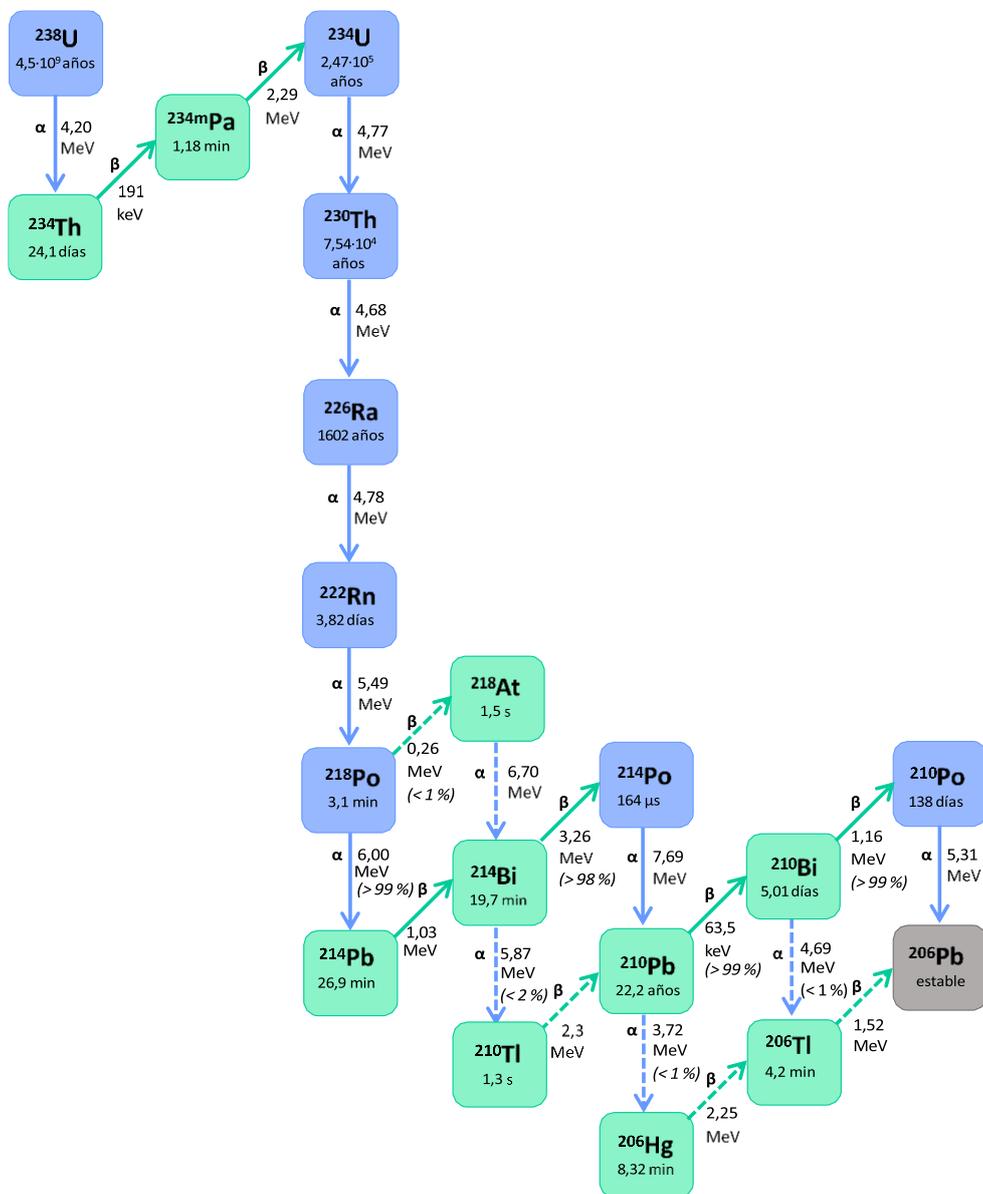


Figura 4.1. Radionúclidos involucrados en la serie natural del ^{238}U con sus modos de desintegración, energías y vidas medias

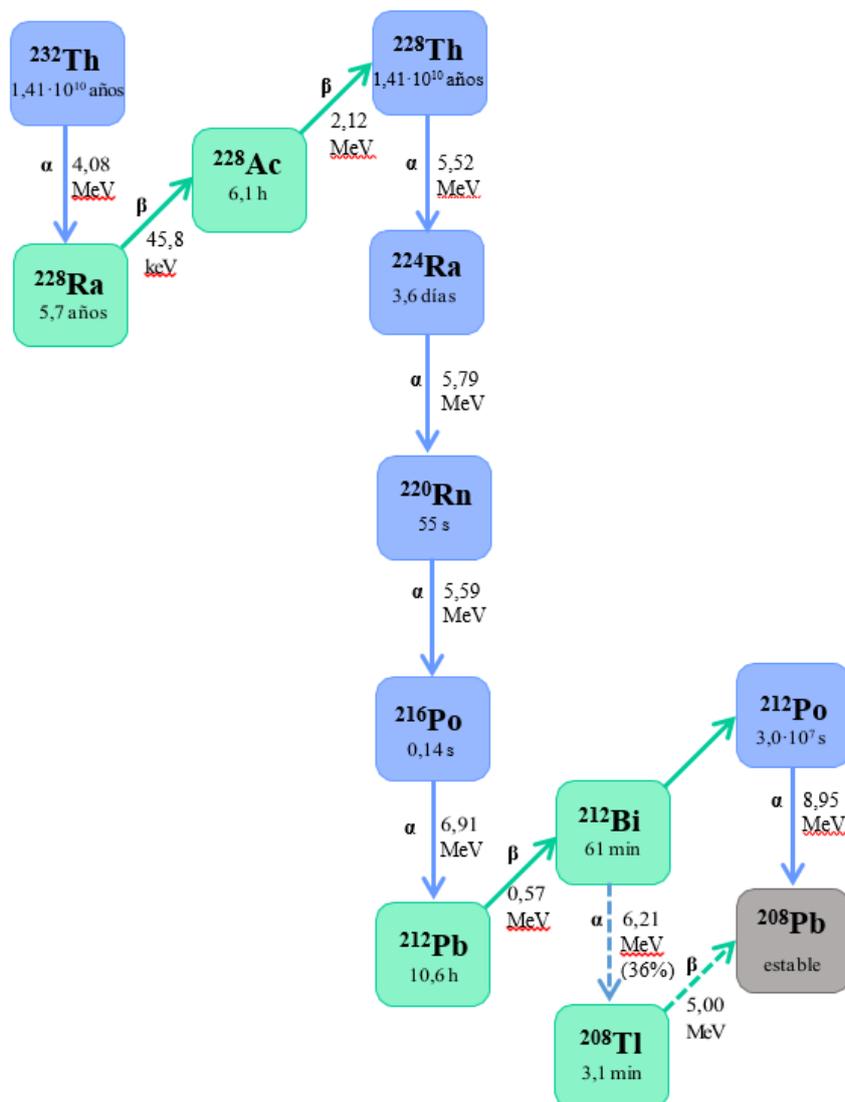


Figura 4.2. Radionúclidos involucrados en la serie natural del ^{232}Th con sus modos de desintegración, energías y vidas medias

4.1.2.2 GEANT4

El conjunto de herramientas GEANT4 (Agostinelli et al. 2003) presenta una programación orientada a objetos que permite elegir entre una amplia gama de procesos físicos o implementarlos de acuerdo con las necesidades del experimento. Los procesos físicos activados en el modelo de detector de este trabajo son los siguientes: producción de electrones Auger, dispersión de Compton y Rayleigh, producción de pares, efecto fotoeléctrico para fotones, procesos de ionización y Bremsstrahlung para partículas secundarias.

Para simular el efecto de suma por coincidencia es necesario simular la desintegración de los radionúclidos de interés. La desintegración de un núcleo inicial debe realizarse de acuerdo con los parámetros físicos que lo rigen: tipo de desintegración, excitación inicial y tiempo de semidesintegración. Se debe producir un núcleo hijo con las propiedades físicas que resultan de la desintegración de su progenitor: número y masa atómicos determinados por el tipo de desintegración, energía de excitación y cinética de desintegración. Se deben generar las partículas secundarias y radiaciones asociadas con el proceso de desintegración (p. ej. emisiones α , β y γ , neutrinos y electrones de conversión), así como la producción de rayos X y electrones Auger debidos a la desexcitación del núcleo hijo. Los cálculos teóricos durante la simulación de los parámetros requeridos no son factibles a nivel práctico y por tanto, es necesario acudir a datos empíricos o previamente calculados (Hauf et al. 2013).

En este contexto, GEANT4 utiliza el *Radioactive decay Module* (clase RDM, G4RadioactiveDecay) (Truscott 2002) para simular las desintegraciones radiactivas utilizando datos de la librería ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Datafile*), (Tuli 2013). Así, es posible simular las cadenas de desintegración y producir las emisiones asociadas (como las presentadas en la Figura 4.1, Figura 4.2, Figura 4.4 y Figura 4.5). La radiación de desexcitación del núcleo hijo no se produce por la simulación de la desintegración radiactiva en sí misma, sino por otros procesos físicos incluidos en GEANT4, que utilizan sus respectivas bases de datos.

Para calcular los factores de corrección, es necesario realizar dos simulaciones diferentes por cada radionúclido de interés. En primer lugar, se simulan fuentes monoenergéticas, obteniendo la eficiencia para una energía dada sin considerar el efecto de suma por coincidencia. Por otro lado, se realiza una segunda simulación usando el módulo RDM, reproduciendo así la desintegración completa del radionúclido y considerando este efecto. Finalmente, los TSCFs se calculan como el cociente del área del foto-pico obtenida en la primera simulación entre el área del foto-pico de la segunda, considerando el *branching ratio* que aplique en cada caso. La Figura 4.3 resume la metodología seguida para el cálculo de los TSCFs.

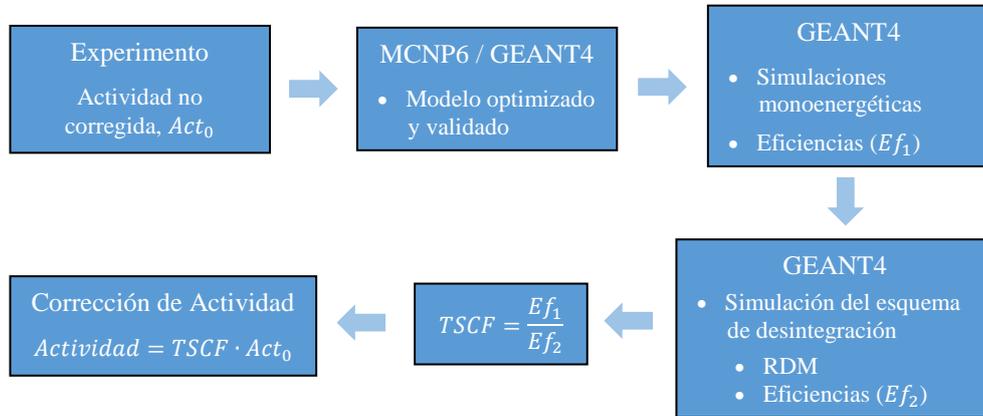


Figura 4.3. Cálculo de los TSCFs con GEANT4

4.1.2.3 TRUECOINC

El programa TRUECOINC (Sudar 2002) se ha utilizado para validar los resultados proporcionados por GEANT4 para las series del ^{238}U y del ^{232}Th , y para validar los modelos de detector definidos en el Capítulo 3. En este último caso se calculan los TSCFs para corregir las eficiencias experimentales del ^{139}Ce , ^{88}Y y ^{60}Co (GMX-40) e ^{88}Y , ^{60}Co y ^{133}Ba (BEGe-5030). Sus respectivos esquemas de desintegración se representan en la Figura 4.4, Figura 4.5 y Figura 4.6.

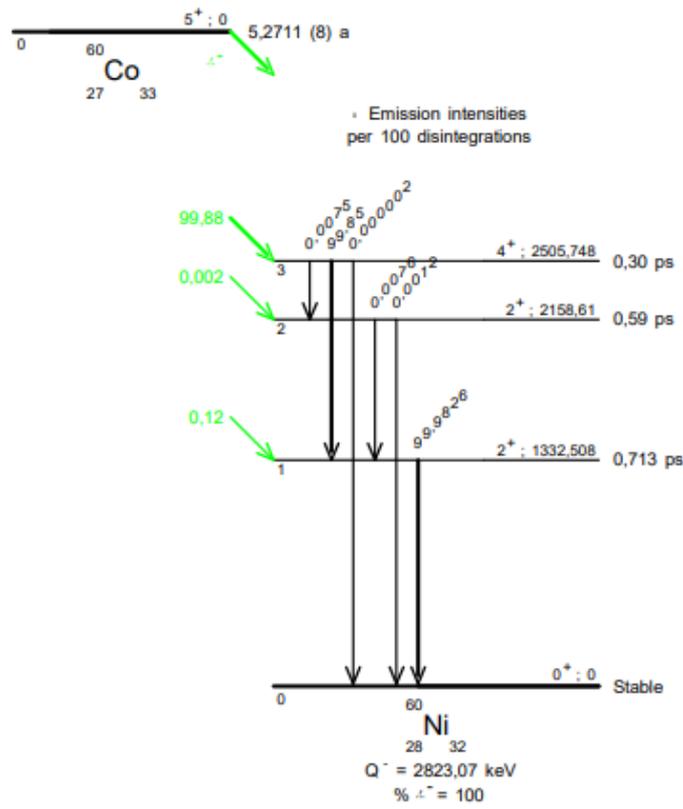


Figura 4.4. Esquema de desintegración del ^{60}Co . Fuente: LNE-LNHB/CEA

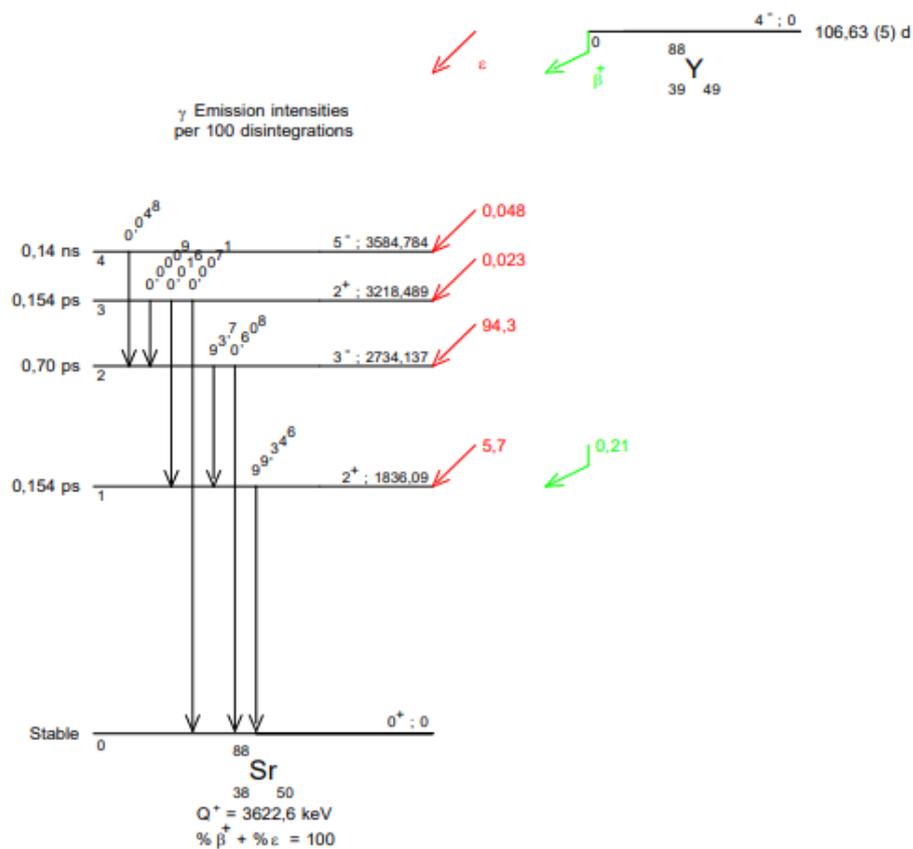


Figura 4.5. Esquema de desintegración del ^{88}Y . Fuente: LNE-LNHB/CEA

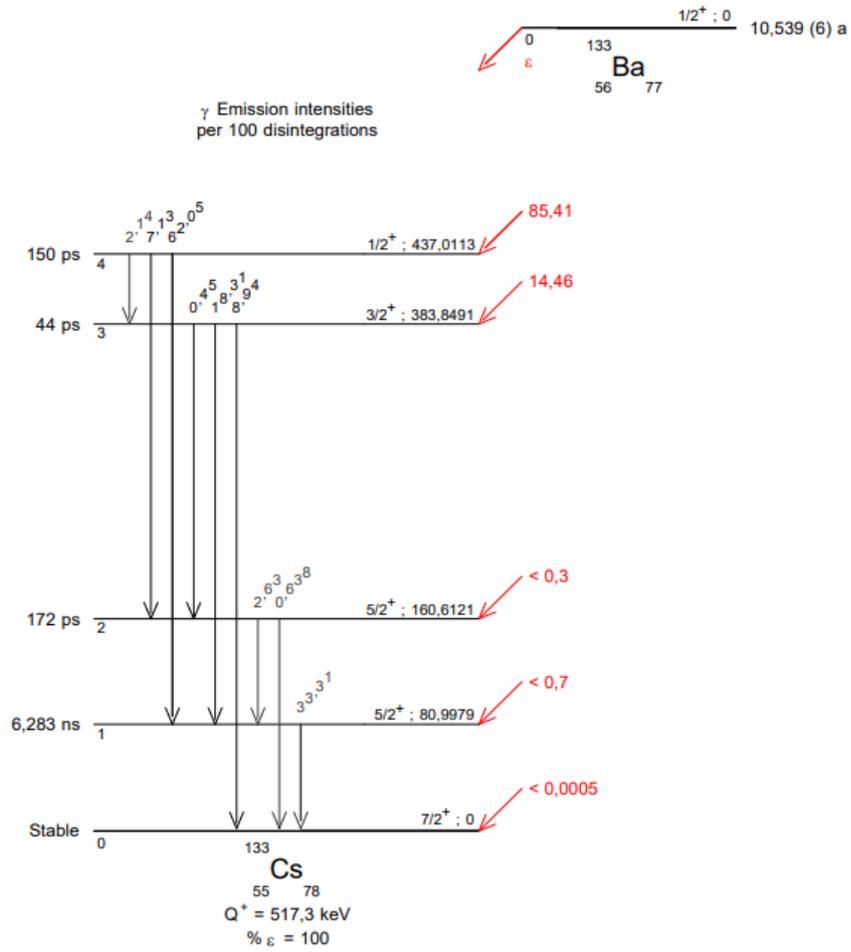


Figura 4.6. Esquema desintegración del ^{133}Ba . Fuente: LNE-LNHB/CEA

TRUECOINC calcula los TSCFs mediante una expresión analítica basada en el método combinatorio realizado por (Daróczy y Raics 1982) en el que se estudia por separado cada posible cascada de desintegración. La tasa de contaje medida I_{γ_0} en el pico correspondiente a la emisión gamma γ_0 es:

$$I_{\gamma_0} = RX_{\gamma_0} \varepsilon_{\gamma_0}^p k_{tc} k_{otro} \quad \text{Expresión 4.2}$$

donde $R, X_{\gamma_0}, \varepsilon_{\gamma_0}^p, k_{tc}, k_{otro}$ representan la tasa de desintegración del isótopo progenitor, la tasa de emisión de γ_0 , la eficiencia de pico (FEPE) del detector para la emisión γ_0 , el TSCF y otros factores de corrección (auto absorción, etc.), respectivamente. El TSCF puede expresarse como el producto del factor de corrección para el efecto *summing out* por el del *summing in* ($k_{tc} = k_{tcl} k_{tcg}$). En (Daróczy y Raics 1982), el factor de corrección para el efecto producido por el *summing out* se expresa como sigue:

$$k_{tcl} = \frac{I_{\gamma_0}}{I_{\gamma_0}^0} = \frac{\sum_{j=1}^{n_0} \beta_i S_i \prod_{j=1, j \neq \gamma_0}^{n_i} \Gamma_{ij} (1 - \varepsilon_{ij}^t)}{\sum_{j=1}^{n_0} \beta_i \prod_{j=1, j \neq \gamma_0}^{n_i} \Gamma_{ij}} \quad \text{Expresión 4.3}$$

donde

- β_i es la relación de ramificación o *branching ratio* de la transición β^- (o β^+, EC, α) para la cascada de desintegración i -ésima,
- S_i es un factor para considerar la emisión de positrones de valor $(1 - 2\varepsilon_{511keV}^t)$ y 1 para EC, α y β^- ,
- Γ_{ij} es la relación de ramificación de la j -ésima transición gamma de la i -ésima cascada,
- ε_{ij}^t es el producto de la eficiencia total y la auto absorción para la energía j -ésima transición gamma de la i -ésima cascada,
- n_0 es el número identificador de la cascada que contiene a la transición γ_0 ,
- n_i es el número identificador de las transiciones gamma de la i -ésima cascada ($i=1, 2, \dots, n_0$).

TRUECOINC parte de la Expresión 4.3 y la extiende para considerar los rayos X procedentes de las capas K y L durante los procesos de captura electrónica (EC) y conversión interna, así como nuevas alternativas para los procesos de EC con la emisión de rayos X y electrones:

$$k_{tcl} = \frac{\sum_{i=1}^{n_0} \beta_i S_i \prod_{j=1}^{n_i} [\Gamma_{ij} (1 - \varepsilon_{ij}^t) + \sum_k \Gamma_{ijk} (1 - \omega_k + \sum_l \delta_{kl} (1 - \varepsilon_l^t))]}{\sum_{j=1}^{n_0} \beta_i \prod_{j=1}^{n_i} [\Gamma_{ij} + \sum_k \Gamma_{ijk} (1 - \omega_k + \sum_l \delta_{kl})]} \quad \text{Expresión 4.4}$$

donde

- Γ_{ijk} es la ratio de conversión de la j-ésima transición mediante la creación de una vacante en la k-ésima capa atómica (K, L1, L2...) de la i-ésima cascada,
- ω_k es la probabilidad de emisión de un electrón de fluorescencia de la k-ésima capa atómica,
- δ_{kl} es la ratio de emisión del l-ésimo rayo X desde la k-ésima capa atómica,
- ε_l^t es el producto de la eficiencia total y la auto absorción para la energía del l-ésimo rayo X $\lambda = (\varepsilon_t \varepsilon_{sa})_l$,
- S_i $S_i = 1$ para desintegración β o α ; y $S_i = [1 - 2(\varepsilon^t \varepsilon_{sa})_{511k}]$ para desintegración β^+ mientras que, para EC, $\beta_i S_i = \sum_k \Delta_{ik}(1 - \omega_k + \sum_l \delta_{kl}(1 - \varepsilon_l^t))$,
- Δ_{ik} es la relación de ramificación de la transición de EC mediante la creación de una vacante en la k-ésima capa atómica, estando en la i-ésima cascada.

Por otro lado, el factor de corrección para *summing in* se obtiene de la siguiente expresión:

$$k_{tcg} = 1 + \frac{\sum_{i=1}^n \prod_{j=1}^{m_i} \Gamma_{ij} \varepsilon^p(\gamma_{ij})}{\Gamma_{\gamma_0} \varepsilon^p(\gamma_0)} \quad \text{Expresión 4.5}$$

El programa TRUECOINC calcula los TSCFs partiendo de los datos de las librerías ENSDF para cada isótopo de interés, con la posibilidad de utilizar librerías propias para determinados isótopos. Por otro lado, el programa requiere conocer la curva de eficiencia total a pico (*total-to-peak efficiency*) y dos curvas de eficiencia de pico (*FEPE, Full Energy Peak Efficiency*), una para baja energía y otra para medias y altas, para el intervalo de energía de interés a modo de funciones analíticas (existen diversas alternativas sobre cómo facilitar dichos datos). Estas curvas se pueden obtener mediante simulaciones Monte Carlo utilizando MCNP6 y GEANT4, según el caso, y simulando únicamente fuentes monoenergéticas.

TRUECOINC realiza las siguientes aproximaciones al aplicar el método combinatorio: la correlación angular gamma-gamma se considera despreciable, así como el efecto de los rayos X del nivel atómico M y el Bremsstrahlung; las emisiones gamma de la aniquilación de positrones se originan a la misma distancia que el resto de radiaciones gamma.

A continuación, se presenta un ejemplo de las funciones necesarias para que TRUECOINC pueda calcular los TSCFs, tomando como datos de referencia las eficiencias del modelo del detector BEGe-5030 con la muestra de 5 ml en posición top. Se han obtenido funciones de ajuste para las tres entradas que requiere TRUECOINC, eficiencia de foto-pico para bajas energías (Figura 4.7) y medias-altas (Figura 4.8) y el cociente total a-pico para todo el intervalo de energía bajo estudio (Figura 4.9). Se representan en el eje de coordenadas el logaritmo neperiano de la energía y en el de ordenadas el de la eficiencia de foto-pico.

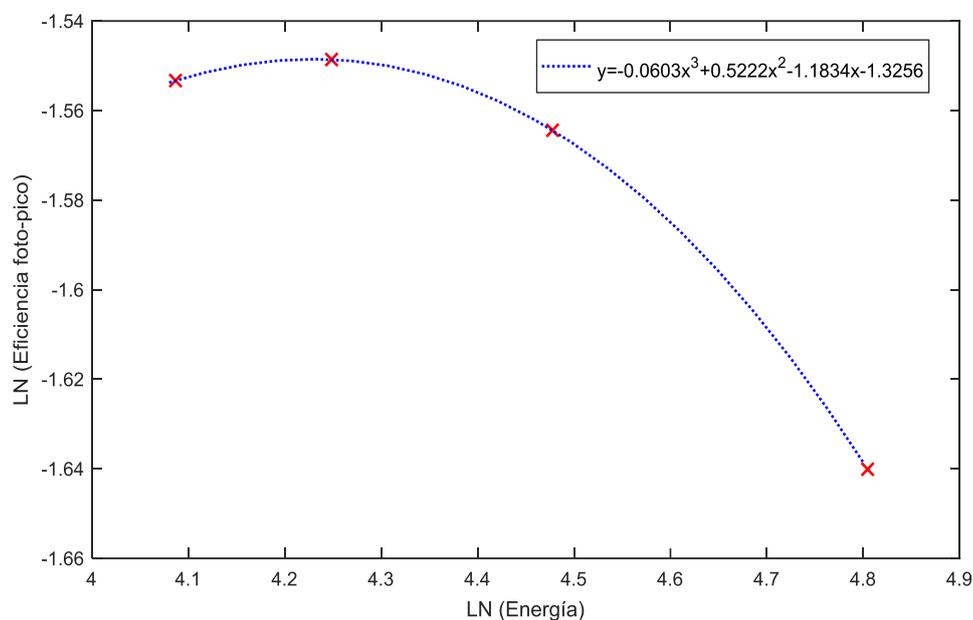


Figura 4.7. Función \log_n (Ef.) para baja energía, desde \log_n (59.5 keV) hasta \log_n (122.1 keV).

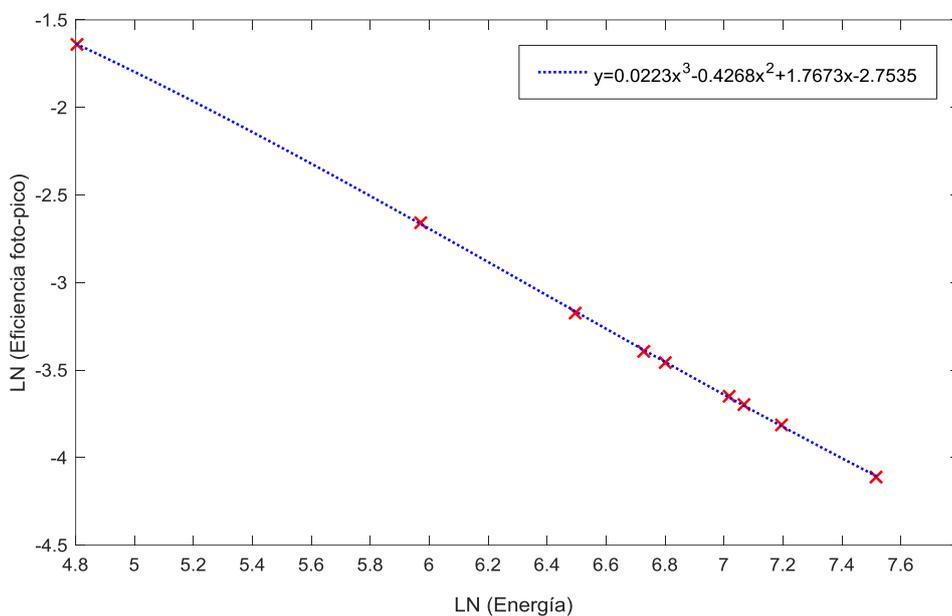


Figura 4.8. Función \log_n (Ef.) para alta energía, desde \log_n (122.1 keV) hasta \log_n (1836.0 keV).

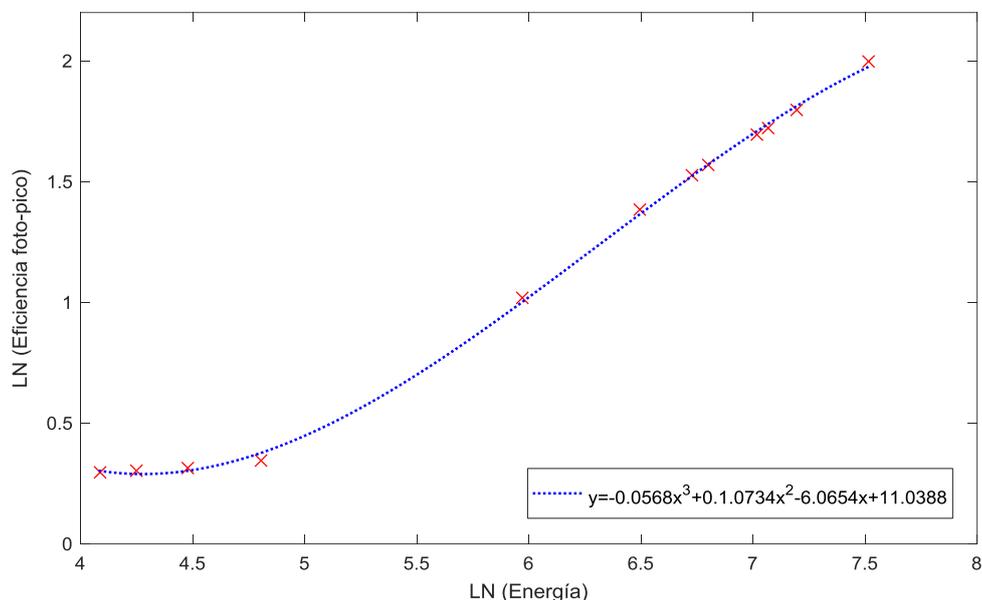


Figura 4.9. Función \log_n (Ef. foto-pico / Ef. total), desde \log_n (59.5 keV) hasta \log_n (1836.0 keV).

4.1.3 Resultados

4.1.3.1 Obtención de los TSCFs para validar los modelos de MCNP6

En este apartado se obtienen los TSCFs para validar aquellas energías que presentan el efecto de suma por coincidencia para los dos modelos de detector definidos en el Capítulo 3. Se ha empleado el programa TRUECOINC, el cual identifica el efecto *summing out* con valores inferiores a 1.00 y el *summing in* con valores superiores a 1.00. Si tras aplicar los factores de corrección (Expresión 4.6) para ^{88}Y y ^{60}Co (898 keV – 1836 keV) las ratios de eficiencias no fuesen aceptables, se volvería a reevaluar aquellos parámetros que afectasen a energías altas (capa inactiva interna y volumen del cristal, principalmente), por encima de los 898 keV y se recalcularían de nuevo, siguiendo así un proceso iterativo.

$$Ef. Exp. corregida = \frac{Ef. Exp. no corregida}{TSCF} \quad \text{Expresión 4.6}$$

Las Tabla 4-1 muestran los TSCFs para ^{88}Y y ^{60}Co utilizados para validar el modelo del detector GMX-40.

Tabla 4-1. TSCFs para el ^{60}Co y el ^{88}Y , modelo del detector GMX-40

Radionúclido	E (keV)	15 ml	100 ml	500 ml
^{139}Ce	165.86	0.845	0.907	0.916
^{88}Y	898.02	-	0.903	0.899
^{60}Co	1173.24	0.877	0.913	0.916
^{60}Co	1332.50	0.873	0.912	0.913
^{88}Y	1836.01	0.871	0.898	0.888

La Tabla 4-2 y la Tabla 4-3 listan los TSCFs obtenidos para validar el modelo del detector BEGe-5030, tanto para fuentes volumétricas (recipiente de 5ml y Petri de 100 ml) como para fuentes puntuales. En ambos casos, al alejar la fuente del detector, los TSCFs van acercándose a la unidad, debido a la reducción del ángulo sólido (Gilmore 2008; Kafala 1995). Lo mismo ocurre al comparar los valores obtenidos para la muestra de 5 ml y 100 ml (Figura 3.6) situados ambos en posición *top*. En este caso, se obtienen TSCFs más próximos a la unidad al aumentar la extensión de la fuente y, por tanto, reducir el ángulo sólido subtendido.

Tabla 4-2. TSCFs para ^{60}Co e ^{88}Y , modelo del detector BEGe-5030. Fuentes volumétricas

Radionúclido	E (keV)	5 ml - Top	5 ml – 6 cm	100 ml - Top
^{60}Co	1173.24	0.866	0.965	0.907
	1332.50	0.860	0.963	0.903
^{88}Y	898.02	0.875	0.987	0.913
	1836.01	0.850	0.913	0.901

Tabla 4-3. TSCFs para ^{60}Co , ^{133}Ba , modelo del detector BEGe-5030. Fuentes puntuales

Radionúclido	E (keV)	Puntual – 6 cm	Puntual – 11 cm
^{60}Co	1173.24	0.965	0.985
	1332.50	0.964	0.984
^{133}Ba	276.40	-	0.976
	302.85	-	0.988
	356.01	-	0.989
	383.85	-	1.021

4.1.3.2 TSCFs para las series naturales del ^{238}U y del ^{232}Th

La Tabla 4-4, Tabla 4-5 y Tabla 4-6 muestran las eficiencias y los TSCF obtenidos para cada radioisótopo y energía bajo estudio. La columna 3 (eficiencia RDM) representa la eficiencia simulada con la clase G4RadioactiveDecay (GEANT4), considerando el efecto de suma por coincidencia. La columna 4 representa la eficiencia simulada (también con GEANT4) para una fuente monoenergética, es decir, una única emisión a la energía correspondiente y sin considerar dicho efecto. Se presentan los TSCFs obtenidos mediante TRUECOINC y la comparación entre ambos métodos en última columna.

Al contrario que con TRUECOINC, en GEANT4 el efecto *summing out* se ha identificado con factores de corrección superiores a 1.00 y el *summing in* con valores inferiores a 1.00, siguiendo con los procedimientos del LRA-UPV. Puesto que en esta sección los TSCFs obtenidos mediante el procedimiento descrito en la Figura 4.3 se comparan también con los calculados por TRUECOINC, para estos últimos se presentan los valores inversos.

Los TSCF calculados por GEANT4 y TRUECOINC muestran valores muy similares, aunque sistemáticamente inferiores en el caso de TRUECOINC. Las diferencias medias al comparar TRUECOINC con GEANT4 son -1.91%, -0.14% y -2.10% para ^{214}Bi , ^{212}Bi y ^{208}Tl , respectivamente.

Los resultados muestran que la geometría de 15 ml tiene los TSCF más altos con valores de 1.19 y 1.21 para el ^{214}Bi (Tabla 4-4), 1.05 para el ^{212}Bi (Tabla 4-5) y 1.23 para el ^{208}Tl (Tabla 4-6). Por otro lado, la geometría Marinelli de 500 ml presenta los TSCFs más bajos con valores de 1.12 y 1.14 para ^{214}Bi , 1.16 para ^{208}Tl y 1.04 para ^{212}Bi . La muestra de 100 ml presenta valores intermedios, ligeramente más cercanos a la geometría Marinelli.

Los TSCFs del ^{212}Bi a 727.3 keV obtenidos para las muestras de 100 ml y 500 ml son prácticamente 1.0 (Tabla 4-5), por lo que, para estas geometrías y matrices el efecto de suma de coincidencia podría despreciarse, pero no para la geometría de 15 ml, con un TSCF de 1.05.

Al comparar los resultados de 100 ml para agua, arena de mar y arena de Zr (Tabla 4-7), se aprecia que los TSCF son muy similares para las series de ^{238}U y ^{232}Th . Esto mismo puede comprobarse gráficamente en la Figura 4.10. Los p-valores obtenidos son mayores que 0.05 para agua-arena de mar y para arena de mar-arena de Zr, lo que sugiere que estas matrices no tienen un efecto estadísticamente significativo sobre los TSCF (Giubrone et al. 2016).

Por otro lado, cuando se compara el agua con la arena de Zr, con densidades significativamente diferentes (1.0 y 3.5 g/cm³, respectivamente), se obtienen p-valores inferiores y superiores a 0.05 según la energía, no pudiéndose concluir claramente el efecto que tiene aumentar la densidad de la matriz sobre los TSCFs.

Respecto a la geometría de la muestra, los TSCF obtenidos en las matrices de agua, muestran diferencias significativas al comparar 100 ml con 15 ml y 15 ml con 500 ml (Tabla 4-8), con p-valores mucho más bajos que 0.05. En consecuencia, el ángulo sólido formado entre la muestra y el detector es relevante.

Sin embargo, las geometrías de 100 ml y 500 ml tienen TSCF similares, con p-valores superiores a 0.05 para el ^{212}Bi y ^{208}Tl e inferiores a 0.05 para el ^{214}Bi . En consecuencia, el efecto del ángulo sólido es mayor cuando se compara con geometrías más cercanas a la de una fuente puntual, tal y como puede apreciarse en la Figura 4.11. Estos resultados sugieren que la geometría particular de la Marinelli, rodeando el detector, tiene un efecto leve sobre el valor de los TSCF.

Tabla 4-4. Eficiencias y TSCFs para el ^{214}Bi ; Serie del ^{238}U

Muestra	E (keV)	Ef. RDM	Ef. Mono-energético	TSCF GEANT4 (incertidumbre)	TSCF TRUECOINC	Error relativo comparación
15 ml Agua	609.3	0.0354	0.0420	1.187 (± 0.003)	1.166	-1.8%
	1120.3	0.0211	0.0255	1.211 (± 0.005)	1.190	-1.7%
100 ml Agua	609.3	0.0240	0.0270	1.126 (± 0.003)	1.106	-1.8%
	1120.3	0.0146	0.0169	1.158 (± 0.006)	1.119	-3.4%
100 ml Arena mar	609.3	0.0229	0.0259	1.134 (± 0.008)	1.114	-1.8%
	1120.3	0.0144	0.0164	1.138 (± 0.02)	1.125	-1.7%
100 ml Arena Zr	609.3	0.0197	0.0222	1.130 (± 0.003)	1.112	-1.6%
	1120.3	0.0127	0.0145	1.140 (± 0.006)	1.121	-1.7%
500 ml Agua	609.3	0.0225	0.0252	1.119 (± 0.003)	1.105	-1.3%
	1120.3	0.0139	0.0159	1.144 (± 0.006)	1.117	-2.3%

Tabla 4-5. Eficiencias y TSCFs para el ^{212}Bi (727.3 keV); Serie del ^{232}Th .

Muestra	Ef. RDM	Ef. Mono-energético	TSCF GEANT4 (incertidumbre)	TSCF TRUECOINC	Error relativo comparación
15 ml Agua	0.0344	0.0362	1.053 (± 0.005)	1.053	-0.0%
100 ml Agua	0.0227	0.0235	1.037 (± 0.006)	1.034	-0.3%
100 ml Arena mar	0.0217	0.0226	1.039 (± 0.006)	1.036	-0.3%
100 ml Arena Zr	0.0190	0.0196	1.030 (± 0.007)	1.035	0.5%
500 ml Agua	0.0212	0.0220	1.040 (± 0.006)	1.034	-0.6%

Tabla 4-6. Eficiencias y TSCFs para el ^{208}Tl (583.2 keV); Serie del ^{232}Th

Muestra	Ef. RDM	Ef. Mono-energético	TSCF GEANT4 (incertidumbre)	TSCF TRUECOINC	Error relativo comparación
15 ml Agua	0.0356	0.0437	1.226 (± 0.004)	1.222	-0.3%
100 ml Agua	0.0241	0.0280	1.160 (± 0.004)	1.131	-2.5%
100 ml Arena mar	0.0231	0.0269	1.165 (± 0.004)	1.140	-2.1%
100 ml Arena Zr	0.0196	0.0230	1.170 (± 0.004)	1.133	-3.2%
500 ml Agua	0.0226	0.0261	1.156 (± 0.004)	1.129	-2.4%

Tabla 4-7. Estadístico U (p-valor); Comparación de matrices, geometría de 100 ml; Calculado para los resultados obtenidos con GEANT4

Radionúclido	E. (keV)	Agua–Arena mar	Agua–Arena Zr	Arena mar–Arena Zr
^{214}Bi	609.3	0.94 (0.175)	0.96 (0.168)	0.45 (0.327)
	1120.3	1.12 (0.132)	2.11 (0.017)	0.14 (0.446)
^{208}Tl	583.2	0.92 (0.179)	1.87 (0.030)	0.96 (0.168)
^{212}Bi	727.3	0.29 (0.387)	0.73 (0.231)	1.00 (0.158)

Tabla 4-8. Estadístico U (p-valor); Comparación de geometrías, matriz de agua; Calculado para los resultados obtenidos con GEANT4

Radionúclido	E. (keV)	100 ml – 15 ml	100 ml – 500 ml	15 ml – 500 ml
²¹⁴ Bi	609.3	16.12 (0.000)	1.70 (0.044)	17.69 (0.000)
	1120.3	6.74 (0.000)	1.71 (0.044)	8.52 (0.000)
²⁰⁸ Tl	583.2	13.19 (0.000)	0.78 (0.218)	13.92 (0.000)
²¹² Bi	727.3	2.06 (0.020)	0.41 (0.340)	1.57 (0.058)

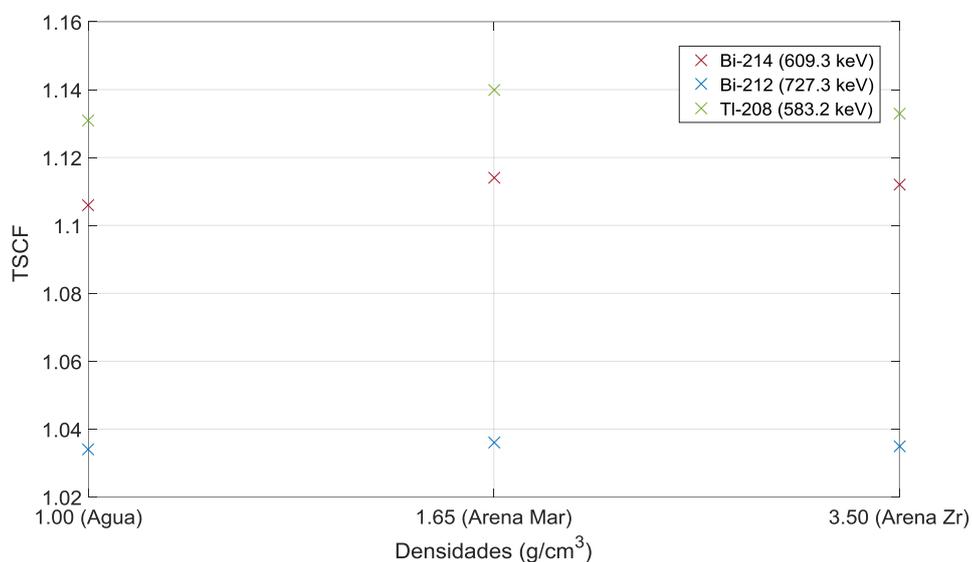


Figura 4.10. Efecto de la matriz en los TSCFs

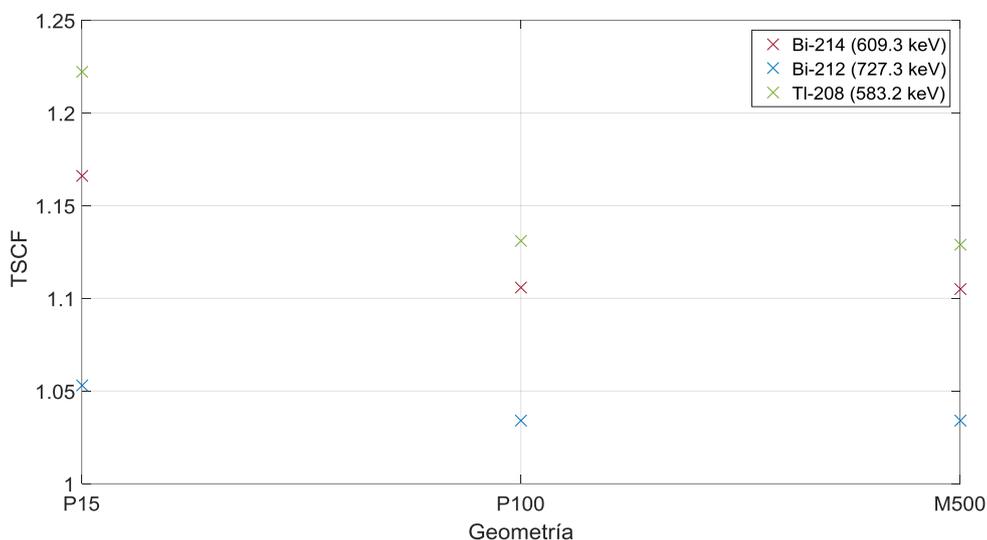


Figura 4.11. Efecto de la geometría en los TSCFs

4.1.4 Conclusiones

En este apartado se han calculado factores de corrección por pico suma (TSCFs) en dos casos diferentes. En ambos se han aplicado técnicas computacionales, utilizando en uno el conjunto de herramientas de GEANT4 (Monte Carlo) y en el otro el programa determinista TRUECOINC, aunque este último necesita las curvas de eficiencia del detector, obtenidas con el código MCNP6. Ambos conjuntos de TSCFs para el detector GMX-40 se han obtenido empleando dos modelos del detector diferentes, uno con GEANT4 y el otro con MCNP6. Esto implica que a las incertidumbres propias del cálculo de los TSCFs se le añaden las propias del modelado según cada una de estas herramientas y, a pesar de esto, se siguen obteniendo valores muy similares.

Se ha utilizado el programa TRUECOINC para corregir las eficiencias experimentales del ^{88}Y , ^{60}Co y ^{133}Ba aplicando los TSCFs para extender la validación de los modelos de los detectores GMX-40 y BEGe-5030 hasta los 1836.01 keV (Capítulo 3).

El conjunto de herramientas GEANT4 se ha utilizado para calcular los TSCFs del ^{214}Bi y $^{212}\text{Bi} / ^{208}\text{Tl}$ pertenecientes a las series de desintegración del ^{238}U y ^{232}Th , respectivamente. Respecto a los radionúclidos estudiados, todos ellos emisores de fotones de alta energía, se ha determinado que el efecto de la densidad en los TSCFs no es significativo en comparación con el efecto de la geometría y, por tanto, del ángulo sólido.

Las conclusiones obtenidas para estos radionúclidos pueden extrapolarse a otras matrices de diferente densidad (biota, suelos, sedimentos, etc.). Sin embargo, estas conclusiones no pueden generalizarse para los radionúclidos con emisores de fotones de baja energía y tanto la composición como la densidad deben caracterizarse con precisión en tales casos.

4.2 Curvas de calibración en eficiencia para diferentes matrices y composiciones

En esta sección se presentan diferentes curvas de eficiencias (FEPEs) obtenidas simulando el patrón multigamma presentado en el Capítulo 3 para diferentes matrices y composiciones. El patrón utilizado es el mismo que se ha utilizado para realizar la caracterización geométrica de los detectores (geometría de 100 ml).

En general se han agrupado las simulaciones de modo que pueda apreciarse el impacto que tiene la densidad de la matriz (Figura 4.14) y su composición química (Figura 4.12, Figura 4.13 y Figura 4.15). Las características de cada matriz se listan en la Tabla 4-10 y en la Tabla 4-11.

Tanto para la arena de mar como para la arena de Zr, la diferencia que existe en las composiciones “pura” y “mezcla” (impurezas) no afecta prácticamente a las eficiencias simuladas. Únicamente para energías comprendidas entre 60 keV y 122 keV las diferencias son de entre el 2% y el 3%, mientras que para el resto son inferiores al 1%. Lo mismo ocurre para las muestras C1 a C5 por un lado y C6-C7 por otro, con mismas densidades y composiciones ligeramente diferentes, no existe diferencia apreciable entre las eficiencias obtenidas.

En cuanto a la comparación de densidades, sí que se aprecia el efecto al comparar las muestras de arena de Zr con densidades de 1.65, 2.00 y 3.00 (Figura 4.14), obteniéndose eficiencias menores conforme aumenta la densidad. Las reducciones son de alrededor del 30% para energías inferiores a 100 keV entre la mínima y máxima densidad, del 20% para 122 keV y de entre el 10% y el 5% a partir de 320 keV.

Se puede concluir que, a la hora de calibrar las muestras en el laboratorio, la composición de la muestra no es tan relevante en comparación con su densidad, para una misma geometría de medición.

Tabla 4-9. Composición y densidades de las muestras de arena de mar correspondientes a la Figura 4.14

Muestra	Composición (% en peso)	Densidad (g/cm ³)
Arena de Zr pura	SiO ₂ → 57.33%	1.65
	Zr → 42.67%	2.00
		3.50

Tabla 4-10. Composiciones y densidad de las muestras de arena de mar y arena de Zr; Correspondiente a la Figura 4.12 y Figura 4.13

Muestra	Composición (% en peso)	Densidad (g/cm ³)
Arena de Zr pura	SiO ₂ → 57.33% Zr → 42.67%	3.5
Arena de Zr mezcla	SiO ₂ → 57.79% Zr → 41.32% Al → 0.45% Ti → 0.24% Fe → 0.2%	3.5
Arena de mar pura	SiO ₂ → 100%	1.65
Arena de mar mezcla	SiO ₂ → 86.75% Ca → 11.48% Al → 1.95	1.65

Tabla 4-11. Composiciones y densidad de las muestras C1 a C8; Correspondiente a la Figura 4.15

Muestra	Composición	Densidad (g/cm ³)
C1	(PO ₄) ₂ Ca ₃	1.00
C2	PO ₄ CaNa	1.00
C3	PO ₄ H ₂ Ca ₂	1.00
C4	PO ₄ H ₂ + 2Ca + 3(H ₂ O)+PO ₄ HCa	1.00
C5	PO ₄ HCa	1.00
C6	CaCO ₃	0.70
C7	Ca	0.70
C8	ZrO ₂	1.65

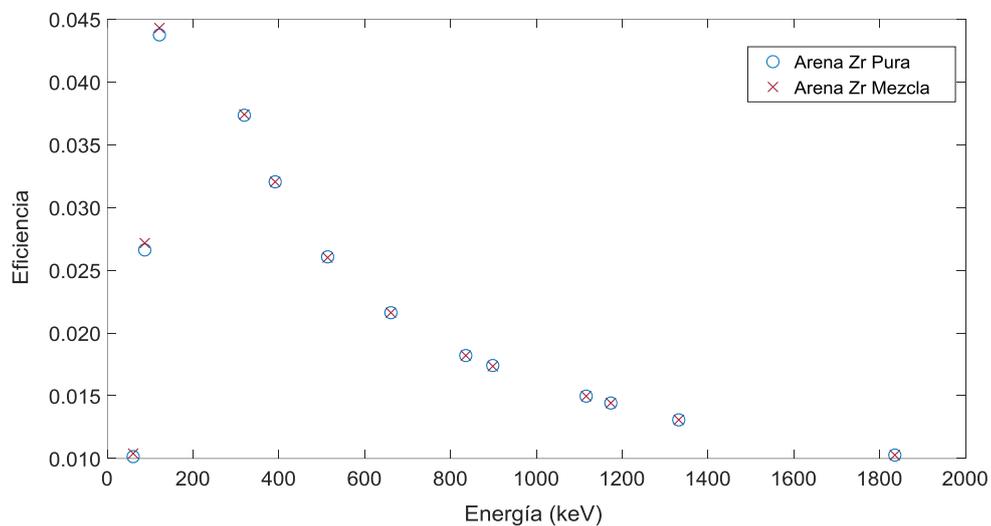


Figura 4.12. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml; Arena de Zr pura y arena de Zr con impurezas; $\rho = 3.5$.

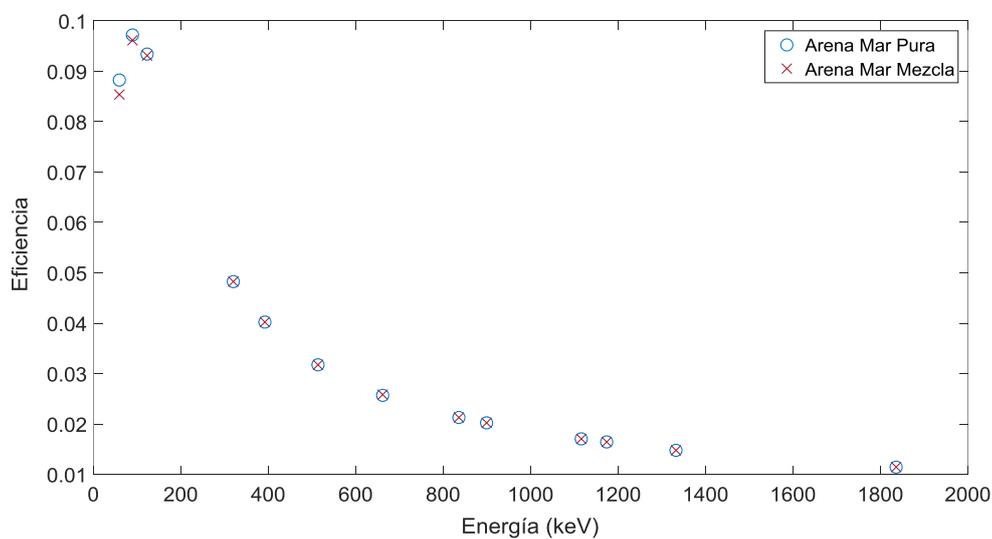


Figura 4.13. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml; Arena de mar pura y arena de mar con impurezas; $\rho = 1.65$.

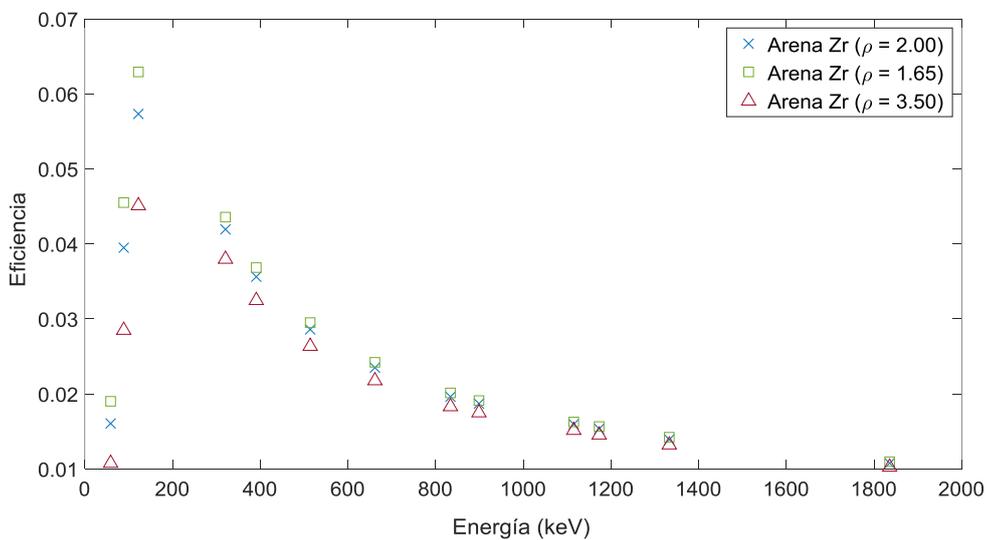


Figura 4.14. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml de SiO₂Zr; Todas las muestras tienen la misma composición, pero con diferentes densidades.

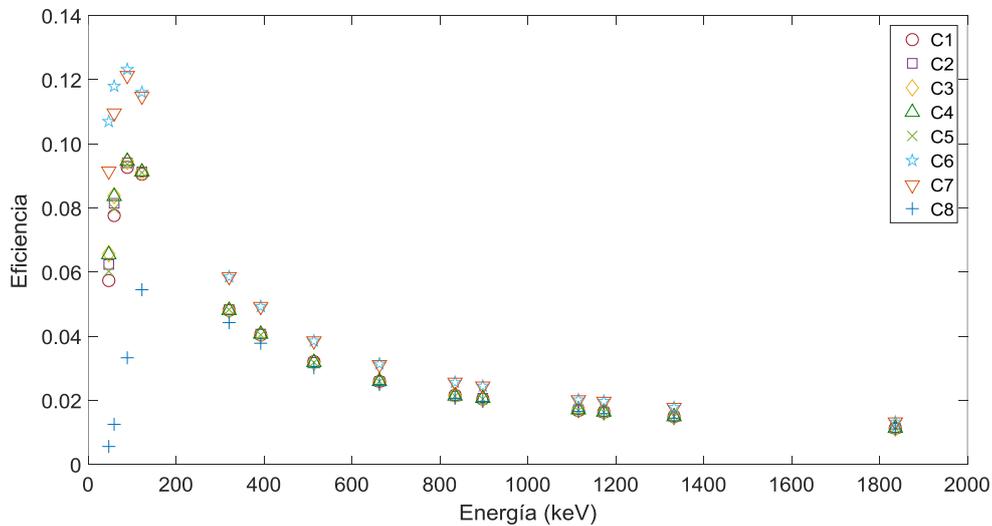


Figura 4.15. Curvas de calibración en eficiencia para muestras de 100 ml de diferentes composiciones; Todas las muestras tienen densidad $\rho=1.00$.

4.3 Metodología de cribado de emergencias para muestras líquidas

4.3.1 Introducción

Las amenazas radiológicas debidas tanto a accidentes nucleares o radiológicos como a ataques radiactivos contra la sociedad y el medio ambiente se perciben como una posibilidad cada vez más real. Existe un amplio consenso en que la capacidad de identificar eficientemente tales amenazas exige una infraestructura sofisticada y específica que incluya personal especializado, laboratorios e instrumentación avanzada (Croudace et al. 2016). En general, el enfoque necesario para identificar eficientemente tales amenazas debe ser robusto, rápido, preciso y seguro. Robusto en el sentido de proporcionar siempre un resultado fiable, rápido en términos de proporcionar resultados en el menor tiempo posible, preciso en la caracterización de todos los radioisótopos relevantes dentro del material radiactivo y seguro en términos de reducir y controlar el riesgo de exposición a la radiación del personal de laboratorio.

El uso de métodos de simulación puede ser de gran ayuda para mejorar la identificación de amenazas radiológicas (Maučec et al. 2004), (Fonseca, Mendes, y Hunt 2017), (Fantínová y Fojtík 2014). En este contexto, el Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) de la UPV está desarrollando procedimientos de espectrometría gamma mediante detectores de semiconductor para la caracterización de muestras de alta actividad combinando métodos experimentales y de simulación. Estos procedimientos se centran en el análisis de diferentes configuraciones de medida para optimizar la secuencia de medición. Para lograr resultados precisos, es imprescindible caracterizar detalladamente la respuesta en eficiencia del sistema y, en este aspecto, se requieren curvas de eficiencia para las posibles configuraciones de medición. Técnicas computacionales tales como el método de Monte Carlo representan una herramienta útil para complementar el procedimiento experimental de calibración en eficiencia (García-Talavera et al. 2000), (Hurtado et al. 2004), (Dababneh, Al-Nemri, y Sharaf 2014) pudiendo simular cualquier caso, obteniendo un mapa de eficiencias que considera todas las combinaciones posibles de distancia entre la fuente - detector y volúmenes de fuente.

Este capítulo presenta una secuencia de medición experimental en el laboratorio de muestras activas, que incluye un cribado de emergencias utilizando los resultados de la simulación realizados con el modelo en MCNP6 del detector BEGe-5030 como apoyo a la espectrometría gamma. Esto presenta beneficios prácticos y mejoras para proporcionar una respuesta rápida, sin comprometer la seguridad laboral, en el contexto de emergencias nucleares y radiactivas.

4.3.2 Materiales y métodos

Los detectores de espectrometría gamma necesitan un mínimo intervalo de tiempo para separar dos sucesos independientes. Este parámetro, conocido como tiempo muerto, se ve afectado principalmente por la electrónica asociada con el sistema del detector (Knoll 2000). En los laboratorios de radiactividad ambiental, en circunstancias normales, el tiempo muerto obtenido suele ser bajo, pero en casos de emergencia, la actividad de la muestra puede ser tan alta como para aumentar considerablemente el tiempo muerto de medición, lo que a su vez dará lugar a resultados poco fiables. Esto implicaría tener que repetir la medición modificando las condiciones de medida de la muestra, con el correspondiente aumento en el tiempo de respuesta y en el riesgo de exposición de los trabajadores del laboratorio. Por consiguiente, este parámetro debe tenerse en cuenta antes de caracterizar una muestra derivada de una situación de emergencia.

El tiempo muerto puede controlarse tanto con la electrónica del detector como con las condiciones de medición. Este apartado se centra en este último método, analizando la tasa de contaje (cps) registrada por el sistema bajo diferentes condiciones de medición. La tasa de contaje puede modificarse variando la distancia entre la muestra y el detector, así como utilizando diferentes volúmenes de fuente. En este contexto, se han desarrollado diversos modelos de Monte Carlo del detector para analizar la respuesta en eficiencia del sistema para varias configuraciones de medición (distancias y volúmenes). Las simulaciones permiten estimar la emisión gamma máxima de la fuente con el objetivo de obtener una tasa de contaje admisible para diferentes volúmenes de fuente (en la matriz de agua) y distancias de muestra a detector.

El detector en cuestión es el BEGe-5030, cuyas especificaciones se han expuesto en el Capítulo 3. Para esta aplicación se ha establecido como tiempo muerto máximo admisible el mismo que se obtuvo durante las calibraciones experimentales, es decir, 0.6%.

Además del modelo del detector desarrollado en el Capítulo 3, se han realizado modelos adicionales para cubrir todas las configuraciones de medición posibles según el cribado desarrollado en este trabajo. Se modela una geometría de muestra (vaso cilíndrico) con siete volúmenes de fuente: 5 ml, 10 ml, 15 ml, 20 ml, 30 ml, 40 ml y 50 ml. Todas las fuentes se simulan situando la muestra desde la geometría *top* (a 0.5 cm de altura, la más cercana al detector) hasta 20 cm por encima, en incrementos de 2.5 cm.

4.3.2.1 Curvas de eficiencia total

Se obtienen curvas simuladas de eficiencia total para las diferentes configuraciones de medición comentadas. Se simulan 63 configuraciones cubriendo el intervalo de energía considerado (59 keV – 1836 keV). La Figura 4.16 y la Figura 4.17 presentan las curvas de eficiencia total para la muestra de 5 ml y de 50 ml, respectivamente. Para un volumen

de 5 ml se obtiene una disminución media de eficiencia del 52%, 74% y 82% aproximadamente al situar la muestra 2.5 cm, 5 cm y 7.5 cm por encima de la posición *top*, respectivamente (Figura 4.18). Estos valores se mantienen en el resto de los volúmenes, con disminuciones del 50%, 70% y 80% para el caso opuesto, 50 ml (Figura 4.18). Esta reducción es prácticamente independiente de la energía del fotón. Este efecto disminuye con la distancia, siendo casi constante a partir de una distancia de 10 cm aproximadamente, (91%-95%) en todos los volúmenes.

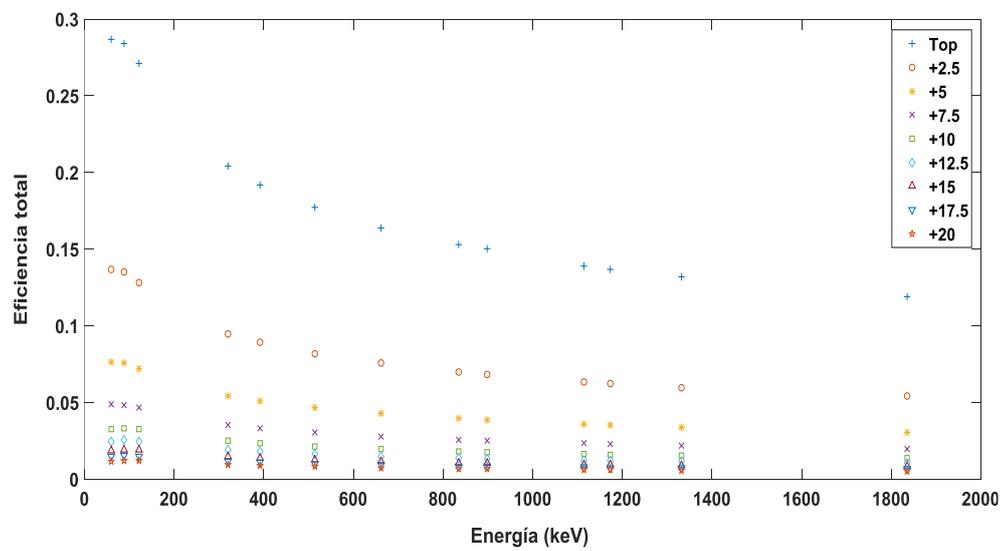


Figura 4.16. Eficiencia total para diferentes distancias fuente-detector; Volumen de 5ml

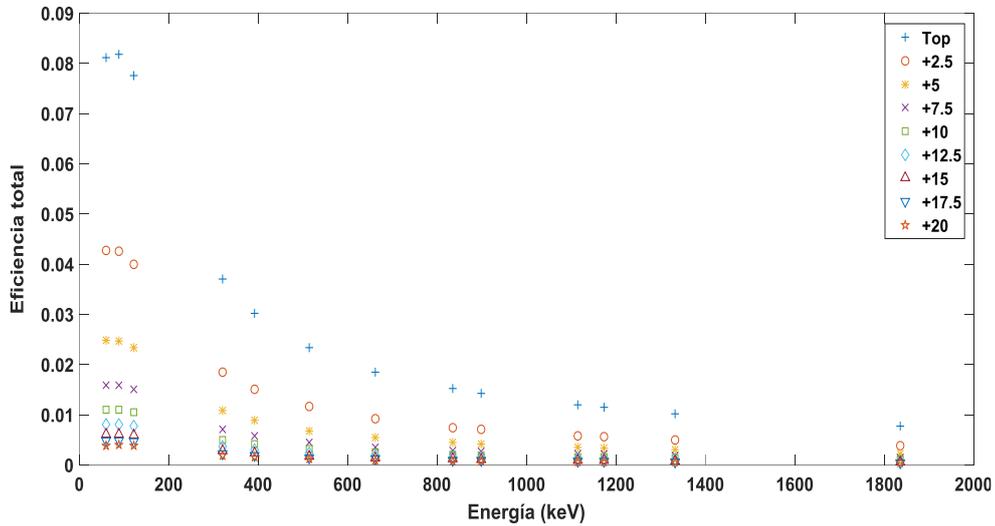


Figura 4.17. Eficiencia total para diferentes distancias fuente-detector; Volumen de 50ml

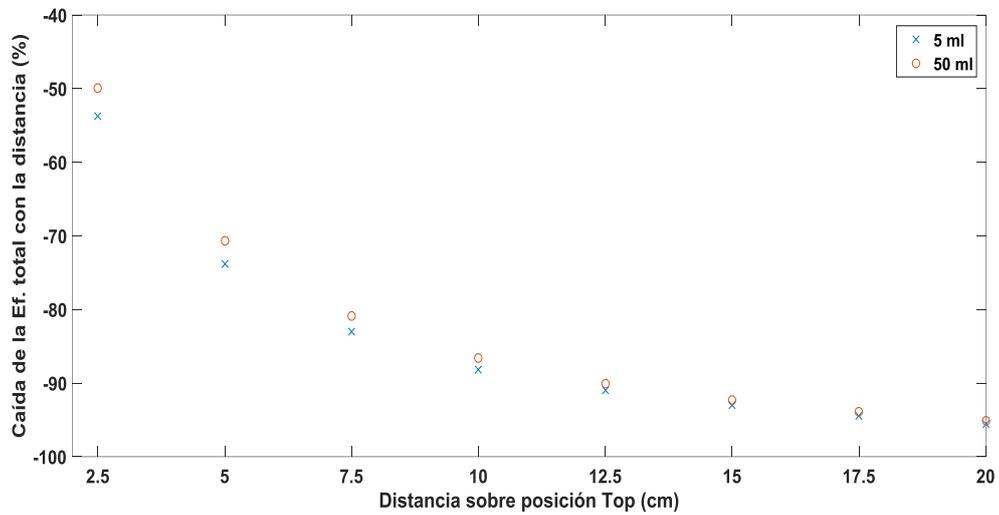


Figura 4.18. Reducción de la eficiencia total con la distancia muestra-detector

Algo similar ocurre con el volumen de fuente. La eficiencia total disminuye con el aumento del volumen de la fuente debido a que la distancia media fuente - detector aumenta con este, a la vez que el ángulo sólido entre la muestra y el detector disminuye.

La Figura 4.19 y Figura 4.20 presentan las curvas de eficiencia total para los diferentes volúmenes de fuente (5 ml – 50 ml), situando las muestras en posición *top* y a +20 cm, respectivamente. Puede apreciarse como el efecto del volumen de fuente sobre la eficiencia total disminuye conforme se aleja la muestra del detector. En posición *top* la reducción máxima de eficiencia es de un 54% al comparar 5 ml con 50 ml, mientras que en la posición +20 cm, es del 32%. La Figura 4.21 muestra esta reducción en ambas posiciones, presentando un comportamiento lineal. En esta ocasión, este efecto disminuye ligeramente conforme aumenta la energía, viéndose más afectado el ^{241}Am (59.5 keV).

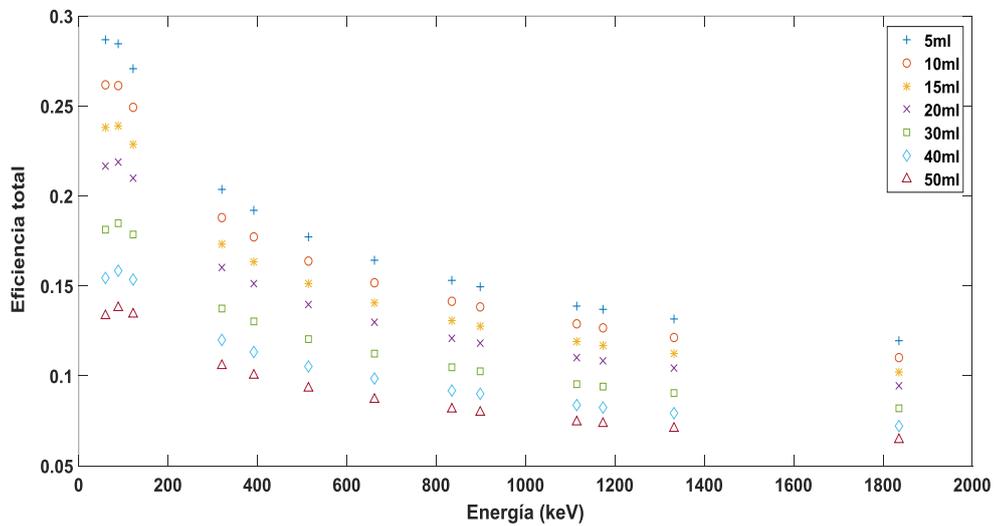


Figura 4.19. Eficiencia total para diferentes volúmenes de fuente situadas en geometría top

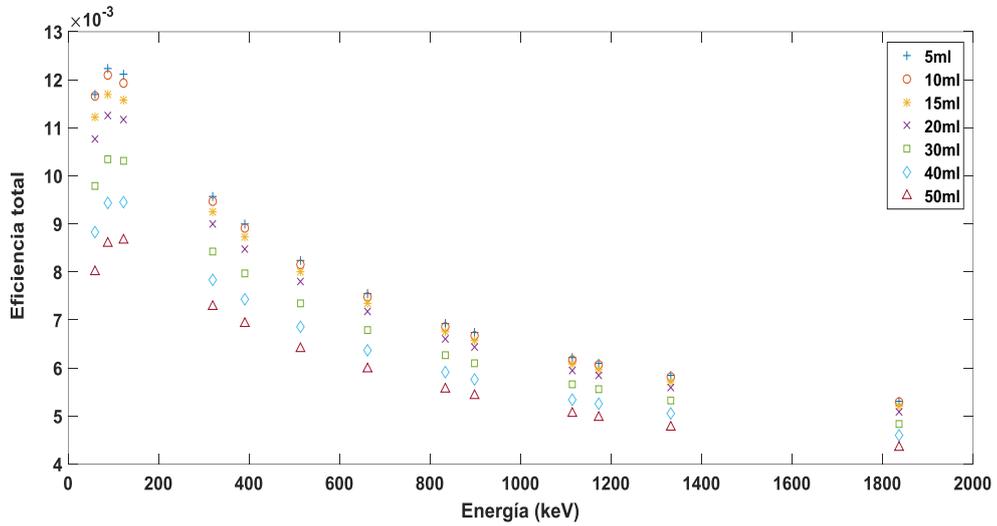


Figura 4.20. Eficiencia total para diferentes volúmenes de fuente situadas a una altura de 20 cm por encima de la geometría top

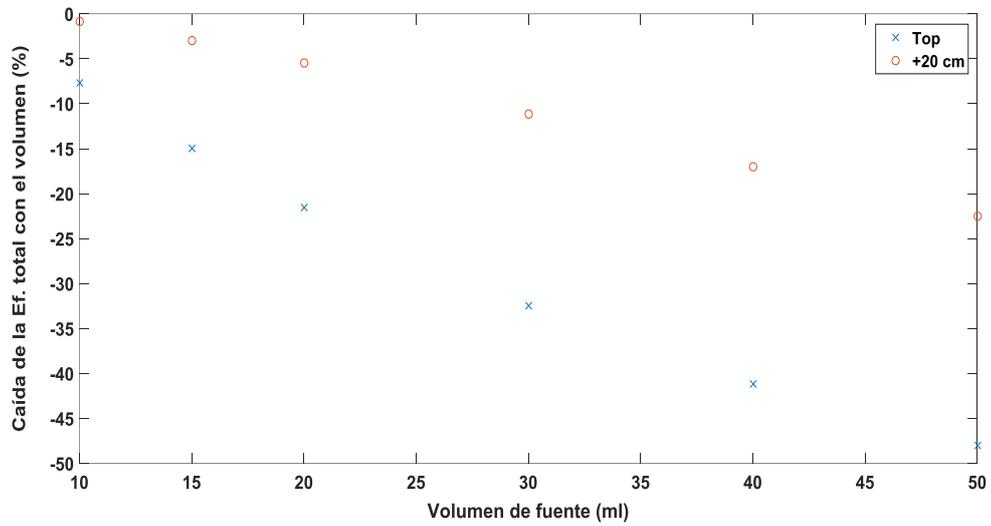


Figura 4.21. Reducción de la eficiencia total con el volumen de muestra

4.3.2.2 Emisión gamma máxima

Se ha establecido un tiempo muerto máximo de 0.6% en las calibraciones experimentales. La configuración volumen de muestra y distancia durante la secuencia de medición y cribado considera este valor como parámetro de ajuste. Puesto que la metodología que se presenta depende de que no se sobrepase este valor de tiempo muerto, el primer paso a realizar es obtener la tasa de contejo medida tal que el tiempo muerto resultante sea del 0.6% como máximo. Para ello se ha obtenido dicho parámetro para una serie de mediciones experimentales y se ha calculado una función de ajuste de tiempo muerto frente a la tasa de contejo medida (Expresión 4.7).

$$y = 733.26x - 14.39 \qquad \text{Expresión 4.7}$$

donde y representa las cuentas por segundo medidas y x el porcentaje de tiempo muerto respecto al tiempo real de medición. De este modo, se ha establecido una tasa de contejo máxima de 426 cps.

La tasa de contejo medida está muy afectada por la tasa de emisión gamma de la muestra y por la eficiencia total del sistema, que además depende de la configuración de medición, la energía de la emisión gamma y del propio detector. La tasa máxima de emisión gamma de la fuente para obtener finalmente una lectura de 426 cps puede calcularse dividiendo este valor por la eficiencia total en función de la energía. En este contexto, se requieren simulaciones de Monte Carlo considerando los parámetros mencionados para caracterizar la respuesta en eficiencia total del sistema.

La Tabla 4-12 lista los valores máximos de emisión gamma para la muestra de 5ml en función de la distancia fuente - detector. La geometría top presenta las eficiencias totales más elevadas, como se ha expuesto en el Apartado 4.3.2.1, mostrando los valores límite de emisión gamma más restrictivos que cumplirían con el criterio establecido. Por otro lado, dicho límite aumenta con la energía debido a la pérdida de eficiencia (Figura 4.16 y Figura 4.17).

La Tabla 4-13 muestra resultados equivalentes, valores máximos permitidos más restrictivos para 5 ml debido a su mayor eficiencia total. Comparando los valores para 59.54 keV en la Tabla 4-13, la tasa de emisión gamma máxima permitida para 50 ml es aproximadamente el doble que la de 5 ml debido a la pérdida de eficiencia con el aumento del volumen, pero la actividad en la muestra es 10 veces mayor, comprometiendo el criterio del tiempo muerto. En tal caso debe reducirse la eficiencia total situando la muestra en una posición más elevada.

Tabla 4-12. Tabla para el cribado inicial. Tasa de emisión gamma (γ /s) máxima emitida por la fuente para cumplir el criterio de tiempo muerto; Muestra: 5ml

E (keV)	Top	+2.5	+5	+7.5	+10	+12.5	+15	+17.5	+20
59.5	1.5E+03	3.1E+03	5.6E+03	8.8E+03	1.3E+04	1.7E+04	2.3E+04	2.9E+04	3.7E+04
88.0	1.5E+03	3.2E+03	5.7E+03	8.8E+03	1.3E+04	1.7E+04	2.2E+04	2.8E+04	3.5E+04
122.1	1.6E+03	3.4E+03	5.9E+03	9.2E+03	1.3E+04	1.7E+04	2.2E+04	2.8E+04	3.5E+04
320.1	2.1E+03	4.5E+03	7.9E+03	1.2E+04	1.7E+04	2.2E+04	2.9E+04	3.6E+04	4.5E+04
391.7	2.2E+03	4.8E+03	8.4E+03	1.3E+04	1.8E+04	2.4E+04	3.1E+04	3.9E+04	4.8E+04
514.0	2.4E+03	5.2E+03	9.2E+03	1.4E+04	2.0E+04	2.6E+04	3.4E+04	4.2E+04	5.2E+04
661.6	2.6E+03	5.7E+03	1.0E+04	1.5E+04	2.2E+04	2.9E+04	3.7E+04	4.6E+04	5.7E+04
834.8	2.8E+03	6.1E+03	1.1E+04	1.7E+04	2.4E+04	3.1E+04	4.0E+04	5.0E+04	6.2E+04
898.0	2.9E+03	6.3E+03	1.1E+04	1.7E+04	2.4E+04	3.2E+04	4.1E+04	5.2E+04	6.4E+04
1115.5	3.1E+03	6.8E+03	1.2E+04	1.8E+04	2.6E+04	3.5E+04	4.5E+04	5.6E+04	6.9E+04
1173.2	3.1E+03	6.9E+03	1.2E+04	1.9E+04	2.7E+04	3.5E+04	4.6E+04	5.7E+04	7.0E+04
1332.5	3.3E+03	7.2E+03	1.3E+04	2.0E+04	2.8E+04	3.7E+04	4.8E+04	6.0E+04	7.3E+04
1836.0	3.6E+03	7.9E+03	1.4E+04	2.2E+04	3.1E+04	4.1E+04	5.3E+04	6.6E+04	8.1E+04

Tabla 4-13. Tasa de emisión gamma (γ /s) máxima emitida por la fuente para cumplir el criterio de tiempo muerto; Posición: geometría top

E (keV)	5 ml	10 ml	15 ml	20 ml	30 ml	40 ml	50 ml
59.5	1.49E+03	1.64E+03	1.80E+03	1.98E+03	2.36E+03	2.78E+03	3.22E+03
88.0	1.51E+03	1.64E+03	1.79E+03	1.96E+03	2.32E+03	2.71E+03	3.11E+03
122.1	1.58E+03	1.72E+03	1.87E+03	2.04E+03	2.40E+03	2.79E+03	3.20E+03
320.1	2.11E+03	2.28E+03	2.47E+03	2.68E+03	3.11E+03	3.58E+03	4.06E+03
391.7	2.23E+03	2.42E+03	2.62E+03	2.84E+03	3.29E+03	3.78E+03	4.28E+03
514.0	2.42E+03	2.62E+03	2.83E+03	3.06E+03	3.55E+03	4.06E+03	4.60E+03
661.6	2.61E+03	2.82E+03	3.05E+03	3.30E+03	3.82E+03	4.36E+03	4.92E+03
834.8	2.80E+03	3.03E+03	3.28E+03	3.54E+03	4.09E+03	4.67E+03	5.26E+03
898.0	2.87E+03	3.10E+03	3.36E+03	3.62E+03	4.19E+03	4.77E+03	5.38E+03
1115.5	3.08E+03	3.33E+03	3.60E+03	3.89E+03	4.48E+03	5.10E+03	5.75E+03
1173.2	3.13E+03	3.38E+03	3.66E+03	3.95E+03	4.56E+03	5.19E+03	5.84E+03
1332.5	3.26E+03	3.53E+03	3.82E+03	4.12E+03	4.74E+03	5.40E+03	6.07E+03
1836.0	3.59E+03	3.89E+03	4.20E+03	4.54E+03	5.22E+03	5.92E+03	6.66E+03

4.3.2.3 Metodología de cribado de emergencias

El enfoque presentado en esta Tesis se basa en las recomendaciones de la USEPA (EPA 2008). La Figura 4.22 resume la metodología explicada a continuación.

En la primera etapa, se envía una muestra de 1 litro de capacidad al laboratorio sin información sobre los radionúclidos en la muestra ni su actividad. Se realiza una prueba inicial con un monitor de contaminación gamma para obtener la tasa de cuentas medidas (cps). Este monitor está calibrado para una geometría de muestra de 1 litro y para la energía del ^{241}Am (59.54 keV) y, por lo tanto, es posible obtener una aproximación de la emisión gamma de la fuente y su actividad. Este radionúclido representa el caso más restrictivo y se toma como referencia. En este paso, la muestra se clasifica como un caso de emergencia o como uno rutinario según lo define la guía del USEPA (EPA 2008).

El siguiente paso es tomar una muestra de 5 ml (sin diluir) y medirla durante 10 minutos en el detector BEGe para realizar un primer cribado de emergencia. La actividad esperada en la muestra de 5 ml se puede determinar a partir de la muestra de 1 litro, ya que son aproximadamente proporcionales, considerando la auto absorción dentro de la matriz de agua. Antes de realizar esta medición preliminar, se elige la distancia óptima fuente - detector para cumplir con el criterio de tiempo muerto como se ha explicado en el Apartado 4.3.2.2, comparando la emisión gamma de la muestra con los valores de la Tabla 4-12 (^{241}Am). Podría darse la situación en la que la muestra contuviese una actividad tan elevada que no pudiera situarse lo suficientemente alejada como para realizar la medición (por limitaciones estructurales), en cuyo caso, la muestra se diluiría reduciendo así la actividad específica, y se comenzaría de nuevo. Una vez finalizado el cribado, se obtiene un espectro gamma preliminar. El análisis del espectro permite conocer el radionúclido que aporta la principal contribución a la tasa de emisión gamma global (informe preliminar).

Finalmente, se realiza una medición durante 1 hora para caracterizar completamente la muestra (informe final). En esta etapa el volumen de muestra se puede aumentar hasta 50 ml, incrementando así su actividad junto con la tasa de contaje medida y mejorando la identificación de otros radionúclidos. En este punto, se debe elegir una combinación de volumen y distancia para optimizar la tasa de contaje cumpliendo con el criterio de tiempo muerto. La emisión gamma de la nueva muestra se compara con el máximo permitido para cada configuración (colección de tablas análogas a la Tabla 4-13 para las diferentes distancias fuente-detector). Teniendo en cuenta que cuanto mayor sea la actividad de la muestra, mayor será la dosis recibida por los trabajadores, la configuración final debe tomarse teniendo en cuenta los principios ALARA.

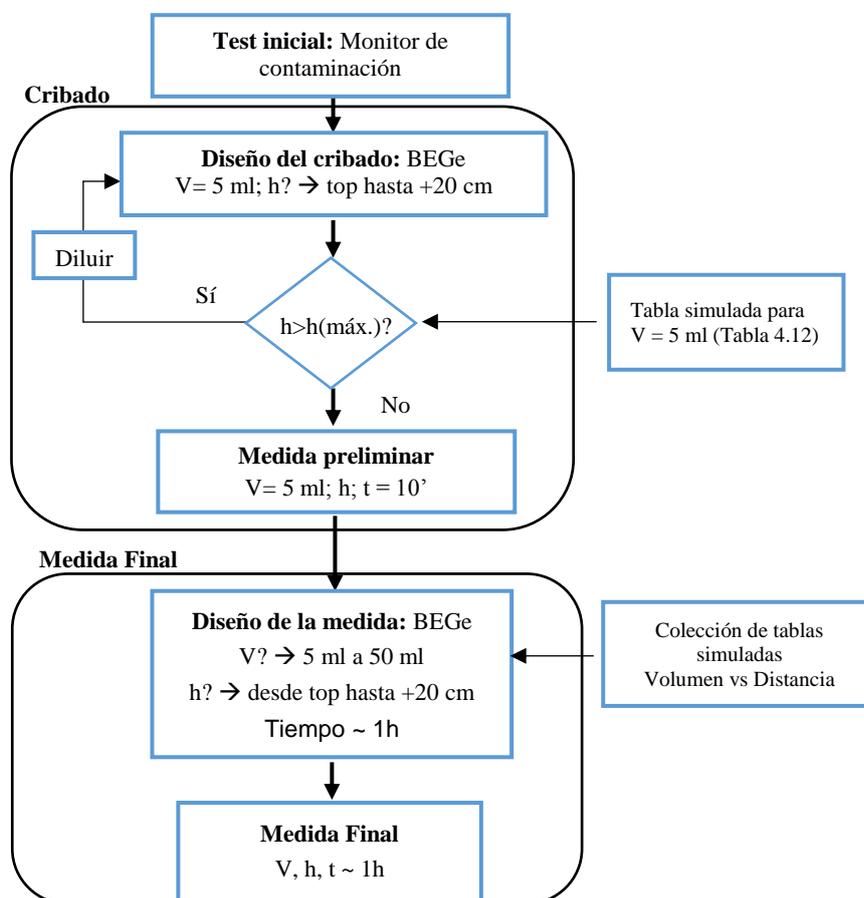


Figura 4.22. Procedimiento de cribado y medición

El problema es más sencillo si se considera un radionúclido con una sola emisión gamma principal. Si después de la medición preliminar, se detectase por ejemplo ^{60}Co con una cierta actividad como principal contribución (con emisiones gamma a 1173 keV y 1332 keV) ambas energías se deberían estudiar por separado. Cada uno tendrá una eficiencia diferente y, considerando la intensidad de emisión gamma de cada energía, es posible conocer su contribución a la tasa de emisión gamma global. Multiplicando la tasa de emisión gamma de cada fotón, por su eficiencia total, se obtiene la tasa de conteo debida a cada una de ellas. La tasa de conteo total (que no puede exceder los 426 cps) se calcula como la suma de ambos.

Hay que tener en cuenta que la actividad obtenida en la medición preliminar, en aquellos casos en los que se tengan radionúclidos con efecto de suma por coincidencia, deberá de corregirse. La decisión de aumentar o no el volumen de muestra para la medición final

empieza con este valor de actividad. Si se detecta más de un radionúclido en la muestra, el procedimiento sería análogo, calculando las cps debidas a cada emisión por separado y sumándolas.

4.3.3 Casos de aplicación

En esta sección se presentan tres casos para ilustrar el enfoque propuesto. Todos ellos comienzan con la muestra de 5 ml sin ninguna información sobre los radionúclidos que contiene. En los primeros dos casos, el radionúclido principal en la muestra es diferente, ^{241}Am y ^{137}Cs , respectivamente. El tercero consiste en una combinación de ambos radionúclidos. Se obtienen los mismos resultados con el monitor de contaminación y la suposición inicial es que se trata de ^{241}Am . Los radionúclidos reales en la muestra se conocerán después de la medición preliminar (cribado).

4.3.3.1 Caso 1 (^{241}Am)

A partir de la medición de la muestra de 1l con el monitor de contaminación gamma, se determina que la muestra de 5ml emite 3000 γ/s . Para decidir la distancia a la que situarla (cribado), este valor debe compararse con el máximo permitido para el ^{241}Am , utilizando la Tabla 4-12. La posición *top* tiene un límite de 1500 γ/s , inferior a las 3000 γ/s que emite la muestra. Sin embargo, es posible ubicarla 2.5 cm más elevada, con un nuevo límite de 3100 γ/s .

La medición se lleva a cabo durante 10 minutos a +2.5 cm y la prueba determina que el radionúclido principal presente en la muestra es ^{241}Am , obteniendo una actividad de 9.05 kBq. Considerando la probabilidad de emisión gamma para la energía de 59.54 keV (35.9%), la fuente emite 3250 γ/s , valor ligeramente mayor que el estimado usando el monitor gamma inicial.

Después de la evaluación inicial, se debe realizar la medición final durante 1 hora. Para mejorar la detección de otros posibles radionúclidos con menor actividad, se puede necesitar mayor volumen de fuente. Para decidir la configuración óptima de volumen y distancia, se debe verificar la Tabla 4-13 comparando la emisión gamma de cada muestra con el máximo permitido. La Tabla 4-14 resume la máxima emisión gamma permitida para las configuraciones posibles. La segunda columna muestra la emisión gamma de cada muestra, aumentando con el volumen. Los valores resaltados en verde son combinaciones permitidas y en rojo las no permitidas. Los valores en naranja representan combinaciones permitidas, pero no interesantes desde el punto de vista estadístico.

Tabla 4-14. Emisión gamma (γ/s) en cada muestra (col. 2) y la máxima permitida para cada configuración (^{241}Am).

Vol.	γ/s muestra	+2.5cm	+5cm	+7.5cm	+10cm	+12.5cm	+15cm
5 ml	3.25E+03	3.13E+03	5.61E+03	8.83E+03	1.31E+04	1.74E+04	2.29E+04
10 ml	6.50E+03	3.35E+03	5.92E+03	9.24E+03	1.33E+04	1.76E+04	2.31E+04
15 ml	9.75E+03	3.61E+03	6.29E+03	9.76E+03	1.40E+04	1.84E+04	2.41E+04
20 ml	1.30E+04	3.90E+03	6.72E+03	1.03E+04	1.47E+04	1.93E+04	2.52E+04
30 ml	1.95E+04	4.52E+03	7.66E+03	1.16E+04	1.65E+04	2.15E+04	2.79E+04
40 ml	2.60E+04	5.22E+03	8.71E+03	1.31E+04	1.84E+04	2.39E+04	3.10E+04
50 ml	3.25E+04	5.95E+03	9.83E+03	1.47E+04	2.06E+04	2.67E+04	3.44E+04

La mejor opción en términos de mejorar las estadísticas de medición será aquella cuya tasa de emisión gamma esté por debajo y más cerca de su límite. En este caso particular, la configuración volumen de 15 ml a una distancia de 7.5 cm sobre la posición *top* maximiza este parámetro con 97500 γ/s , lo que representa un 99% del límite de 97600 γ/s . A medida que la actividad aumenta de acuerdo con el volumen, la solución final debe considerar la dosis siguiendo los principios de ALARA.

4.3.3.2 Caso 2 (^{137}Cs)

Este caso comienza como el Caso 1, con 3000 γ/s en la muestra de 5 ml suponiendo ^{241}Am a partir de la lectura del monitor de contaminación gamma. La muestra se sitúa a 2.5 cm sobre la posición superior para la medición preliminar. La medición se lleva a cabo durante 10 minutos y el resultado determina que el radionúclido principal presente en la muestra es ^{137}Cs . La actividad de la muestra es de 3.59 kBq (corregida por la eficiencia del ^{137}Cs), lo que implica que la fuente emite 3050 γ/s (probabilidad del 85%).

Para la medición final, aunque el ^{137}Cs tiene una eficiencia menor que el ^{241}Am , la diferencia no es lo suficientemente grande como para situarla en $h=0$ (posición *top*) para que se satisfaga el 0.6% de tiempo muerto, por lo que se seguiría a +2.5 cm para la muestra de 5 ml. Para decidir la configuración final, se deben verificar las tablas análogas a la Tabla 4-13 para las diferentes distancias fuente-detector. Las nuevas configuraciones posibles se resumen en la Tabla 4-15.

Tabla 4-15. Emisión gamma (γ/s) en cada muestra (col. 2) y la máxima permitida para cada configuración (^{137}Cs).

Vol.	γ/s muestra	Top	+2.5cm	+5cm	+7.5cm	+10cm	+12.5cm
5 ml	3.05E+03	2.61E+03	5.67E+03	9.96E+03	1.54E+04	2.18E+04	2.85E+04
10 ml	6.10E+03	2.82E+03	5.98E+03	1.04E+04	1.58E+04	2.23E+04	2.89E+04
15 ml	9.15E+03	3.05E+03	6.33E+03	1.08E+04	1.64E+04	2.30E+04	2.97E+04
20 ml	1.22E+04	3.30E+03	6.71E+03	1.13E+04	1.71E+04	2.38E+04	3.06E+04
30 ml	1.83E+04	3.82E+03	7.53E+03	1.25E+04	1.85E+04	2.56E+04	3.27E+04
40 ml	2.44E+04	4.36E+03	8.39E+03	1.37E+04	2.02E+04	2.77E+04	3.52E+04
50 ml	3.05E+04	4.92E+03	9.32E+03	1.50E+04	2.19E+04	2.99E+04	3.78E+04

Siguiendo el mismo razonamiento que en el caso anterior, con ^{137}Cs la configuración óptima se daría al utilizar un volumen de 30 ml y a +7.5 cm de distancia, con una emisión gamma de 18300 y un límite de 18500 (98.9%).

4.3.3.3 Caso 3 (^{241}Am y ^{137}Cs)

En el caso hipotético de que ambos radionúclidos, ^{241}Am y ^{137}Cs , estén presentes en la muestra, la configuración más conservadora es la misma que si hubiera únicamente ^{241}Am (Tabla 4-14) debido a su mayor eficiencia total. Para una mejor estimación, el diseño de la medición final consiste en calcular la contribución de cada radionúclido a la emisión gamma total, luego la tasa de contejo medida debida a cada radionúclido y finalmente, la tasa de contejo total (Expresión 4.8 a Expresión 4.12).

$$\gamma_{Am-241} = \gamma_T \cdot P_{Am-241} \quad \text{Expresión 4.8}$$

$$\gamma_{Cs-137} = \gamma_T \cdot P_{Cs-137} \quad \text{Expresión 4.9}$$

$$CPS_{Am-241} = \gamma_{Am-241} \cdot Ef_total_{Am-241} \quad \text{Expresión 4.10}$$

$$CPS_{Cs-137} = \gamma_{Cs-137} \cdot Ef_total_{Cs-137} \quad \text{Expresión 4.11}$$

$$CPS_T = CPS_{Am-241} + CPS_{Cs-137} \quad \text{Expresión 4.12}$$

donde γ_X y γ_T son la tasa de emisión gamma de cada radionúclido y el total, respectivamente, P_X representa la contribución (%) de cada radionúclido a la emisión gamma total y CPS_X y CPS_T son la tasa de contejo de cada radionúclido y el total.

La tasa de contaje total no debe exceder el límite de 426 cps. En este caso, el cribado (10 minutos de medición con la muestra de 5 ml) indica una tasa de 3250 γ/s procedente tanto de ^{241}Am como de ^{137}Cs . En la Tabla 4-16 se resumen las mejores combinaciones para cinco contribuciones diferentes de cada radionúclido, siguiendo el procedimiento introducido en la Sección 4.3.2.3 para más de una emisión gamma. Todas las combinaciones muestran un valor de cps medidas muy cercanas, pero por debajo del límite de 426 cps.

Si se compara H2 con H4, que representan hipótesis opuestas en las que el óptimo se encuentra a la misma distancia (+12.5 cm), a mayor porcentaje de ^{241}Am (H2) menor volumen de muestra se puede utilizar (40 ml frente a 50 ml), debido a su mayor eficiencia total. Lo mismo ocurre al comparar los casos H3 con H5. Otro ejemplo es H2 con H5, en ambos casos se utiliza un volumen de 40 ml, pero en H2 (mayor % de ^{241}Am) se necesita situar la muestra a mayor distancia, +12.5 cm frente a +10 cm.

Tabla 4-16. Mejores configuraciones de medida para cada nivel de contribución

Hipótesis	^{137}Cs (% γ/s)	^{241}Am (% γ/s)	Altura	Volumen	cps
H1	10	90	+2.5 cm	5 ml	423
H2	25	75	+12.5 cm	40 ml	425
H3	50	50	+ 10 cm	30 ml	417
H4	75	25	+12.5 cm	50 ml	407
H5	90	10	+10 cm	40 ml	423

4.3.4 Conclusiones.

En este apartado se ha presentado una metodología para apoyar la espectrometría gamma que ofrece beneficios prácticos y mejoras para dar una respuesta rápida, sin detrimento de la seguridad laboral, en el contexto de emergencias nucleares y radiactivas. El Laboratorio de Radiactividad Ambiental (LRA) de la UPV ha desarrollado un procedimiento de espectrometría gamma mediante un detector BEGe respaldado con simulaciones en Monte Carlo (MCNP6) para caracterizar muestras de alta actividad.

Las simulaciones con MCNP6 han permitido estimar la actividad de muestra admisible para diferentes energías, volúmenes de fuente y distancias de muestra - detector para evitar la saturación del detector y cumplir con el criterio de tiempo muerto. La configuración óptima (máximo volumen y distancia mínima) cambia en función de la contribución relativa de cada radionúclido a la actividad global. La configuración óptima

conduce a un compromiso entre dichos parámetros y el tiempo de medición, pero también debe considerar los principios del criterio ALARA.

La metodología presentada es aplicable a diferentes radionúclidos y emisiones gamma (dentro del intervalo de energía estudiado) para el detector BEGe-5030, configurado para medir muestras de alta actividad en matrices de agua. Un aspecto para considerar a partir de este trabajo es el desarrollar metodologías que incluyan muestras de diferente composición y densidad.

En el caso de detectar radionúclidos con efecto de suma por coincidencia, habría que corregir su actividad previamente para conocer la tasa de emisión gamma real de cada una de sus emisiones en coincidencia y poder acceder así en el conjunto de tablas simuladas.

El desarrollo del cribado y de la secuencia de medición, basado en el uso de tablas obtenidas mediante simulación por Monte Carlo, permite determinar si la muestra necesita algún tratamiento previo, como dilución, y la configuración óptima para realizar las mediciones. Por lo tanto, la metodología y cribado propuestos permite reducir el tiempo de respuesta del laboratorio, así como el riesgo de contaminación y de exposición a la radiación para el personal del laboratorio.

Capítulo 5

Modelos de simulación para dosimetría

5.1 Introducción

Los dosímetros de termoluminiscencia TLD100 se utilizan frecuentemente en dosimetría personal aportando resultados fiables de $H_p(10)$ y $H_p(0.07)$ en campos mixtos de fotones/electrones. En la Universitat Politècnica de València (UPV), el TLD100 se utiliza para evaluar la dosimetría personal oficial de los trabajadores profesionalmente expuestos. Una de las características más importantes de estos dosímetros es la dependencia en energía y ángulo de incidencia (función de respuesta).

En la actualidad, se utilizan los códigos de Monte Carlo por ser herramientas computacionales fiables y precisas orientadas a la caracterización y calibración de este tipo de detectores en dosimetría personal y ambiental (Eakins et al. 2008; Hranitzky et al. 2002, 2006; Hranitzky and Stadtmann 2007). En este contexto, se ha desarrollado un modelo del TLD100-HARSHAW utilizando el código de Monte Carlo MCNP6 con el que se realizan simulaciones siguiendo el procedimiento experimental de calibración. Se realiza un análisis detallado de la respuesta del cristal en un intervalo de energía 30 keV - 661 keV, obteniendo funciones de respuesta (RRE) para diferentes condiciones de irradiación, incluyendo haces de diferente calidad y ángulos de incidencia y estudiando su comportamiento.

5.2 Materiales y métodos

5.2.1 TLD100 – HARSHAW

El dosímetro empleado es un TLD100-HARSHAW (Figura 5.1) con detectores de termoluminiscencia de LiF dopado con Mg y Ti. Está compuesto por 2 detectores (cristales) de $3.2 \times 3.2 \times 0.9 \text{ mm}^3$, cada uno con un filtrado diferente según el tipo de dosis que se quiera obtener. Para dosis profunda ($H_p(10)$) se emplea un filtro semiesférico de teflón con un radio de 4.75 mm y el propio plástico ABS del porta-dosímetro y para la superficial ($H_p(0.07)$) un filtro de Mylar de 0.1 mm de espesor.

Los cristales están envueltos por una capa de 300 μm de Teflón y situados en una placa de aluminio de 1 mm de espesor. Esta a su vez está contenida en una tarjeta portadosímetro, fabricada en plástico ABS de aproximadamente 3.3 mm.

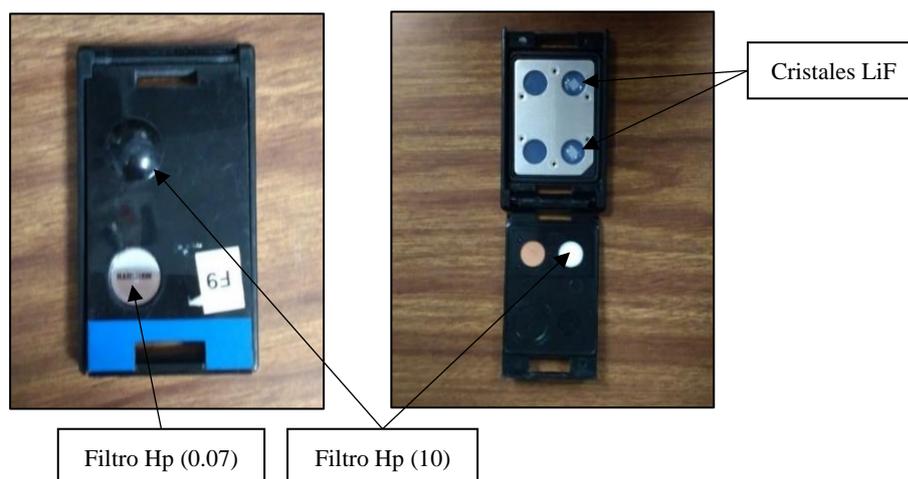


Figura 5.1. TLD100-HARSHAW LiF: Mg, Ti. Fuente: SDPE-UPV

5.2.2 Simulación de espectros de rayos X

El modelo de simulación incluye la fuente de rayos X para energías comprendidas entre 30 keV y 661 keV. Dichas fuentes se han modelado como espectros de rayos X, de acuerdo a (Ankerhold 2000) y a la norma ISO-4037-1 *Narrow Series* (ISO 4037-1 1996), obtenidos mediante simulación de Monte Carlo, con el código MCNP6.

Un modo alternativo sería simular únicamente haces monoenergéticos, lo cual resultaría más sencillo. No obstante, se ha decidido modelar la fuente con espectros para realizar simulaciones más realistas. La Tabla 5-1 y la Tabla 5-2 muestran los resultados obtenidos por el registro F6 (MeV/g) utilizando espectros y haces monoenergéticos para tres calidades diferentes, N40, N100 y N300. La energía simulada en los casos de fuente monoenergética se corresponde con la energía media para cada calidad de haz de rayos X de acuerdo a (Ankerhold 2000) y a la norma ISO-4037-1 *Narrow Series* (ISO 4037-1 1996).

La simulación de los espectros de rayos X se ha realizado a partir de un modelo que incluye lo siguiente:

- Fuente puntual de electrones monoenergética.
- Ánodo de tungsteno a 20°.
- Registro F5, flujo de partículas en un detector puntual (partículas/cm²).

La atenuación de los rayos X al atravesar los filtros puede tenerse en cuenta de dos formas, incluyéndolos en el propio modelo de simulación o a posteriori. Esta última opción es la que se ha empleado en este trabajo. Para ello se realizan las simulaciones sin filtro y al flujo de rayos X obtenido se le aplica la reducción correspondiente a la atenuación debida a dichos filtros (Expresión 5.1).

$$\theta_S(E) = \theta_E(E) \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho}(E)x} \quad \text{Expresión 5.1}$$

donde $\theta_S(E)$ y $\theta_E(E)$ son el flujo de rayos X final e inicial, respectivamente, como función de la energía del fotón (E) expresada en electrón voltios, $\mu/\rho(E)$ es el coeficiente de atenuación másico del material de filtrado expresado en unidades de cm²/g, ρ es la densidad de dicho material (g/cm³) y x su espesor (cm). Los coeficientes de atenuación másica se han obtenido de la base de datos del NIST (Hubbell y Seltzer 2004). La Figura 5.2 y la Figura 5.3 muestran los espectros obtenidos incluyendo en el modelo de simulación los filtros y sin incluirlos para las calidades N40 y N100, respectivamente. El espectro de calidad N100 (Figura 5.3) presenta un error estadístico asociado al cálculo de Monte Carlo superior al N40 debido a que el espectro que se genera abarca un intervalo de energía superior y por tanto el código simula el transporte de un número mayor de fotones, para un mismo número de historias simuladas.

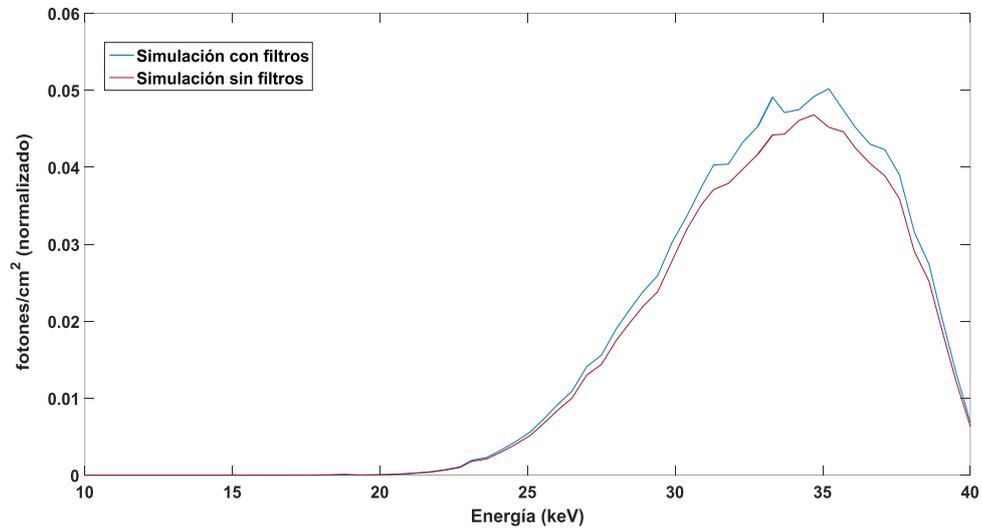


Figura 5.2. Haces de R-X N40 aplicando el filtro en la simulación y a posteriori con la Ex. 5.1

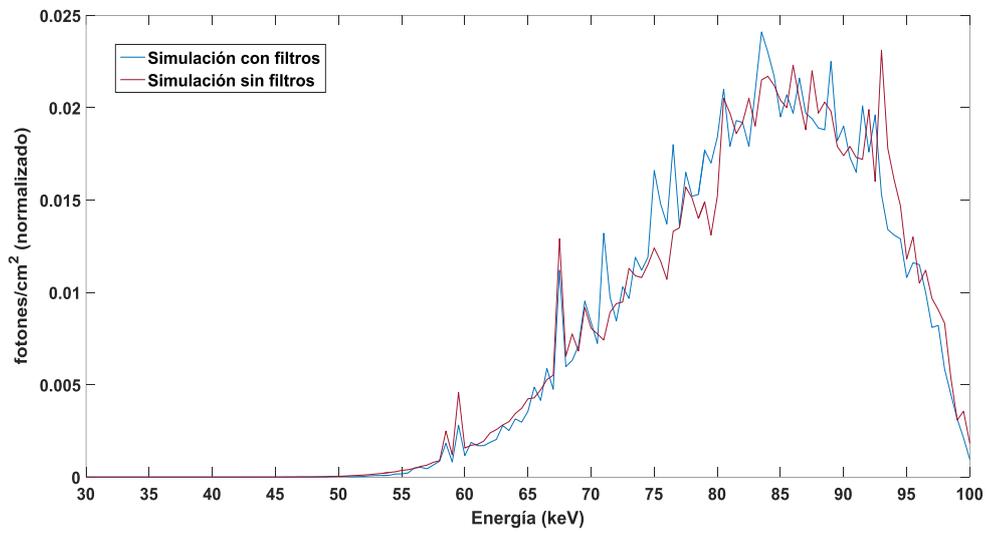


Figura 5.3. Haces de R-X N100 aplicando el filtro en la simulación y a posteriori con la Ex. 5.1

Tabla 5-1. Energía absorbida (registro F6, MeV/g) para haces monoenergéticos y espectros (Incertidumbre entre paréntesis); Cristal de dosis profunda.

	E_{media} (keV)	Monoenergético	Espectro
N40	33.3	2.488E-6 (0.58%)	2.487E-6 (0.54%)
N100	83.3	1.617E-6 (0.43%)	1.634E-6 (0.43%)
N300	248.4	3.612E-6 (0.40%)	3.602E-6 (0.41%)

Tabla 5-2. Energía absorbida (registro F6, MeV/g) para haces monoenergéticos y espectros (Incertidumbre entre paréntesis); Cristal de dosis superficial

	E_{media} (keV)	Monoenergético	Espectro
N40	33.3	2.940E-6 (0.60%)	3.006E-6 (0.48%)
N100	83.3	1.691E-06 (0.41%)	1.702E-6 (0.42%)
N300	248.4	3.786E (0.39%)	3.755E-6 (0.40%)

5.2.3 Modelo en MCNP6 del TLD100

Se ha empleado el código MCNP6 (Monte Carlo team 2013) para realizar un modelo del TLD-100 (Figura 5.4 a Figura 5.6) y caracterizar su función de respuesta bajo diferentes condiciones de irradiación. La fuente de rayos X se ha simulado como un haz uniforme y paralelo de 50x50 cm y a 250 cm del TLD como muestra la Figura 5.8. Los diferentes espectros de rayos X se simulan con MCNP6 tal y como se ha comentado en la sección anterior.

El modelo simula el transporte de radiación tanto en el dosímetro como fuera de él, incluyendo los efectos de atenuación y dispersión con el medio que lo rodea y con los materiales circundantes.

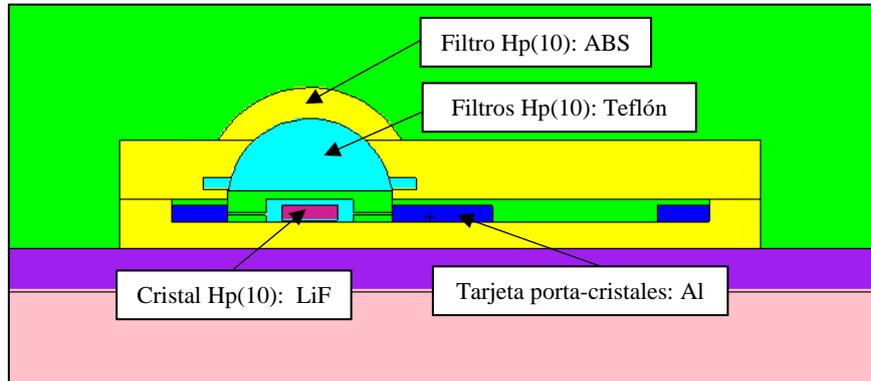


Figura 5.4. Modelo del TLD-100 con MCNP6; Filtro de dosis profunda Hp(10)

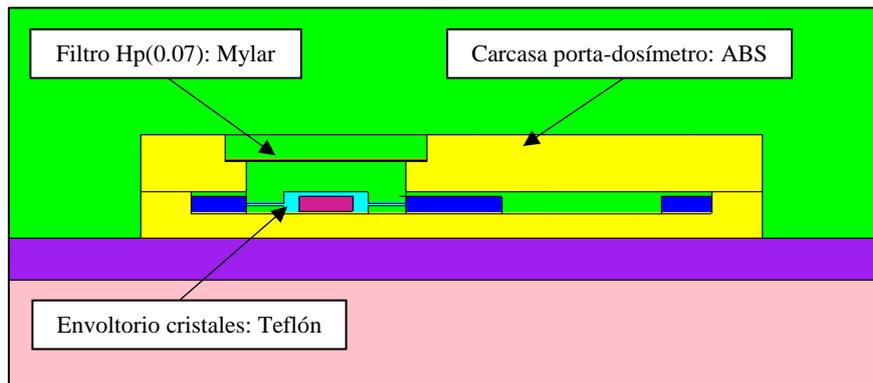


Figura 5.5. Modelo del TLD-100 con MCNP6; Filtro de dosis superficial Hp(0.07)

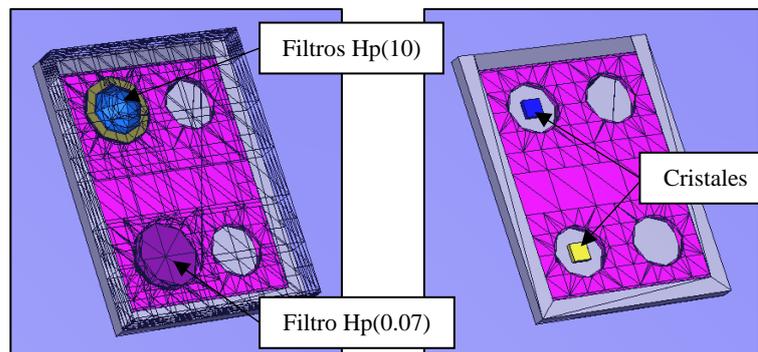


Figura 5.6. Modelo 3D del TLD-100; Filtros y cristales

En el modelo de simulación se incluye el fantoma, *water slab phantom*, siguiendo las recomendaciones de la (ISO 4037-3 1999). Tiene unas dimensiones de 30x30x15 cm³ compuesto por una carcasa de polimetilmetacrilato (PMMA) conteniendo agua en su interior. La carcasa tiene un espesor de 2.5 mm en su cara frontal, respecto del haz de radiación, donde se sitúa el TLD y 10 mm en el resto (Figura 5.7 y Figura 5.8).

Se ha empleado el registro F6 (Eakins et al. 2008) para registrar la energía absorbida por los detectores en las celdas correspondientes a ambos cristales (MeV/g). Esto mismo se puede realizar con el registro F4, obteniendo flujo de fotones (fotones/cm²) y con el registro *F8 (MeV).

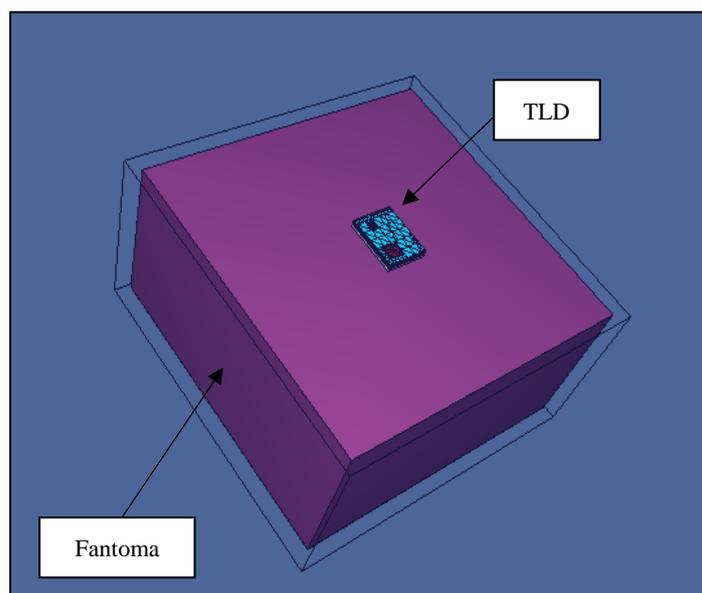


Figura 5.7. Modelos 3D del TLD-100 sobre el fantoma

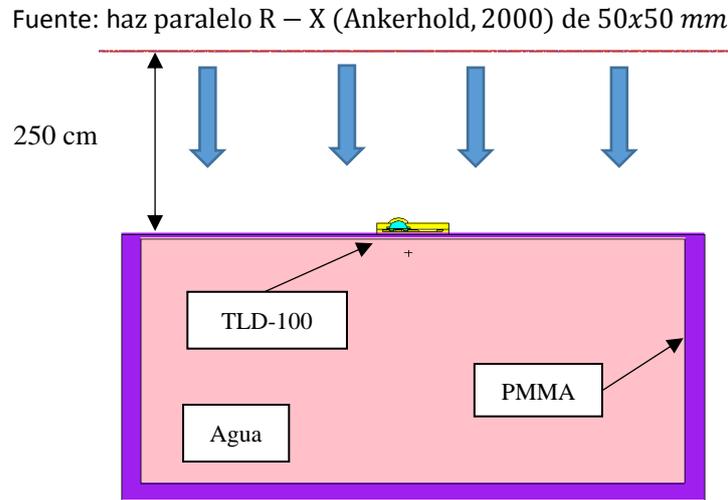


Figura 5.8. Modelo del TLD-100 sobre el fantoma; Condiciones de irradiación

Con estas tres opciones se puede llegar al mismo resultado aplicando antes una serie de factores de conversión. En el caso del registro F4 hay que convertir el flujo de fotones en energía depositada, aplicando para ello los coeficientes de absorción másica para el material y energía de interés (Expresión 5.2 y Figura 5.9). Para el registro *F8 en cambio, únicamente es necesario dividir el resultado obtenido por la masa de la celda en la que se está recogiendo la energía depositada, pasando así de MeV a MeV/g (unidades del registro F6).

$$E. depositada \left(\frac{MeV}{g} \right) = \theta \left(\frac{fotón}{cm^2} \right) \cdot E \left(\frac{MeV}{fotón} \right) \cdot \frac{\mu_{en}}{\rho} \left(\frac{cm^2}{g} \right) \quad \text{Expresión 5.2}$$

donde θ representa el flujo de fotones (resultado del registro F4), E es la energía del fotón y μ_{en}/ρ es el coeficiente de absorción másico. La Tabla 5-3 muestra los errores estadísticos asociados al cálculo de Monte Carlo para cada tipo de registro. Por otro lado, también se presentan los resultados de energía absorbida por el cristal de dosis profunda con cada uno de los tres registros (Tabla 5-4, en unidades de MeV/g), tras aplicar los factores de conversión pertinentes (Expresión 5.2 para el F4). En cuanto a los resultados para el registro F6 y el *F8, a pesar de ser muy similares, el error obtenido en este último es mayor, llegando a superar al del F6 en casi un orden de magnitud. La diferencia entre el F4 y el F6 es prácticamente nula

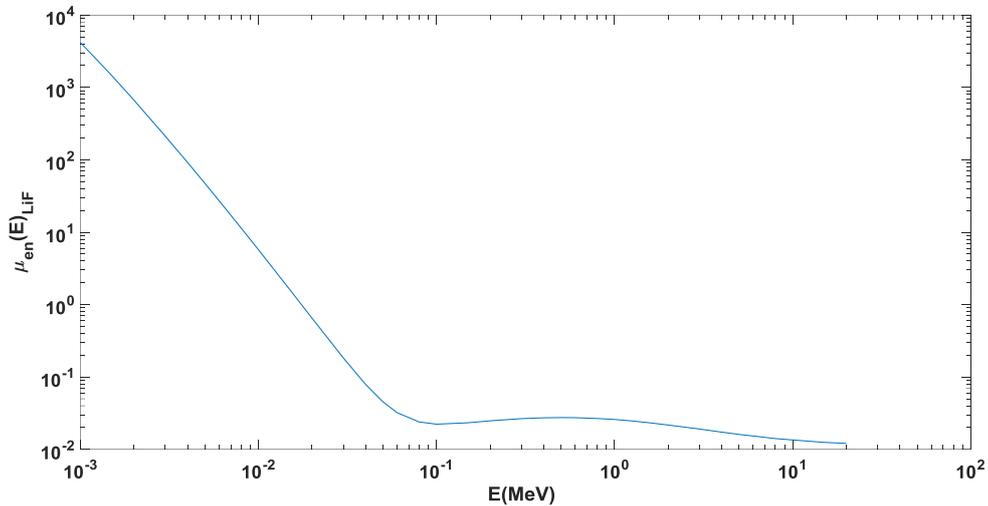


Figura 5.9. Función de absorción másica (μ_{en}/ρ) en función de la energía para el LiF

Tabla 5-3. Errores estadísticos asociados a los registros F4, F6 y *F8 para un mismo número de historias simuladas (NPS=1.0E9)

Calidad rayos X	F4 (fotones/cm ²)	F6 (MeV/g)	*F8 (MeV)
N40	0.51%	0.54%	2.22%
N100	0.42%	0.43%	2.97%
N300	0.41%	0.41%	2.87%

Tabla 5-4. Conversión a energía absorbida (MeV) en el cristal de dosis profunda partiendo de los registros F4 (Ec. 5.2), F6 y *F8.

Calidad rayos X	F6 (MeV/g)	F4 (MeV/g)	*F8 (MeV/g)	F4/F6	F8/F6
N40	2.484E-6	2.499E-6	2.468E-6	1.01	0.99
N100	1.634E-6	1.655E-6	1.598E-6	1.01	0.98
N300	3.590E-6	3.591E-6	3.541E-6	1.00	0.99

Además del dosímetro, se ha realizado un segundo modelo en el que únicamente se simulan los detectores, es decir, los cristales de LiF ubicados en el interior del fantoma. En un primer caso, el cristal se sitúa 10 mm por debajo de la superficie y a continuación a 0.07 mm, lo que equivaldría a simular la energía absorbida por los cristales de dosis profunda y superficial, respectivamente ($H_p(10)$ y $H_p(0.07)$). De este modo, es posible comparar la respuesta del dosímetro obtenida con el modelo completo del TLD, en el

que la radiación atraviesa los filtros correspondientes para obtener la dosis profunda y superficial, con la obtenida según la descripción teórica de ambas magnitudes.

5.2.4 Función de Respuesta Relativa

Para calcular la respuesta del dosímetro se ha simulado únicamente el transporte de fotones, utilizando la aproximación a kerma para determinar la dosis absorbida en los cristales (Eakins et al. 2008).

La respuesta relativa $R(\theta, E)$ del dosímetro frente a una fuente de radiación de energía E , y ángulo de incidencia θ se ha definido relativa al ^{137}Cs a 0° a partir de las respuestas a $H_p(10)$ o $H_p(0.07)$ en términos de kerma en aire y corregidas por los coeficientes de conversión a dosis equivalente (Expresión 5.3 y Expresión 5.4).

$$R(\theta, E) = \frac{K(\theta, E)_{\text{LiF}} \times K(0, Cs)_{\text{Air}}}{K(\theta, E)_{\text{Air}} \times K(0, Cs)_{\text{LiF}}} \times \frac{h(0, Cs)}{h(\theta, E)} \times \eta'(E) \quad \text{Expresión 5.3}$$

$$h(\theta, E) = \frac{H_p(X)}{K(\theta, E)_{\text{Air}}} \quad \text{Expresión 5.4}$$

donde $K(\theta, E)_M$ es la energía absorbida en el detector de interés ($H_p(10)$ o $H_p(0.07)$), estimado a partir del registro F6 de MCNP6, para el material del detector, LiF (aproximación a kerma) o aire (kerma), $h(\theta, E)$ es el coeficiente de conversión de kerma en aire a dosis para una energía y ángulo de incidencia dado en el detector de interés, $\eta'(E)$ es la eficiencia termoluminiscente relativa al LiF en función de la energía y $H_p(X)$ es la dosis obtenida en un cristal (detector) de agua a X mm de profundidad desde la superficie frontal del fantoma, estimada a partir del registro F6 en forma de energía absorbida.

Para obtener la función de respuesta, se obtiene el kerma en aire, $K(\theta, E)_{\text{Air}}$, para cada energía de interés, simulando únicamente el cristal (material aire). A continuación, se realiza el mismo procedimiento, pero cambiando el material del detector por agua, $H_p(X)$, introducidos en el interior del fantoma a la profundidad correspondiente (10 mm o 0.07 mm) y se calculan los coeficientes de conversión $h(\theta, E)$ según la Expresión 5.4. El siguiente paso consiste en obtener la aproximación a kerma según la energía y ángulo de irradiación para el modelo completo de TLD situado sobre el fantoma y normalizarla respecto al ^{137}Cs (Expresión 5.3).

La respuesta del dosímetro a diferentes ángulos de incidencia se ha simulado del mismo modo y posicionando la fuente a 0° , 30° , 60° y 75° relativos al ángulo comprendido entre la dirección de irradiación y la superficie frontal del fantoma, siendo 0° la exposición

normal al plano frontal del TLD y 75° la más inclinada antes de llegar a la irradiación paralela en 90° .

5.3 Resultados

Tal y como se ha explicado en la sección anterior, el primer paso consiste en calcular los coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis equivalente. Para ello, se ha obtenido el kerma en aire para un ángulo de incidencia de 0° , $K(0^\circ, E)_{\text{aire}}$, y la energía absorbida por los cristales de $H_p(10)$ y $H_p(0.07)$ a partir del registro F6 (Figura 5.10). Se observa un comportamiento lineal a partir de 100 keV presentando un mínimo en 60 keV. Los resultados para $H_p(0.07)$ son muy superiores a los de $H_p(10)$ hasta una energía de 30 keV, a partir de la cual son prácticamente coincidentes.

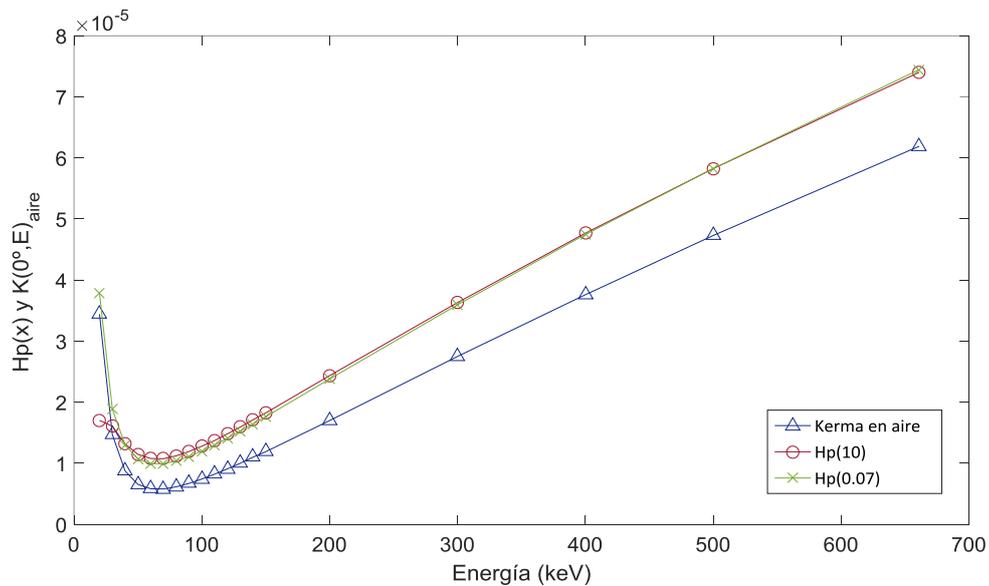


Figura 5.10. $H_p(10)$, $H_p(0.07)$ y kerma en aire ($K(0^\circ, E)$)

Los coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis equivalente se han obtenido tanto para dosis profunda (10 mm) como para superficial (0.07 mm) y se han validado comparándolos con los calculados por (Gualdrini y Morelli 1996) y (Grosswendt 1991), obteniendo resultados coherentes tal y como muestran la Figura 5.11 y la Figura 5.12.

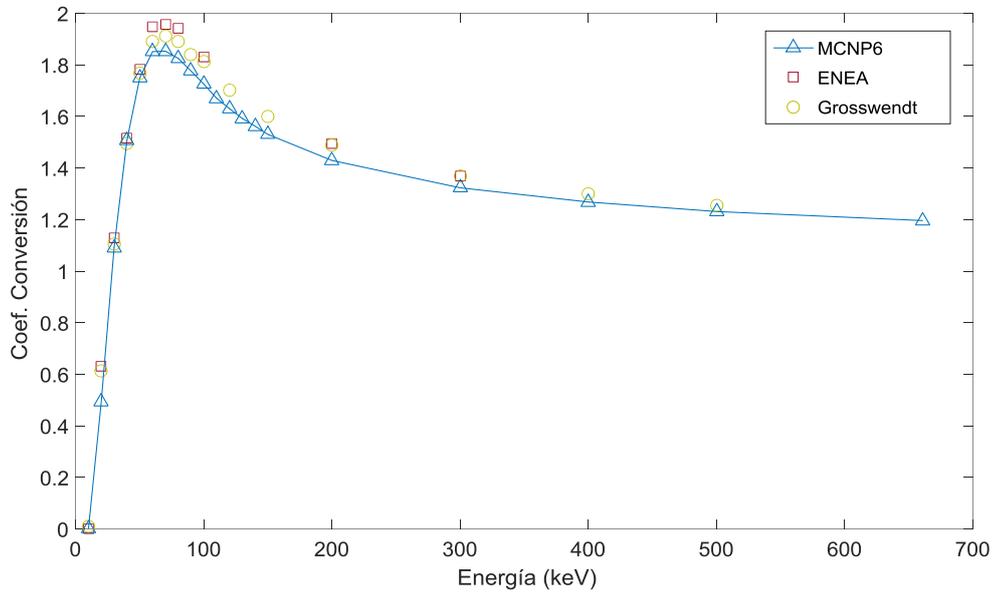


Figura 5.11: Coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis para $H_p(10)$; $h(0^\circ, E)$

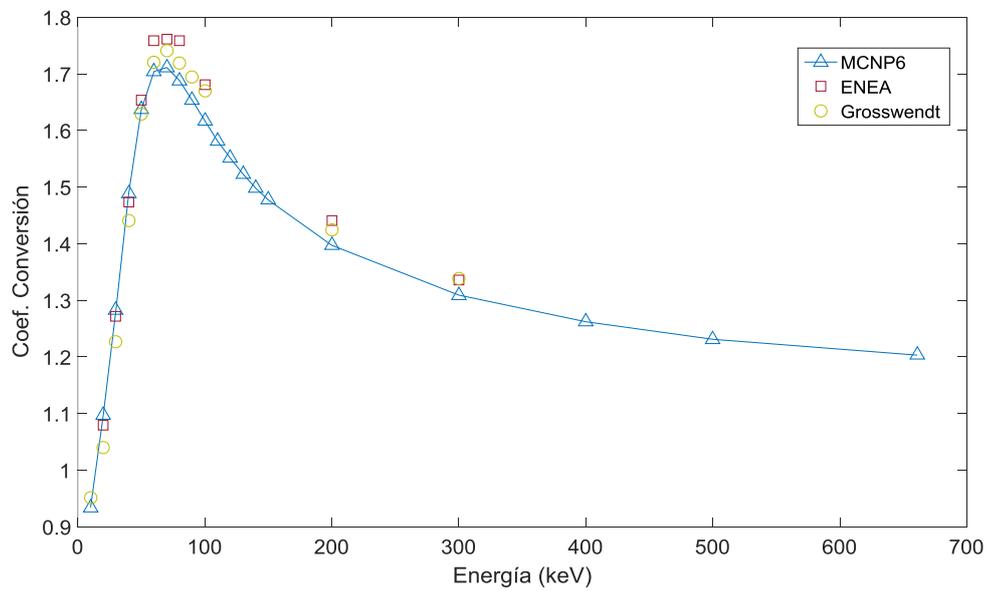


Figura 5.12: Coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis para $H_p(0.07)$; $h(0^\circ, E)$

Tras simular la aproximación a kerma, para cada energía de interés con el modelo del TLD completo y situado sobre la superficie frontal del fantoma, ya se puede obtener la respuesta del dosímetro de acuerdo a la Expresión 5.3 tanto para dosis profunda como superficial (Figura 5.13 y Figura 5.14, respectivamente). De un modo análogo, se ha calculado la respuesta del dosímetro simulando cada cristal por separado e introducido dentro del fantoma a la profundidad correspondiente para dosis profunda (10 mm) y superficial (0.07 mm). De este modo se han comparado los resultados obtenidos con el modelo de TLD completo y los obtenidos según la descripción teórica.

En el caso del cristal con el filtro de dosis profunda, ambos modelos presentan resultados similares, pero con diferencias de entre el 4% y el 11% hasta 33 keV y de entre el 1% y el 5% a partir de 48 keV. En el caso del cristal de dosis superficial, ambos modelos presentan resultados prácticamente idénticos a partir de los 33 keV y con diferencias de entre el 3% y el 7% por debajo de esta.

Otro modo de validación del modelo del TLD100 ha sido comparar la ratio de energías absorbidas por el cristal de dosis profunda y por el de superficial, $H_p(10) / H_p(0.07)$, a partir de los resultados simulados con el registro F6 con la obtenida en las calibraciones experimentales. La Figura 5.15 muestra esta ratio, observándose buenos resultados en general. No obstante, entre 65 keV y 83 keV, la curva experimental muestra una tendencia que difiere con la simulada que convendría estudiar más detalladamente. Este paso permite discriminar la energía a la que ha sido irradiado el TLD, pues cada material de filtrado responde de un modo diferente a la energía que lo atraviesa.

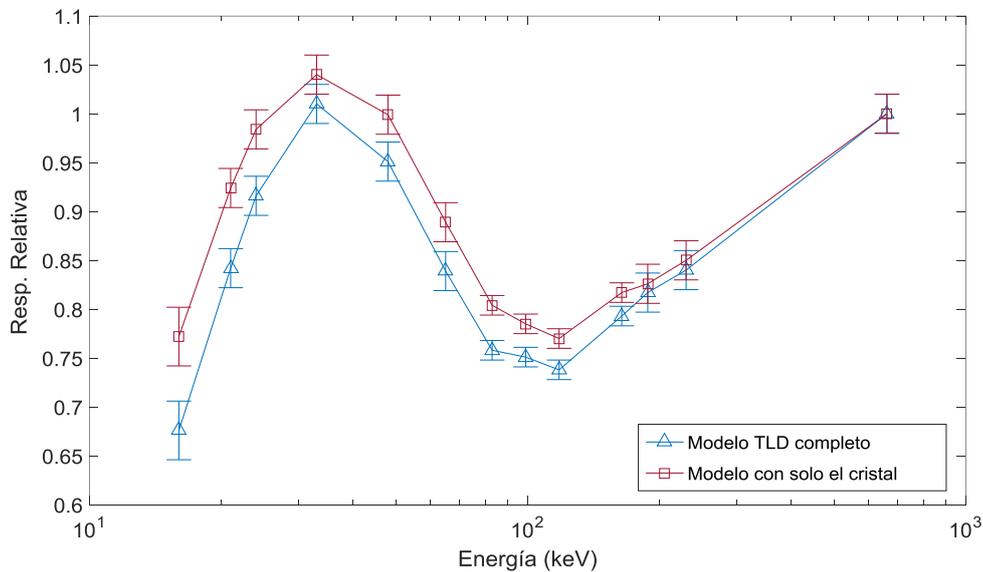


Figura 5.13: Función de Respuesta Relativa para $H_p(10)$; $R(0^\circ, E)$

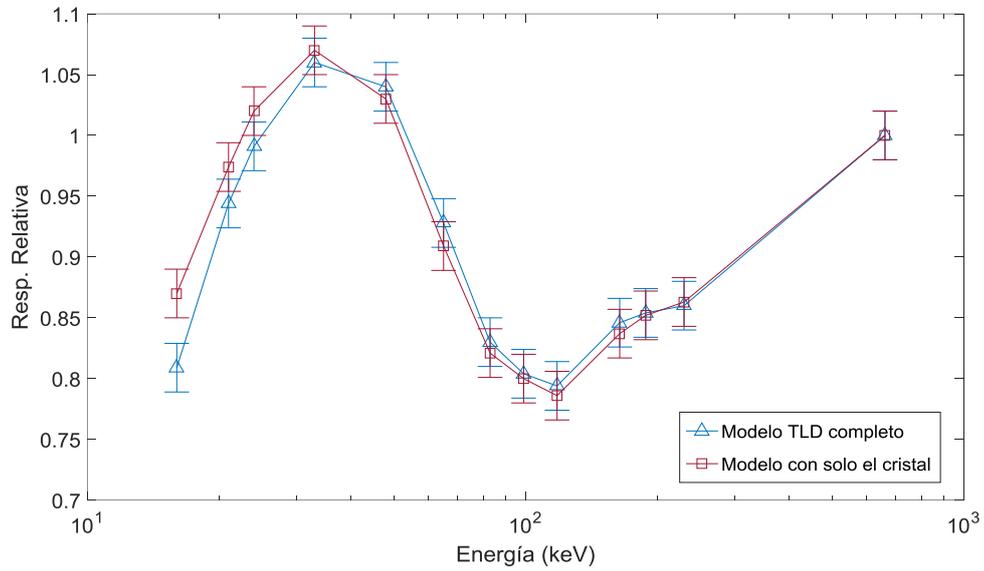


Figura 5.14: Función de Respuesta Relativa para $H_p(0.07)$; $R(0^\circ, E)$

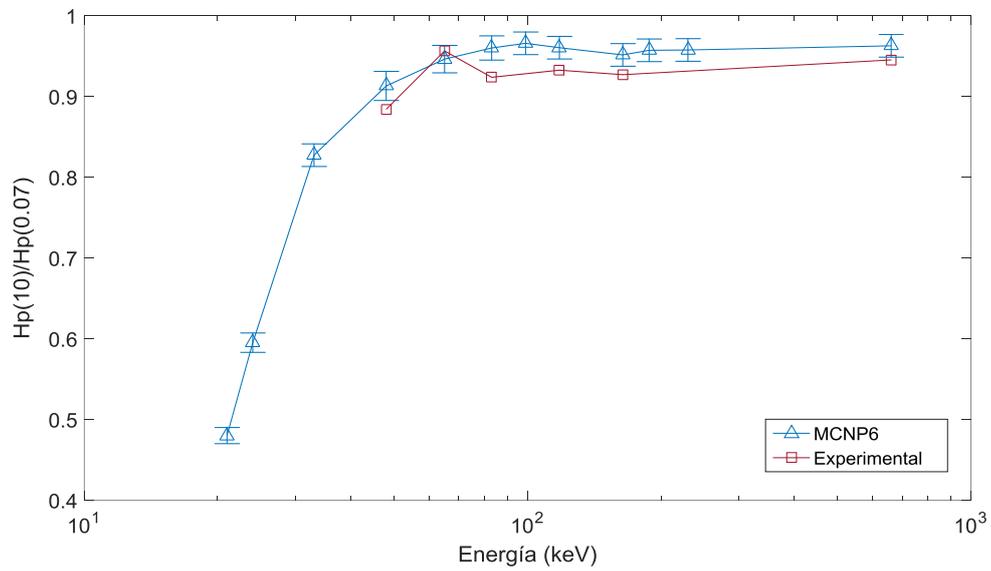


Figura 5.15: Ratio de RREs (cristal de profunda / superficial) simulada y experimental

Aunque el dosímetro TLD-100 empleado solo utiliza dos cristales debajo de sendos filtros de teflón y Mylar, la tarjeta está realmente preparada para poder albergar hasta cuatro cristales con dos filtros adicionales de cobre (1.1 mm) y plástico ABS (3 mm, dosis al cristalino) (Figura 5.16).

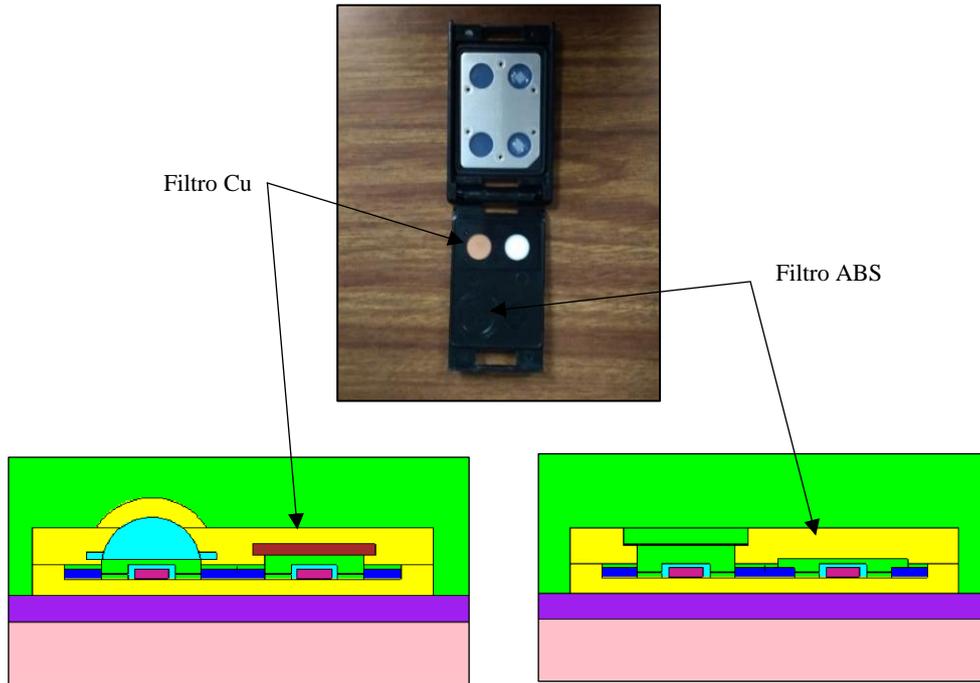


Figura 5.16. TLD100-HARSHAW LiF: Mg, Ti; Filtros de Cu y ABS

De un modo análogo al empleado para obtener la Figura 5.15, se han obtenido las relaciones de la RRE de cada uno de los cuatro cristales con el resto para ver su comportamiento en el caso de incluir tarjetas con los cuatro cristales en un futuro (Figura 5.17). Tener cuatro cristales supone una ventaja al poder obtener más relación de RREs y compararlas entre sí para poder averiguar la energía de irradiación de un modo más consistente. Las curvas que relacionan las respuestas relativas del filtro de cobre con las de $H_p(10)$, $H_p(0.07)$ y $H_p(\text{cristalino})$ son monótonas crecientes, haciendo más fácil identificar la energía de irradiación. Con los dos cristales de $H_p(10)$, $H_p(0.07)$ únicamente, las opciones son más limitadas, pues únicamente se puede obtener una única curva que relacione las RREs.

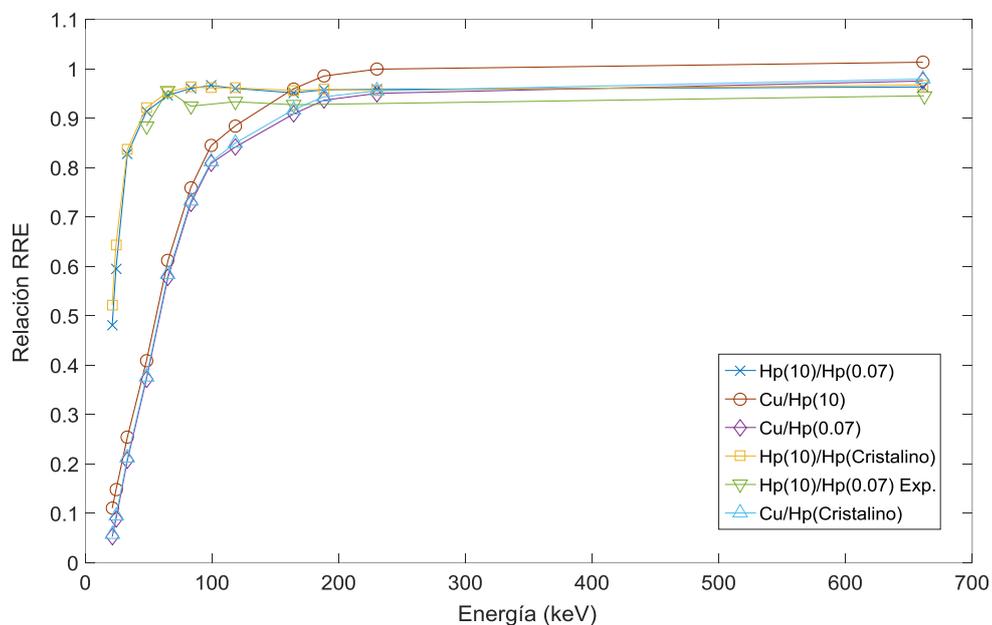


Figura 5.17. Relación de la RRE para cada material de filtrado

Se ha simulado la respuesta relativa del TLD según el ángulo de incidencia (Figura 5.18). La Figura 5.19 y la Figura 5.20 muestran estos resultados para la energía absorbida por los cristales de $H_p(10)$ y $H_p(0.07)$, respectivamente en función del ángulo: 0° (normal a la superficie frontal del fantoma), 30° , 60° y 75° . En ambos casos, la respuesta relativa obtenida a 0° y 30° es muy similar, diferenciándose levemente por debajo de 48 keV. La respuesta relativa para 60° y especialmente para 75° sí que muestra diferencias significativas hasta los 80 keV, siendo más notable en el caso de $H_p(10)$, con valores mayores a los obtenidos para 0° y 30° y con una tendencia creciente a medida que disminuye la energía.

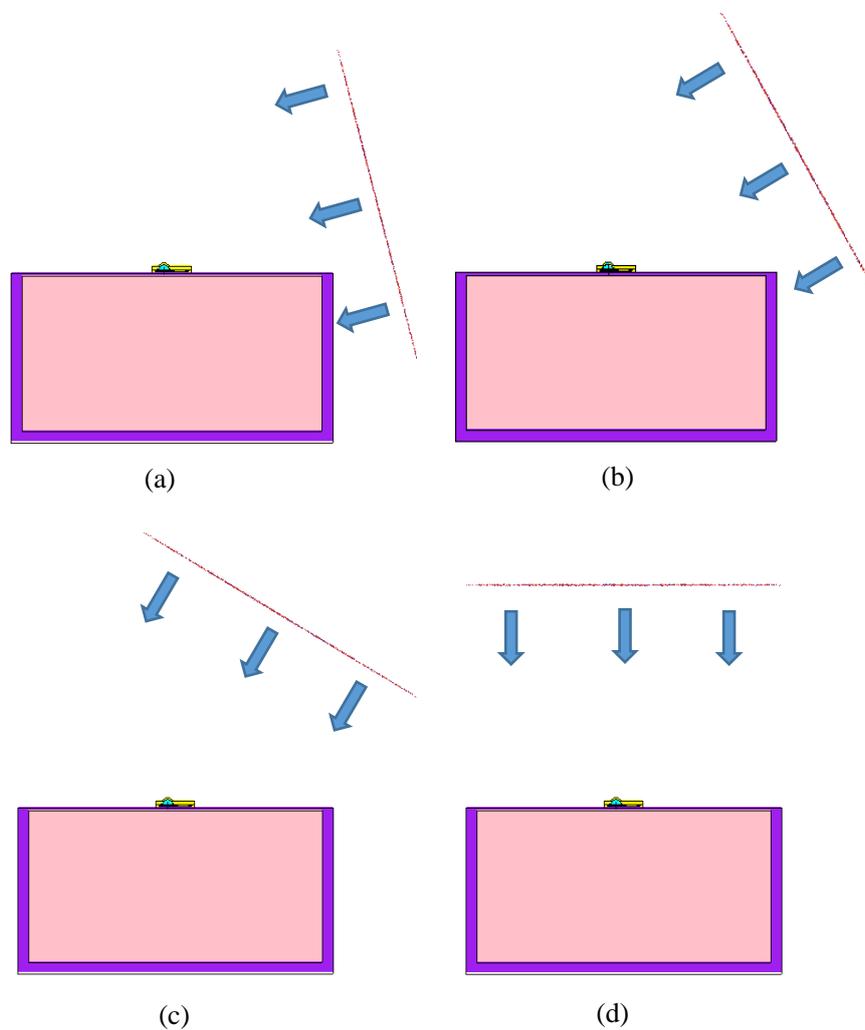


Figura 5.18. Modelos con la fuente de R-X orientada a 75° (a), 60° (b), 30° (c) y 0° (d). Condiciones de irradiación: haz de 50x50 cm y a 250 cm de distancia (no a escala)

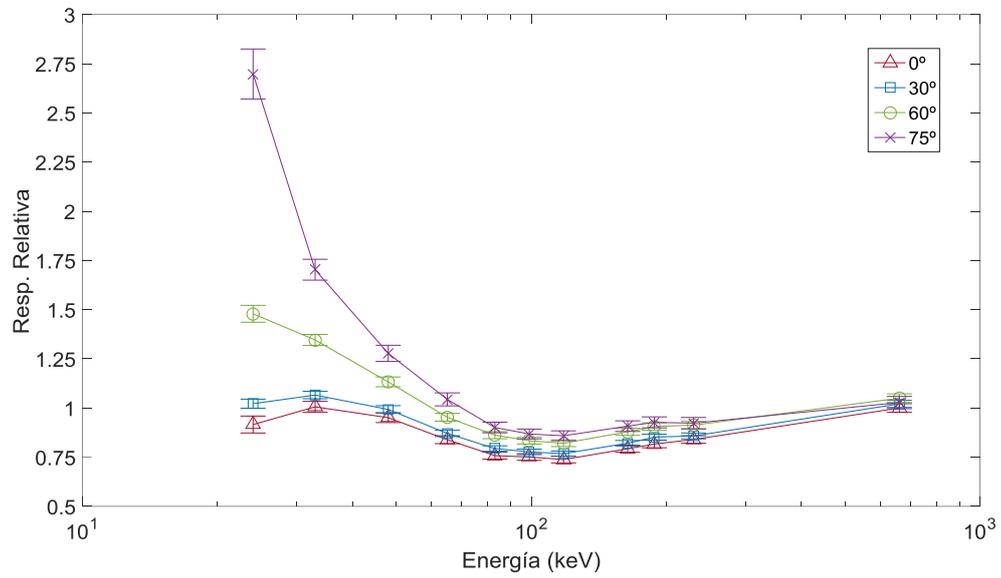


Figura 5.19: Respuesta $H_p(10)$ del TLD100 para diferentes ángulos de incidencia

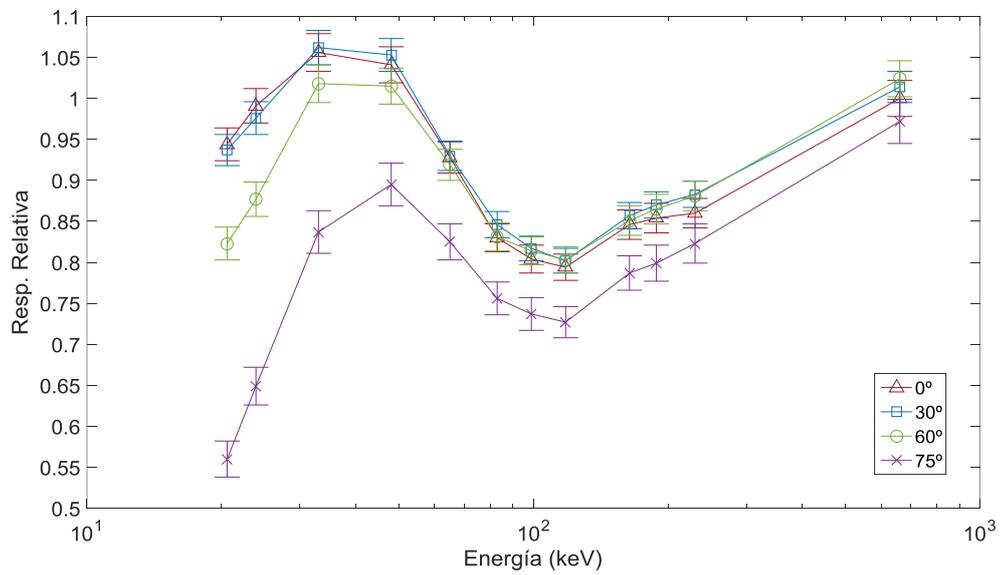


Figura 5.20: Respuesta $H_p(0.07)$ del TLD100 para diferentes ángulos de incidencia

Por otro lado, se ha modificado este modelo sustituyendo el material original (LiF) por otros tres comúnmente utilizados en la fabricación de detectores de termoluminiscencia.

La Figura 5.21 y la Figura 5.22 muestran las respuestas relativas de dosis profunda y superficial, respectivamente para el LiF, Al₂O₃, CaF₂ y CaSO₄. Puesto que no se dispone actualmente de la eficiencia termoluminiscente ($\eta'(E)$) para el resto de los materiales, los resultados mostrados se han calculado sin tener en cuenta dicho coeficiente en la Expresión 5.3.

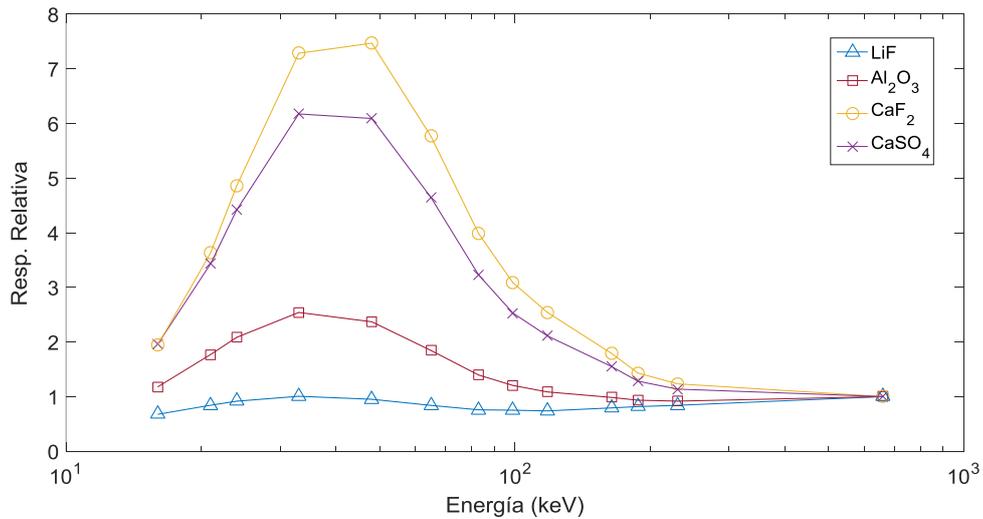


Figura 5.21. Respuesta relativa simulada para dosis profunda para diferentes materiales

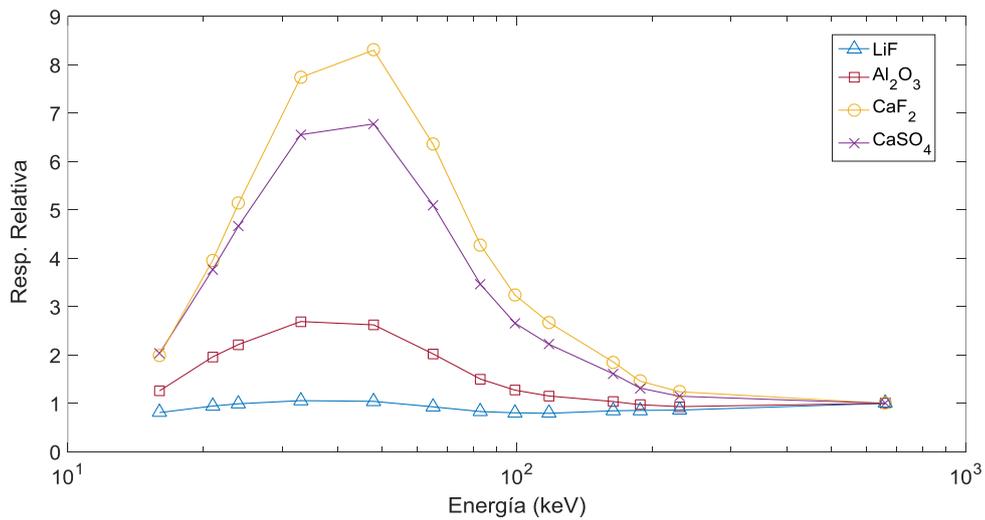


Figura 5.22. Respuesta relativa simulada para dosis superficial para diferentes materiales

Se puede apreciar que la respuesta obtenida difiere considerablemente en función del material, destacando el CaF_2 y el CaSO_4 , con valores muy superiores entre los 20 keV y los 100 keV aproximadamente.

Del mismo modo que en la Figura 5.15, se ha obtenido el ratio $H_p(10)/H_p(0.07)$ para estos cuatro materiales (Figura 5.23). El comportamiento obtenido es muy similar en general y coincidentes hasta los 65 keV. Por un lado, el CaF_2 y CaSO_4 muestran una ratio coincidente en todo el intervalo de energía, mientras que el LiF y el Al_2O_3 presentan comportamientos similares a partir de los 65 keV. El error relativo de cada valor está comprendido entre el 1.5% (16 keV) y el 0.5% (661 keV) aproximadamente.

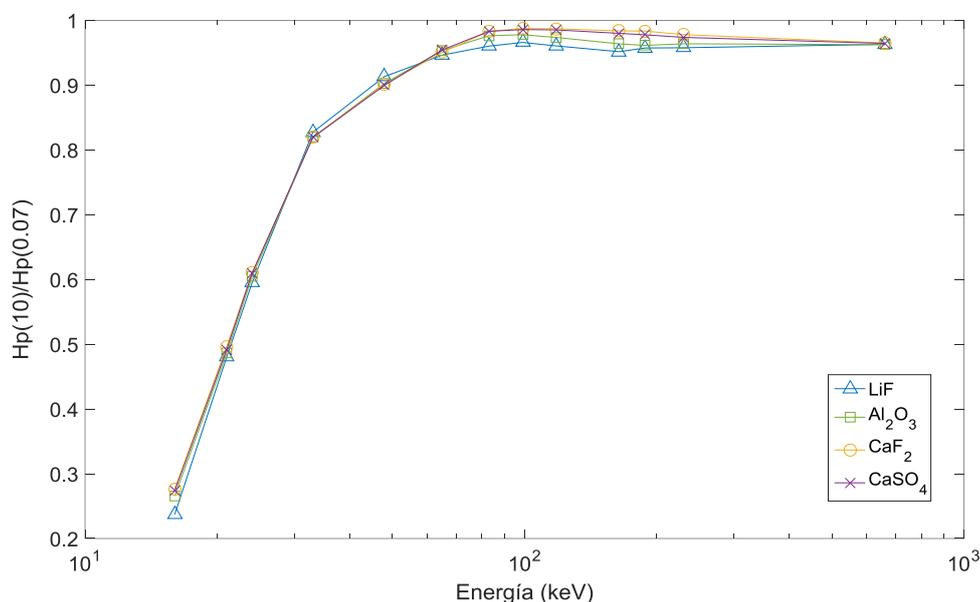


Figura 5.23. Ratio de RREs (cristal de profunda / superficial) simulada para los materiales TLD de LiF, Al_2O_3 , CaF_2 y CaSO_4

5.4 Conclusiones

Se ha realizado un modelo de un TLD100-HARSHAW; LiF: Mg, Ti mediante el código de Monte Carlo MCNP6. Este modelo se ha empleado para obtener los coeficientes de conversión de kerma en aire a dosis equivalente para calcular la respuesta relativa del dosímetro para dosis profunda ($H_p(10)$) y para dosis superficial ($H_p(0.07)$), comparando los resultados con los obtenidos a partir de su descripción teórica, en el que se simula el cristal dentro del fantoma a la profundidad correspondiente. Los resultados obtenidos son correctos en ambos casos, aunque con mayores diferencias para el caso de

dosis profunda. Se ha comparado la relación de RREs para dosis profunda y superficial obtenida mediante simulación, con valores experimentales, obteniendo resultados satisfactorios, aunque entre 65 y 83 keV se observan ligeras discrepancias. Por otro lado, se ha realizado un modelo adicional con cuatro cristales, cada uno con su correspondiente filtro y se ha obtenido la relación de RREs entre los diferentes cristales. Se ha estudiado la respuesta relativa del TLD en función del ángulo de incidencia, observándose un mayor efecto para el caso de dosis profunda y un ángulo de 75° . Finalmente, se ha simulado la respuesta relativa para $H_p(10)$ y $H_p(0.07)$ y su ratio para diferentes materiales, encontrándose mayores diferencias frente al LiF en el caso del CaF_2 y del CaSO_4 .

El código MCNP6 permite obtener las funciones de respuesta del TLD100-HARSHAW para diferentes condiciones de irradiación, siendo una herramienta muy útil para estudiar las mediciones experimentales y a su vez para realizar calibraciones de TLDs sin necesidad de irradiarlos.

Capítulo 6

Conclusions and contributions

6.1 Conclusions of the PhD thesis

In the following section, the main results and conclusions of the PhD thesis are presented.

This thesis has shown different approaches to develop and optimize Monte Carlo simulation models and how they can be applied to support radioactivity and dosimetry measurements in an environmental radioactivity laboratory under both, routine procedures and emergency response.

Chapter 3 describes the approaches followed and the tools to characterize geometrically two different semiconductor detectors for gamma-spectrometry.

The section corresponding to the HPGe GMX-40 detector shows an exhaustive study on the main geometric features of the detector using the MCNP6 code and focusing on the parameters affecting the active volume of the germanium crystal, among others. A simplified model with straight edges was developed to study the effect on the efficiency by comparison with a more realistic one with rounded edges. Results show that the simplified model overestimates the efficiencies in the energy range under study (specially at low energies) due to the increment of the active volume around the corners. In addition, parameters such as the external dead layer for low energies and the crystal volume for medium and high energies were studied to meet the experimental efficiencies with the model with rounded edges. Using the three geometries (15 ml, 100 ml and 500 ml) it was possible to characterize the external dead layer thickness (top, edges, side and bottom) studying the efficiency of the ^{241}Am (59.54 keV). The volume of the germanium

crystal and the inner core dead layer affect medium and high energies being not possible to ensure their real values without any other technique, like a radiography. However, it was possible to obtain acceptable results by finding a compromise between the volume of the crystal and the dead layer of the crystal's inner core. The window-to-crystal distance, affecting the solid angle sample-crystal, decreased equally the efficiency in all the energy range. A deviation of 1 mm decreased the efficiency of the system in almost 2% - 5% depending on the sample used.

In addition to MCNP6, the final optimized model of this detector was also built with the GEANT4 toolkit. Simulations of different geometries and matrices were performed to validate the model by two complementary methods: comparison between simulated and experimental efficiencies and comparing the simulated-to-efficiency ratios obtained with both Monte Carlo programs. The simulated to experimental efficiency ratios obtained with MCNP6 and GEANT4 toolkit sample are within the acceptance range of $\pm 5\%$ from 59.5 keV to 1836.0 keV except for ^{109}Cd and ^{57}Co in the 500 ml Marinelli sample and ^{113}Sn in the 100 ml of Zr sand sample. Both tools are reliable for the FEPE calibration in that energy range for the HPGe detector and the multigamma standard source used in this work. However, from 1173.2 to 1836.0 keV (^{60}Co and ^{88}Y), as these radionuclides have coincidence summing effect, only GEANT4 is able to properly obtain efficiency curves comparable to the experimental ones as it simulates this effect using the *Radioactive Decay Module*. On the other hand, comparing MCNP6 and GEANT4 efficiencies, both programs showed good agreement between the simulated-to-efficiency ratios regardless the geometry or the matrix. The resolution calibration is performed through the calculation of the FWHM of each photo-peak as a function of the energy and it is modeled only in MCNP6 simulations. The results showed that the implementation of this effect had barely any effect on the full energy peak efficiency values. These results contribute to justify that the optimized detector model has been validated not only because of the good agreement with the experimental data but between both Monte Carlo tools.

The BEGe-5030 detector was subjected to a process to characterize the electrical response of the germanium crystal. The technique SALSA applied reduced the uncertainty associated with the characterization of inactive areas of the germanium crystal and therefore, this simplified the process of characterization of the BEGe-5030 model. As this procedure did not allow to characterize the front dead layer, an approach based on a point source of ^{241}Am along with two volume sources (5ml and 100ml) placed at different distances from the detector window was used to characterize it. The simulated efficiencies for high energies were close to the experimental ones, but still did not meet the requirements. The dimensions of the active volume of germanium needed to be adjusted using ^{133}Ba and ^{60}Co point sources as well as the volumetric sources containing the standard multigamma sources (59.5 keV to 1836.0 keV).

Chapter 4 describes, once the model of the detector was validated, how the HPGe GMX-40 detector model was used for two main applications, first, obtaining efficiency

calibration curves for several matrix compositions and, second, determination of the true summing correction factors (TSCFs) to correct experimental efficiencies.

The TSCFs were obtained using the GEANT4 toolkit (Monte Carlo) and the deterministic program TRUECOINC, although the latter one needs the efficiency curves obtained in this case with the MCNP6 code. The TRUECOINC program was used to correct the experimental efficiencies of the ^{139}Ce , ^{88}Y , ^{60}Co and ^{133}Ba by applying the TSCFs. These correction factors extended the validation of the GMX-40 and BEGe-5030 detector models to 1836.01 keV. On the other hand, the GEANT4 toolkit was used to calculate the ^{214}Bi and $^{212}\text{Bi} / ^{208}\text{Tl}$ TSCFs belonging to the ^{238}U and ^{232}Th decay series, respectively. Regarding the radionuclides studied in this work, all of them emitting high-energy photons, it was determined that the effect of the matrix density on the TSCFs is not so significant as compared to the effect of the geometry and, therefore, the solid angle. These TSCFs were also calculated with TRUECOINC showing good agreement between both programs. The conclusions obtained for these radionuclides can be extrapolated to other matrices of different density (biota, soils, sediments, etc.). However, these conclusions cannot be generalized for radionuclides with low energy photon emitters and, therefore, both composition and density must be precisely characterised in such cases.

In addition, chapter 4 describes a gamma spectrometry procedure for emergency response purposes that uses the MCNP6 model of the BEGe-5030 detector to characterize high-activity samples. The MCNP6 simulations provided estimates of the admissible sample activity at different energies, source volume and sample-to-detector distances to avoid detector saturation by meeting the dead time criterion. The optimal configuration (maximum volume and minimal distance) changed depending on which radionuclides are the main contributors to the overall activity of the sample. The optimal configuration leads to a compromise between volume, sample position and measuring time while also considering ALARA principles for laboratory personnel. The proposed approach is applicable to different radionuclides and gamma-emitters (within the energy range under study) for the BEGe detector configured to measure high activity samples. The screening approach based on the use of tables derived from the Monte Carlo detector model simulations can determine whether the sample may need pre-treatment, e.g. dilution, and the optimal measurement configuration. In emergency scenarios, this screening approach will reduce the laboratory response time as well as the risk of contamination and exposure to radiation of laboratory personnel.

Chapter 5 describes the modelling of a TLD100-HARSHAW; LiF: Mg, Ti made using the MCNP6 code. The first step was to obtain the conversion coefficients from air kerma to dose equivalent, validating them, and subsequently calculating the relative response of the dosimeter for deep dose equivalent (Hp (10)) and surface dose equivalent (Hp (0.07)). These latter results were compared with those obtained from the theoretical description, where the crystals themselves were placed inside the phantom at both, 10 mm and 0.07 mm, also by simulations. This comparison showed coherent results in both cases, with non-negligible differences for the case of deep dose though. The Hp (10)/Hp

(0.07) ratio obtained through simulation was compared with experimental values and satisfactory results were obtained. The relative response of the TLD as a function of the incidence angle was studied. It was concluded that the case of 75° for the deep dose equivalent showed the greatest effect over the relative response function. Finally, the relative response for different TL materials was simulated, as well as the deep-to-surface dose equivalent ratio. Greater differences were found for CaF_2 and CaSO_4 .

In conclusion, the TLD model using the MCNP6 code allows obtaining the response functions of the TLD100-HARSHAW for different irradiation conditions, being a very useful tool to study the experimental measurements and at the same time to make calibrations of TLDs without the need to irradiate them.

6.2 Future work

There are different subjects aimed at emergency response that remains open and require additional work within the same research line of this Thesis.

The main research line is related to the measurement of samples with arbitrary geometries, compositions or densities. Although the efficiency calibration of samples with specific geometries and densities is easily addressed with the simulation models developed in this thesis, there is a gap regarding the calibration for unknown sources. In emergency situations, the samples to be analysed may have arbitrary characteristics, such as those coming from emergencies related to Radiological Dispersion Devices (RDDs) like metal parts or pieces of soil, ceramics...etc. In this type of scenario, obtaining standard sources to perform calibrations following routine procedures may not be feasible. On the other hand, it is necessary to consider the possibility that in some cases, even though the samples arriving at the laboratory may be contained in known geometries, these need some pre-treatment in order to be easily measured, such as homogenisation. However, any pre-treatment implies a risk of contamination and dose exposure by laboratory workers.

In these cases, it would be necessary or at least advisable to have simulation models that considers the non-homogeneity of the sample to be measured to perform fast and precise efficiency calibrations. Emergency screening as presented in chapter 4 is also required for such cases, in which other types of matrices could be considered, such as soil, food or any of those considered in the previous point. Moreover, the proposed approach should consider the presence of radionuclides with cascade emission. In this frame, after the preliminary measurement of 10 minutes (screening), TSCFs should be calculated and applied to correct the measured activity. This approach will consider non-homogeneous solid matrices including different models of heterogeneity through the spatial distribution of both, sample volumes and air gaps. In this frame, the sample matrix is simulated by developing a voxelised model that considers three main elements: material of the sample to be measured (grass, earth, soil, etc), air and humidity. Each of these elements is distributed in the measuring geometry by positioning them in different

locations (voxels) and percentages, thus creating differentiated models of heterogeneity. Several cases can be studied to simulate the distribution of heterogeneities in the vessel, from random distributions to distributions forcing the appearance of air or water pockets.

6.3 Contributions

6.3.1 Main publications

The work included in the present thesis has produced the following contributions: publications in scientific journals, international and national conferences. To provide a better understanding about the relationship between the different contributions presented with the chapters of this thesis, in Table 6.1 each contribution is highlighted and linked to the chapter to which is related.

Tabla 6-1. Contributions in relation to the chapters of the thesis.

Contribution	Chapter 3	Chapter 4	Chapter 5
1	X	X	
2	X	X	
3	X	X	
4			X
5	X	X	
6	X	X	
7	X	X	
8	X		
9	X	X	
10			X
11	X	X	
12	X	X	
13	X		
14	X		
15	X		

6.3.1.1 Publications in scientific journals related to the thesis

1. Ordóñez, J., Martorell, S., Gallardo, S., Ortiz, J. 2020. "Monte Carlo model of a BEGe detector to support γ -spectrometry in emergency response." *Radiat Phys Chem.* 172, 108735.
DOI: 10.1016/j.radphyschem.2020.108837
2. Ordóñez, J., Gallardo, S., Ortiz, J., Martorell, S. 2019. "Coincidence summing correction factors for ^{238}U y ^{232}Th decay series using the Monte Carlo method." *Radiat Phys Chem.* 155, 244-247
DOI: 10.1016/j.radphyschem.2018.09.013
3. Ordóñez, J., Gallardo, S., Ortiz, J., Sáez-Muñoz, M., Martorell, S. 2019. "Intercomparison of full energy peak efficiency curves for an HPGe detector using MCNP6 and GEANT4." *Radiat Phys Chem.* 155, 248-251
DOI: doi.org/10.1016/j.radphyschem.2018.06.049

6.3.1.2 Presentations in international conferences

4. **Title:** Characterization of a TLD100-HARSHAW in the low energy range using the Monte Carlo method.
Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 3rd International Conference on Dosimetry and its Applications (ICDA-3 2019)
City: Lisboa, Portugal **Date:** 27-31/05/2019
5. **Title:** Screening approach for γ -spectrometry in nuclear and radiological emergencies using a Monte Carlo model of a BEGe detector.
Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 3rd International Conference on Dosimetry and its Applications (ICDA-3 2019)
City: Lisboa, Portugal **Date:** 27-31/05/2019
6. **Title:** Full Energy Peak Efficiency of an HPGe detector. Simulation using MCNP6 and GEANT4.
Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 11th edition of the International Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications (IRRMA-X 2017)
City: Chicago, Illinois, USA **Date:** 09-13/07/2017
7. **Title:** Coincidence Summing Correction Factors for ^{238}U y ^{232}Th decay series using the Monte Carlo method

Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell

Conference: 11th edition of the International Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications (IRRMA-X 2017)

City: Chicago, Illinois, USA

Date: 09-13/07/2017

8. **Title:** Efficiency calibration of an HPGe detector for environmental radioactivity measurements. Influence of the geometric characterization using Monte Carlo methods.

Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell

Conference: 4th International Conference on Environmental Radioactivity: Radionuclides as Tracers of Environmental Processes (ENVIRA 2017)

City: Vilnius, Lithuania

Date: 29/05-02/06/2017

6.3.1.3 Presentations in national conferences

9. **Title:** Aplicación de un modelo de detector BEGe en MCNP6 como apoyo a la realización de medidas por espectrometría gamma en un laboratorio en caso de emergencia nuclear o radiactiva.

Authors: J. Ordóñez, S. Martorell, S. Gallardo, J. Ortiz

Conference: 45 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española

City: Vigo

Date: 23-28/09/2019

10. **Title:** Estudio de la respuesta de un TLD100-HARSHAW mediante el código de Monte Carlo MCNP6.

Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell

Conference: 45 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española

City: Vigo

Date: 23-28/09/2019

11. **Title:** El método Monte Carlo como complemento a las técnicas experimentales aplicadas en un laboratorio de radiactividad ambiental.

Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell

Conference: 44 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española

City: Ávila

Date: 26-28/09/2018

ISBN: 978-84-090-1616-7

12. **Title:** Cálculo de factores de corrección por pico suma para las series del U-238 y Th-232 mediante métodos de Monte Carlo.

Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell

Conference: 43 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española

City: Málaga

Date: 04-06/10/2017

ISBN: 978-84-090-1616-7

13. **Title:** Calibración en eficiencia de un detector HPGe para medidas de radiactividad ambiental. Influencia de la caracterización geométrica mediante el método de Monte Carlo.
Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 43 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española
City: Málaga **Date:** 04-06/10/2017
ISBN: 978-84-090-1616-7
14. **Title:** Simulación de un detector HPGe para medidas de radiactividad ambiental mediante técnicas de Monte Carlo
Authors: J. Ordóñez, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 5º Congreso Conjunto Sociedad Española de Física Médica y Sociedad Española de Protección Radiológica (21 SEFM - 16 SEPR)
City: Girona **Date:** 13-16/06/2017
ISBN: 978-84-697-4064-4
15. **Title:** Simulación con Monte Carlo de detectores HPGe para medidas de radiactividad ambiental. Aplicación a diferentes matrices.
Authors: J. Ordóñez, M. Sáez-Muñoz, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 42 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española
City: Málaga **Date:** 28-30-09/10/2016
ISBN: 978-84-617-4660-6

6.3.2 *Other work performed during the thesis*

16. **Title:** Cálculo de factores de corrección por pico suma para ^{88}Y y ^{60}Co utilizando GEANT4.
Authors: J. Ordóñez, G. Giubrone, S. Gallardo, J. Ortiz, S. Martorell, M.C. Bas.
Conference: 42 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española
City: Málaga **Date:** 28-30-09/10/2016
ISBN: 978-84-617-4660-6
17. **Title:** Simulación de emergencias en una instalación radiactiva con almacenamiento de isótopos líquidos.
Authors: J. Ordóñez, J. Ortiz, S. Martorell
Conference: 42 Reunión Anual Sociedad Nuclear Española
City: Málaga **Date:** 28-30-09/10/2016
ISBN: 978-84-617-4660-6

Capítulo 7

Referencias

- Abbas, Mahmoud I. 2001. "HPGe Detector Photopeak Efficiency Calculation Including Self-Absorption and Coincidence Corrections for Marinelli Beaker Sources Using Compact Analytical Expressions." *Applied Radiation and Isotopes* 54(5):761–68.
- Abbas, Mahmoud I. 2007. "Direct Mathematical Method for Calculating Full-Energy Peak Efficiency and Coincidence Corrections of HPGe Detectors for Extended Sources." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 256(1):554–57.
- Agostinelli, S., J. Allison, K. Amako, J. Apostolakis, H. Araujo, P. Arce, M. Asai, D. Axen, S. Banerjee, G. Barrand, F. Behner, L. Bellagamba, J. Boudreau, L. Broglia, A. Brunengo, H. Burkhardt, S. Chauvie, J. Chuma, R. Chytracek, G. Cooperman, G. et al. 2003. "GEANT4 - A Simulation Toolkit." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 506:250–303.
- Aguayo, E., M. Amman, F. T. Avignone III, A. S. Barabash, P. J. Barton, James R. Beene, F. E. Bertrand, M. Boswell, V. Brudanin, and M. Busch. 2013. "Characteristics of Signals Originating near the Lithium-Diffused N⁺ Contact of High Purity Germanium p-Type Point Contact Detectors." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 701:176–85.
- Andreev, D. S., K. I. Erokhina, V. S. Zvonov, and I. K. Lemberg. 1973. "Determination of the Gamma-Detection Efficiency in Energy Peaks by Means of Nuclides Having a Complicated Decay Scheme in Close-Geometry Conditions." *Izv. Akad. Nauk SSSR. Ser. Fiz.* 37(8):1609–12.

- Andreev, D. S., K. I. Erokhina, V. S. Zvonov, and I. Kh. Lemberg. 1972. "Consideration of Cascade Transitions in Determining the Absolute Yield of Gamma Rays." *Instrum. Exp. Tech.* 15(5):1358–60.
- Andreotti, E., M. Hult, G. Marissens, G. Lutter, A. Garfagnini, S. Hemmer, and K. von Sturm. 2014. "Determination of Dead-Layer Variation in HPGe Detectors." *Applied Radiation and Isotopes* 87:331–35.
- Ankerhold, U. 2000. *Catalogue of X-Ray Spectra and Their Characteristic Data—ISO and DIN Radiation Qualities, Therapy and Diagnostic Radiation Qualities, Unfiltered X-Ray Spectra*. edited by PTB-Dos-34. Braunschweig.
- Ashcroft, N. W., and N. D. Mermin. 1976. *Solid State Physics*. edited by R. and W. Holt. New York.
- Ashrafi, S., A. Likar, and T. Vidmar. 1999. "Precise Modeling of a Coaxial HPGe Detector." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 438(2–3):421–28.
- Berger, M. J., J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. Chang, J. S. Course, R. Sukumar, D. S. Zucker, and K. Olsen. 1998. *XCOM: Photon Cross Sections Database*.
- Bilski, P., P. Olko, B. Burgkhardt, and E. Piesch. 1995. "Ultra-Thin LiF:Mg,Cu,P Detectors for Beta Dosimetry." *Radiation Measurements* 24(4):439–43.
- Blaauw, Menno, and Sjoerd J. Gelsema. 2003. "Cascade Summing in Gamma-Ray Spectrometry in Marinelli-Beaker Geometries: The Third Efficiency Curve." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 505(1–2):311–15.
- Blank, B., J. Souin, P. Ascher, L. Audirac, G. Canchel, M. Gerbaux, S. Grévy, J. Giovinazzo, H. Guérin, T. Kurtukian Nieto, I. Matea, H. Bouzomita, P. Delahaye, G. F. Grinyer, and J. C. Thomas. 2015. "High-Precision Efficiency Calibration of a High-Purity Co-Axial Germanium Detector." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 776:34–44.
- BOE-A-2001-14555. 2001. "REAL DECRETO 783/2001, Reglamento Sobre Protección Sanitaria Contra Radiaciones Ionizantes Del 26 de Julio de 2001." *BOE* 178 1–37.
- Böhlen, T. T., F. Cerutti, M. P. W. Chin, Alberto Fassò, Alfredo Ferrari, P. G. Ortega, Andrea Mairani, Paola R. Sala, G. Smirnov, and V. Vlachoudis. 2014. "The FLUKA Code: Developments and Challenges for High Energy and Medical Applications." *Nuclear Data Sheets* 120:211–14.
- Bronson, F. L., and R. Venkataraman. 2000. "Validation of the Accuracy of the LabSOCS Mathematical Efficiency Calibration for Typical Laboratory Samples." Pp. 12–17 in *46th Annual Conference on Bioassay, Analytical, and Environmental Radiochemistry*.
- Brookes, C. J., I. ... Betteley, and S. ... Loxston. 1979. *Fundamentals of Mathematics and Statistics for Students of Chemistry and Allied Subjects*. edited by Wiley.

- Brun, R., F. Bruyant, F. Carminati, S. Giani, M. Maire, A. McPherson, G. Patrick, and L. Urban. 1994. *GEANT: Detector Description and Simulation Tool*. edited by CERN. Geneva.
- Budzanowski, M., P. Bilski, P. Olko, E. Ryba, S. Perle, and M. Majewski. 2007. “Dosimetric Properties of New Cards with High-Sensitivity MCP-N (LiF: Mg, Cu, P) Detectors for Harshaw Automatic Reader.” *Radiation Protection Dosimetry* 125(1–4):251–53.
- Cabal, Fatima Padilla, Neivy Lopez-Pino, Jose Luis Bernal-Castillo, Yisel Martinez-Palenzuela, Jimmy Aguilar-Mena, Katia D’Alessandro, Yuniesky Arbelo, Yasser Corrales, and Oscar Diaz. 2010. “Monte Carlo Based Geometrical Model for Efficiency Calculation of an N-Type HPGe Detector.” *Applied Radiation and Isotopes* 68(12):2403–8.
- Campbell, J. L., and L. A. McNelles. 1974. “Americium-241 as a Low-Energy Photon Intensity Standard.” *Nuclear Instruments and Methods* 117(2):519–32.
- Canberra. 2009. “Genie 2000 Spectrometry Software Customization Tools.”
- De Castro, N. V, and R. J. A. Levesque. 1967. “Photopeak and Double-Escape Peak Efficiencies of Germanium Lithium Drift Detectors.” *Nuclear Instruments and Methods* 46(2):325–32.
- Chen, Reuven, and Stephen W. S. McKeever. 1997. *Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena*. World Scientific.
- Chham, E., Francisco Piñero-García, T. El Bardouni, M. Angeles Ferro-García, M. Azahra, K. Benaalilou, M. Krikiz, H. Elyaakoubi, J. El Bakkali, and M. Kaddour. 2015. “Monte Carlo Analysis of the Influence of Germanium Dead Layer Thickness on the HPGe Gamma Detector Experimental Efficiency Measured by Use of Extended Sources.” *Applied Radiation and Isotopes* 95:30–35.
- Chionis, Dionysios A., Marilia I. Savva, Konstantinos L. Karfopoulos, and Marios J. Anagnostakis. 2014. “Determination of True Coincidence Correction Factors Using Monte-Carlo Simulation Techniques.” *Nuclear Technology and Radiation Protection* 29(SUPPL.).
- Chuong, Huynh Dinh, Tran Thien Thanh, Le Thi Ngoc Trang, Vo Hoang Nguyen, and Chau Van Tao. 2016. “Estimating Thickness of the Inner Dead-Layer of n-Type HPGe Detector.” *Applied Radiation and Isotopes* 116:174–77.
- Clouvas, A., S. Xanthos, M. Antonopoulos-Domis, and J. Silva. 1998. “Monte Carlo Based Method for Conversion of In-Situ Gamma Ray Spectra Obtained with a Portable Ge Detector to an Incident Photon Flux Energy Distribution.” *Health Physics* 74(2):216–30.
- Cooper, P. N. 2011. *Introduction to Nuclear Radiation Detectors*. edited by Cambridge University Press. Cambridge.
- Courtine, Fabien, Thierry Pilleyre, Serge Sanzelle, and Didier Miallier. 2008. “Ge Well Detector Calibration by Means of a Trial and Error Procedure Using the Dead Layers

- as a Unique Parameter in a Monte Carlo Simulation.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 596(2):229–34.
- Croudace, Ian W., Phillip E. Warwick, David G. Reading, and Benjamin C. Russell. 2016. “Recent Contributions to the Rapid Screening of Radionuclides in Emergency Responses and Nuclear Forensics.” *TrAC - Trends in Analytical Chemistry*.
- CSN. 1993. *GSG-04.01. Diseño y Desarrollo Del Programa de Vigilancia Radiológica Ambiental Para Centrales Nucleares*. Madrid.
- CSN. 2017. *Protocolo Sobre Vigilancia Radiológica de Materiales Metálicos*. Madrid.
- D. Davis, S., C. K. Ross, P. N. Mobit, L. Van der Zwan, W. J. Chase, and K. R. Shortt. 2003. “The Response of LiF Thermoluminescence Dosimeters to Photon Beams in the Energy Range from 30 KV X Rays to 60Co Gamma Rays.” *Radiation Protection Dosimetry* 106(1):33–43.
- Dababneh, Saed, Ektimal Al-Nemri, and Jamal Sharaf. 2014. “Application of Geant4 in Routine Close Geometry Gamma Spectroscopy for Environmental Samples.” *Journal of Environmental Radioactivity* 134:27–34.
- Daróczy, S., and P. Raics. 1982. “IAEA Training Course on Utilization of Neutron Generators.”
- Daza, M. J., B. Quintana, M. García-Talavera, and F. Fernández. 2001. “Efficiency Calibration of a HPGe Detector in the [46.54–2000] KeV Energy Range for the Measurement of Environmental Samples.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 470(3):520–32.
- Debertin, K., and R. G. Helmer. 1988. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. Amsterdam.
- Debertin, Klaus. 1991. “Corrections in Gamma-Ray Spectrometry with Germanium Detectors.” Pp. 15–29 in *Low-Level Measurements of Man-Made Radionuclides in the Environment*. World Scientific.
- Debertin, Klaus, and Ulrich Schötzig. 1979. “Coincidence Summing Corrections in Ge(Li)-Spectrometry at Low Source-to-Detector Distances.” *Nuclear Instruments and Methods* 158:471–77.
- Décombaz, Marc, Jean-Jacques Gostely, and Jean-Pascal Laedermann. 1992. “Coincidence-Summing Corrections for Extended Sources in Gamma-Ray Spectrometry Using Monte Carlo Simulation.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 312(1–2):152–59.
- DeWerd, Larry A. 1983. “Applied Thermoluminescent Dosimetry Edited by M. Oberhofer and A. Scharmann.” *Medical Physics* 10(3):377–78.

- Díaz, N. Cornejo, and M. Jurado Vargas. 2008. "DETEFF: An Improved Monte Carlo Computer Program for Evaluating the Efficiency in Coaxial Gamma-Ray Detectors." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 586(2):204–10.
- Doremus, S. W., and G. A. Higgins. 1994. "Pre-Irradiation Fade and Post-Irradiation Fade for LiF:Mg,Ti, TLD-600, and TLD-700, as a Function of Time." *Radiation Protection Dosimetry* 54(2):119–25.
- Dryak, Pavel, and Petr Kovar. 2006. "Experimental and MC Determination of HPGe Detector Efficiency in the 40-2754 KeV Energy Range for Measuring Point Source Geometry with the Source-to-Detector Distance of 25 Cm." *Applied Radiation and Isotopes* 64(10–11):1346–49.
- Dryak, Pavel, Petr Kovar, and Arunas Gudelis. 2010. "Total Efficiency of GE Detectors—Dead Layer Signal Effect." *Applied Radiation and Isotopes* 68(7–8):1451–53.
- Dziri, S., A. Nourredine, A. Sellam, A. Pape, and E. Baussan. 2012. "Simulation Approach to Coincidence Summing in γ -Ray Spectrometry." *Applied Radiation and Isotopes* 70(7):1141–44.
- E.Haller., E., W. L.Hansen, and F. S.Goulding. 1981. "Physics of Ultra-Pure Germanium." *Advances in Physics* 30:93–138.
- Eakins, J. S., D. T. Bartlett, L. G. Hager, and R. J. Tanner. 2008. "Monte Carlo Modelling of a TLD Device Containing 7LiF:Mg,Cu,P Detectors." *Radiation Measurements*.
- Eberth, J., and J. Simpson. 2008. "From Ge (Li) Detectors to Gamma-Ray Tracking Arrays—50 Years of Gamma Spectroscopy with Germanium Detectors." *Progress in Particle and Nuclear Physics* 60(2):283–337.
- Elanique, A., O. Marzocchi, D. Leone, L. Hegenbart, B. Breustedt, and L. Oufni. 2012. "Dead Layer Thickness Characterization of an HPGe Detector by Measurements and Monte Carlo Simulations." *Applied Radiation and Isotopes* 70(3):538–42.
- EPA. 2008. *EPA 402-R-07-007. Radiological Laboratory Sample Analysis Guide for Incidents of National Significance – Radionuclides in Water*. Montgomery. U.S. Environmental Protection Agency.
- EPA. 2009. *EPA 402-R-09-007. Radiological Laboratory Sample Analysis Guide for Incidents of National Significance – Radionuclides in Air*. Montgomery. U.S. Environmental Protection Agency
- EPA. 2012. *EPA 402-R-12-006. Radiological Laboratory Sample Analysis Guide for Incident Response - Radionuclides in Soil*. Montgomery. U.S. Environmental Protection Agency
- Erten, H., Ş. Aksoyoğlu, and H. Göktürk. 1988. "Efficiency Calibration and Summation Effects in Gamma-Ray Spectrometry." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 125(1):3–10.

- Evans, R. D. 1955. *The Atomic Nucleus*. T M H Edit. edited by McGRAW-HILL. Massachusets.
- Fantínová, K., and P. Fojtík. 2014. “Monte Carlo Simulation of the BEGe Detector Response Function for in Vivo Measurements of ^{241}Am in the Skull.” *Radiation Physics and Chemistry*.
- De Felice, Pierino, Paola Angelini, Aldo Fazio, and Roberto Biagini. 2000. “Fast Procedures for Coincidence-Summing Correction in γ -Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 52(3):745–52.
- De Felice, Pierino, Paola Angelini, Aldo Fazio, and Marco Capogni. 2002. “A National Campaign for Coincidence-Summing Correction in γ -Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 56(1–2):117–23.
- Ferrari, A., P. R. Sala, A. Fasso, and Johannes Ranft. 2005. “FLUKA: A Multi-Particle Transport Code CERN-2005-10.” *INFN/TC* 5:11.
- Fonseca, T. C. F., B. M. Mendes, and J. G. Hunt. 2017. “Simulation of Internal Contamination Screening with Dose Rate Meters.” *Radiation Physics and Chemistry*.
- García-Talavera, M., J. P. Laedermann, M. Décombaz, M. J. Daza, and B. Quintana. 2001. “Coincidence Summing Corrections for the Natural Decay Series in γ -Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 54(5):769–76.
- García-Talavera, M., H. Neder, M. J. Daza, and B. Quintana. 2000. “Towards a Proper Modeling of Detector and Source Characteristics in Monte Carlo Simulations.” *Applied Radiation and Isotopes* 52(3):777–83.
- García-Torano, E., M. Pozuelo, and F. Salvat. 2005. “Monte Carlo Calculations of Coincidence-Summing Corrections for Volume Sources in Gamma-Ray Spectrometry with Ge Detectors.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 544(3):577–83.
- Gasparro, Joel, Mikael Hult, Peter N. Johnston, and Hamid Tagziria. 2008. “Monte Carlo Modelling of Germanium Crystals That Are Tilted and Have Rounded Front Edges.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 594(2):196–201.
- Gilmore, G. R. 2008. *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. 2nd Editio. edited by WILEY. New York.
- Giubrone, G., J. Ortiz, S. Gallardo, S. Martorell, and M. C. Bas. 2016. “Calculation of Coincidence Summing Correction Factors for an HPGe Detector Using GEANT4.” *Journal of Environmental Radioactivity*.
- Grosswendt, B. 1991. “The Angular Dependence and Irradiation Geometry Factor for the Dose Equivalent for Photons in Slab Phantoms of Tissue-Equivalent Material and PMMA.” *Radiation Protection Dosimetry* 35(4):221–35.
- Grundmann, M. 2006. *The Physics of Semiconductors: An Introduction Including Devices*

- and Nanophysics*. edited by Springer. Berlin.
- Gualdrini, G. F., and B. Morelli. 1996. *Air Kerma to Personal Dose Equivalent Conversion Factors for the ICRU and ISO Recommended Slab Phantoms for Photons from 20 KeV to 1 MeV*. Bologna.
- Guerra, J. G., J. G. Rubiano, G. Winter, A. G. Guerra, H. Alonso, M. A. Arnedo, A. Tejera, J. M. Gil, R. Rodríguez, P. Martel, and J. P. Bolivar. 2015. "A Simple Methodology for Characterization of Germanium Coaxial Detectors by Using Monte Carlo Simulation and Evolutionary Algorithms." *Journal of Environmental Radioactivity* 149:8–18.
- Guimarães, C. C., and E. Okuno. 2003. "Blind Performance Testing of Personal and Environmental Dosimeters Based on TLD-100 and Natural CaF₂: NaCl." *Radiation Measurements* 37(2):127–32.
- Haase, Gerhard, David Tait, and Arnold Wiechen. 1993. "Monte Carlo Simulation of Several Gamma-Emitting Source and Detector Arrangements for Determining Corrections of Self-Attenuation and Coincidence Summation in Gamma-Spectrometry." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 329(3):483–92.
- Halton, John H. 1970. "A Retrospective and Prospective Survey of the Monte Carlo Method." *Siam Review* 12(1):1–63.
- Hardy, J. C., V. E. Jacob, M. Sanchez-Vega, R. T. Effinger, P. Lipnik, V. E. Mayes, D. K. Willis, and R. G. Helmer. 2002. "Precise Efficiency Calibration of an HPGe Detector: Source Measurements and Monte Carlo Calculations with Sub-Percent Precision." *Applied Radiation and Isotopes* 56(1–2):65–69.
- Hauf, Steffen, Markus Kuster, Matej Batič, Zane W. Bell, Dieter H. H. Hoffmann, Philipp M. Lang, Stephan Neff, Maria Grazia Pia, Georg Weidenspointner, and Andreas Zoglauer. 2013. "Radioactive Decays in Geant4." *IEEE Transactions on Nuclear Science* 60(4):2966–83.
- Hernández-Prieto, A., and B. Quintana. 2013. "Characterization of a High Spatial Resolution γ Camera for Scanning HPGe Segmented Detectors." *IEEE Transactions on Nuclear Science* 60(6):4719–26.
- Hernández-Prieto, A., B. Quintana, S. Martín, and C. Domingo-Pardo. 2016. "Study of Accuracy in the Position Determination with SALSA, a γ -Scanning System for the Characterization of Segmented HPGe Detectors." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*.
- Horowitz, Y. S. 1984. "Thermoluminescence and Thermoluminescent Dosimetry, v. 1."
- Horowitz, Y. S., M. Moscovitch, and M. Wilt. 1986. "Computerized Glow Curve Deconvolution Applied to Ultralow Dose LiF Thermoluminescence Dosimetry." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators,*

- Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 244(3):556–64.
- Hranitzky, C., and H. Stadtmann. 2007. “Simulated and Measured Hp(10) Response of the Personal Dosimeter Seibersdorf.” *Radiation Protection Dosimetry* 125(1–4):166–69.
- Hranitzky, C., H. Stadtmann, P. Kindl, Y. S. Horowitz, and L. Oster. 2002. “The Use of the Monte Carlo Simulation Technique for the Design of an H*(10) Dosimeter Based on TLD-100.” *Radiation Protection Dosimetry* 101(1–4):279–82.
- Hranitzky, C., H. Stadtmann, and P. Olko. 2006. “Determination of LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P TL Efficiency for X-Rays and Their Application to Monte Carlo Simulations of Dosimeter Response.” *Radiation Protection Dosimetry* 119(1–4):483–86.
- Hranitzky, C., Hannes Stadtmann, and Peter Kindl. 2004. “Prototype Development of a Thermoluminescence Dosimeter Based on Monte Carlo Simulation Methods.” Pp. 1–9 in *Proceedings of the 11th International Congress of the International Radiation Protection Association, Madrid, Spain*.
- Hubbell, J. H., and S. M. Seltzer. 2004. *X-Ray Mass Attenuation Coefficients*. edited by N. S. R. D. 126 Radiation Physics Division, PML.
- Hurtado, S., M. García-León, and R. García-Tenorio. 2004. “Monte Carlo Simulation of the Response of a Germanium Detector for Low-Level Spectrometry Measurements Using GEANT4.” *Applied Radiation and Isotopes* 61(2–3):139–43.
- Hurtado, Santiago, Rafael Garcia-Tenorio, and Manuel Garcia-Leon. 2009. “Coincidence Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry Using GEANT4 Code.” *IEEE Transactions on Nuclear Science* 56(3):1531–36.
- Huy, N. 2010. “The Influence of Dead Layer Thickness Increase on Efficiency Decrease for a Coaxial HPGe P-Type Detector.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 621(1–3):390–94.
- Huy, N. Q., D. Q. Binh, and V. X. An. 2007. “Study on the Increase of Inactive Germanium Layer in a High-Purity Germanium Detector after a Long Time Operation Applying MCNP Code.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 573(3):384–88.
- IAEA. 1992. “Safety Series No. 75-INSAG-7. The Chernobyl Accident: Updating of INSAG-1. INSAG-7.” Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 1995. *IAEA-TECDOC-796. Radiation Doses in Diagnostic Radiology and Methods of Dose Reduction*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 2004. *Safety Standards Series No. GS-R-2. Preparación y Respuesta a Situaciones de Emergencia Nuclear o Radiológica*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 2010. *Safety Standards N° GS-G-2.1. Disposiciones de Preparación Para Emergencias Nucleares o Radiológicas*. Viena: International Atomic Energy Agency.

- IAEA. 2011. *Safety Standards Series No. GSG-2. Criteria for Use in Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 2013. *Estrategia Nacional Para Recuperar El Control de Fuentes Huérfanas y Mejorar El Control de Fuentes Vulnerables, Guía de Seguridad Específica N° SSG-19*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 2014. *EPR- Lessons Learned 2012. Enseñanzas Extraídas de La Respuesta a Emergencias Radiológicas (1945–2010)*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- IAEA. 2015. *El Accidente de Fukushima Daiichi. Informe Del Director General*. Viena: International Atomic Energy Agency.
- ICRP-103. 2007. *International Commission on Radiological Protection. "Recommendations of the International Commission on Radiation Protection. ICRP-103*. Oxford.
- ICRP-60. 1991. *International Commission on Radiological Protection. "Recommendations of the International Commission on Radiation Protection. ICRP-60*.
- ICRU. 1994. *International Commission on Radiation Units and Measurements, Particle Counting in Radioactivity Measurements. ICRU Report 52*. Bethesda, MD, USA.
- ISO 4037-1. 1996. *X and Gamma Reference Radiation for Calibrating Dosimeters and Doserate Meters and for Determining Their Response as a Function of Photon Energy—Part 1: Radiation Characteristics and Production Methods*. Geneva.
- ISO 4037-3. 1999. *International Organization for Standardization, X and Gamma Reference Radiations for Calibrating Dosimeters and Doserate Meters and for Determining Their Response Asa Function of Photon Energy – Part 3: Calibration of Area and Personal Dosimeters and the Me*. Geneva.
- James, Frederick. 1980. "Monte Carlo Theory and Practice." *Reports on Progress in Physics* 43(9):1145.
- Jevremovic, T. 2005. *Nuclear Principles in Engineering*. Vol. 53. edited by Springer.
- Jovanović, S., A. Dlabáč, N. Mihaljević, and P. Vukotić. 1997. "ANGLE: A PC-Code for Semiconductor Detector Efficiency Calculations." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218(1):13–20.
- Jurado-Vargas, M., and A. L. Guerra. 2006. "Application of PENELOPE Code to the Efficiency Calibration of Coaxial Germanium Detectors." *Applied Radiation and Isotopes* 64(10–11):1319–22.
- Jurado Vargas, M., A. Fernández Timón, N. Cornejo Díaz, and D. Pérez Sánchez. 2002. "Monte Carlo Simulation of the Self-Absorption Corrections for Natural Samples in Gamma-Ray Spectrometry." *Applied Radiation and Isotopes* 57(6):893–98.
- Jurado Vargas, M., and A. L. Guerra. 2006. "Application of PENELOPE Code to the Efficiency Calibration of Coaxial Germanium Detectors." *Applied Radiation and Isotopes*.

- Kafala, S. I. 1995. "Simple Method for True Coincidence Summing Correction." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 191(1):105–14.
- Kalb, P., L. Luckett, K. Miller, C. Gogolak, and L. Milian. 2000. *Comparability of ISOCS Instrument in Radionuclide Characterization at Brookhaven National Laboratory*. Citeseer.
- Klein, O., and Y. Nishina. 1929. "Über Die Streuung von Strahlung Durch Freie Elektronen Nach Der Neuen Relativistischen Quantendynamik von Dirac." *Zeitschrift Für Physik* 52(11):853–68.
- Knoll, Glenn F. 2000. *Radiation Detection and Measurement, 3rd Ed - (Wiley, 2000).Pdf*. 3rd ed. edited by Wiley.
- Korun, M., and R. Martinčič. 1995. "Activity Calculation for Voluminous Samples in the Presence of Coincidence Summing Effects." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 355(2–3):600–608.
- Lee, J. I., J. S. Yang, J. L. Kim, A. S. Pradhan, J. D. Lee, K. S. Chung, and H. S. Choe. 2006. "Dosimetric Characteristics of LiF: Mg, Cu, Si Thermoluminescent Materials." *Applied Physics Letters* 89(9):94110.
- Lee, YoungJu, Yuho Won, and Kidoo Kang. 2014. "A Method to Minimise the Fading Effects of LiF:Mg,Ti (TLD-600 and TLD-700) Using a Pre-Heat Technique." *Radiation Protection Dosimetry* 164(3):449–55.
- Lepy, M. Ch, T. Altitzoglou, D. Arnold, F. Bronson, R. Capote Noy, M. Décombaz, Frans De Corte, R. Edelmaier, E. Herrera Peraza, and S. Klemola. 2001. "Intercomparison of Efficiency Transfer Software for Gamma-Ray Spectrometry." *Applied Radiation and Isotopes* 55(4):493–503.
- Lépy, Marie-Christine, Marie-Martine Bé, and François Piton. 2004. "ETNA (Efficiency Transfer for Nuclide Activity Measurement): Software for Efficiency Transfer and Coincidence Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry." *CEA-SACLAY, DA-MRI-LNHB, Bât 602:91191*.
- Maidana, Nora L., Vito R. Vanin, Juan A. García-Alvarez, Marcelino Hermida-López, and Lorenzo Brualla. 2016. "Experimental HPGe Coaxial Detector Response and Efficiency Compared to Monte Carlo Simulations." *Applied Radiation and Isotopes* 108:64–74.
- Marie-Martine, B. 2011. *Table de RADIONUCLÉIDES*. France.
- Maučec, M., R. J. De Meijer, C. Rigollet, P. H. G. M. Hendriks, and D. G. Jones. 2004. "Detection of Radioactive Particles Offshore by γ -Ray Spectrometry Part I: Monte Carlo Assessment of Detection Depth Limits." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*.
- McCallum, Graham J., and Graeme E. Coote. 1975. "Influence of Source-Detector Distance

- on Relative Intensity and Angular Correlation Measurements with Ge(Li) Spectrometers.” *Nuclear Instruments and Methods* 130(1):189–97.
- McKeever, Stephen W. S. 1988. *Thermoluminescence of Solids*. Vol. 3. Cambridge University Press.
- Medeiros, Marcos P. C., Wilson F. Rebello, and José M. Lopes. 2015. “Relative Efficiency Calculation of a HPGe Detector Using MCNPX Code.”
- Moens, Luc, J. De Donder, Lin Xi-Lei, Frans De Corte, Antoine De Wispelaere, A. Simonits, and Julien Hoste. 1981. “Calculation of the Absolute Peak Efficiency of Gamma-Ray Detectors for Different Counting Geometries.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 187(2–3):451–72.
- Mohanty, B. P., P. Balouria, M. L. Garg, T. K. Nandi, V. K. Mittal, and I. M. Govil. 2008. “Comparison of Experimental and Theoretical Efficiency of HPGe X-Ray Detector.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 584(1):186–90.
- Monte Carlo team, M. 2013. “User’s Manual.”
- Montgomery, D. M., and G. A. Montgomery. 1995. “A Method for Assessing and Correcting Coincidence Summing Effects for Germanium Detector Efficiency Calibrations.” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 193(1):71–79.
- Morel, J., B. Chauvenet, and A. Kadachi. 1983. “Coincidence summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry for Normalized Geometries.” *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 34:1115–22.
- Muhlberger, Curran D. 2017. “Experiment IX: Angular Correlation of Gamma Rays.”
- Nelson, W. R., H. Hirayama, and D. W. O. Rogers. 1985. “The EGS4 Code System, Report SLAC-265.” *Stanford: Stanford Linear Accelerator Center*.
- Notea, A. 1971. “The Ge (Li) Spectrometer as a Point Detector.” *Nuclear Instruments and Methods* 91:513–15.
- Novković, Dušan, Aleksandar Kandić, Mirjana Đurašević, Ivana Vukanac, Zoran Milošević, and Laslo Nađđerđ. 2007. “Coincidence Summing of X- and γ -Rays in γ -Ray Spectrometry.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 578(1):207–17.
- ORTEC. n.d. “GammaVision, Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulation for MS Windows, Software User’s Manual.”
- Peyres, V., and E. García-Toraño. 2007. “Efficiency Calibration of an Extended-Range Ge Detector by a Detailed Monte Carlo Simulation.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 580(1):296–98.
- Piton, François, Marie-Christine Lépy, Marie-Martine Bé, and Johann Plagnard. 2000. “Efficiency Transfer and Coincidence Summing Corrections for γ -Ray Spectrometry.”

- Applied Radiation and Isotopes* 52(3):791–95.
- Quintana, Begoña, and Francisco Fernandez. 1995. “An Empirical Method to Determine Coincidence-Summing Corrections in Gamma Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 46(9):961–64.
- Randall, John Turton, and Maurice Hugh Frederick Wilkins. 1945a. “Phosphorescence and Electron Traps-I. The Study of Trap Distributions.” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 184(999):365–89.
- Randall, John Turton, and Maurice Hugh Frederick Wilkins. 1945b. “Phosphorescence and Electron Traps II. The Interpretation of Long-Period Phosphorescence.” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 184(999):390–407.
- Ródenas, J., A. Martinavarró, and V. Rius. 2000. “Validation of the MCNP Code for the Simulation of Ge-Detector Calibration.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 450(1):88–97.
- Ródenas, J., A. Pascual, I. Zarza, V. Serradell, J. Ortiz, and L. Ballesteros. 2003. “Analysis of the Influence of Germanium Dead Layer on Detector Calibration Simulation for Environmental Radioactive Samples Using the Monte Carlo Method.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 496(2–3):390–99.
- Sáez-Muñoz, M. 2019. “Desarrollo de Procedimientos Rápidos de Ensayo Para La Vigilancia Radiológica Ambiental En Situaciones de Emergencia.” Universitat Politècnica de València.
- Salgado, César Marques, Claudio C. Conti, and Paulo H. B. Becker. 2006. “Determination of HPGe Detector Response Using MCNP5 for 20-150 KeV X-Rays.” *Applied Radiation and Isotopes* 64(6):700–705.
- Salvat, F., J. M. Fernández-Varea, and J. Sempau. 2011. “PENELOPE-2011: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport.” in *OECD Nuclear Energy Agency*. Issy-les-Moulineaux.
- Saraiva, A., C. Oliveira, M. Reis, L. Portugal, I. Paiva, and C. Cruz. 2016. “Study of the Response of an ORTEC GMX45 HPGe Detector with a Multi-Radionuclide Volume Source Using Monte Carlo Simulations.” *Applied Radiation and Isotopes* 113:47–52.
- Schima, F. J., and D. D. Hoppes. 1983. “Tables for Cascade-Summing Corrections in Gamma-Ray Spectrometry.” *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 34(8):1109–14.
- Semkow, T. M., C. J. Bradt, S. E. Beach, D. K. Haines, A. J. Khan, A. Bari, M. A. Torres, J. C. Marrantino, U. F. Syed, M. E. Kitto, T. J. Hoffman, and P. Curtis. 2015. “Calibration of Ge Gamma-Ray Spectrometers for Complex Sample Geometries and Matrices.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators,*

- Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 799:105–13.
- Sima, O., and D. Arnold. 2002. “Transfer of the Efficiency Calibration of Germanium Gamma-Ray Detectors Using the GESPECOR Software.” *Applied Radiation and Isotopes* 56(1–2):71–75.
- Sima, O., D. Arnold, and C. Dovlete. 2001. “GESPECOR: A Versatile Tool in Gamma-Ray Spectrometry.” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 248(2):359–64.
- Sima, O., I. L. Cazan, L. Dinescu, and D. Arnold. 2004. “Efficiency Calibration of High Volume Samples Using the GESPECOR Software.” *Applied Radiation and Isotopes* 61(2–3):123–27.
- Sima, Octavian, and Dirk Arnold. 2000. “Accurate Computation of Coincidence Summing Corrections in Low Level Gamma-Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 53(1–2):51–56.
- Sinkko, K., and H. Aaltonen. 1985. “Calculation of the True Coincidence Summing Correction for Different Sample Geometries in Gamma-Ray Spectroscopy. STUK-B-VALO 40.” *Surveillance Department*.
- Sudar, S. 2002. “TRUECOINC”, *A Software Utility for Calculation of the True Coincidence Correction*.
- The MathWorks. 2016. “MATLAB and Statistics Toolbox Release 2016b.”
- Truscott, P. 2002. *Treatment of Radioactive Decay in Geant4*. Tech. Rep. Qinetiq, 2002.
- Tuli, J. 2013. “Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF).” Retrieved (<http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>).
- Utsunomiya, H., H. Akimune, K. Osaka, T. Kaihori, K. Furutaka, and H. Harada. 2005. “Surface Channel Effect on γ -Ray Response Functions of Coaxial Germanium Detectors.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*.
- Vargas, M. J., A. F. Timón, N. C. Díaz, and D. P. Sánchez. 2002. “Influence of the Geometrical Characteristics of an HpGe Detector on Its Efficiency.” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 253(3):439–43.
- Vidmar, T., I. Aubineau-Laniece, M. J. Anagnostakis, D. Arnold, R. Brettner-Messler, D. Budjas, M. Capogni, M. S. Dias, L. E. De Geer, A. Fazio, J. Gasparro, M. Hult, S. Hurtado, M. Jurado Vargas, M. Laubenstein, K. B. Lee, Y. K. Lee, M. C. Lepy, F. J. Maringer, V. Medina Peyres, M. Mille, M. Morales, S. Nour, R. Plenteda, M. P. Rubio Montero, O. Sima, C. Tomei, and G. Vidmar. 2008. “An Intercomparison of Monte Carlo Codes Used in Gamma-Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 66(6–7):764–68.
- Vidmar, T., N. Çelik, N. Cornejo Díaz, A. Dlabac, I. O. B. Ewa, J. A. Carrazana González, M. Hult, S. Jovanović, M. C. Lépy, N. Mihaljević, O. Sima, F. Tzika, M. Jurado Vargas, T. Vasilopoulou, and G. Vidmar. 2010. “Testing Efficiency Transfer Codes

- for Equivalence.” *Applied Radiation and Isotopes* 68(2):355–59.
- Vidmar, T., B. Vodenik, and M. Nečemer. 2010. “Efficiency Transfer between Extended Sources.” *Applied Radiation and Isotopes* 68(12):2352–54.
- Vidmar, Tim. 2005. “EFFTRAN—a Monte Carlo Efficiency Transfer Code for Gamma-Ray Spectrometry.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 550(3):603–8.
- Vidmar, Tim, and Matjaž Korun. 2006. “Calculation of ‘LS-Curves’ for Coincidence Summing Corrections in Gamma Ray Spectrometry.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 556(2):543–46.
- Vidmar, Tim, and Andrej Likar. 2004. “On the Invariability of the Total-to-Peak Ratio in Gamma-Ray Spectrometry.” *Applied Radiation and Isotopes* 60(2–4):191–95.
- Vukanac, Ivana, M. Djurašević, Aleksandar Kandić, D. Novković, L. Nadjerdj, and Zoran Milošević. 2008. “Experimental Determination of the HPGe Spectrometer Efficiency Curve.” *Applied Radiation and Isotopes* 66(6–7):792–95.
- Wainio, K. M., and Glenn F. Knoll. 1966. “Calculated Gamma Ray Response Characteristics of Semiconductor Detectors.” *Nuclear Instruments and Methods* 44(2):213–23.
- Zeng, Zhi, Yuhao Mi, Ming Zeng, Hao Ma, Qian Yue, Jian-Ping Cheng, Jun-Li Li, Rui Qiu, and Hui. Zhang. 2016. “Characterization of a Broad-Energy Germanium Detector Using an Assembled Collimation Device at CJPL.” (June).