



TESIS DOCTORAL

CONTRIBUCIONES A LA MEJORA DE LA DETERMINACIÓN DE RADIONUCLEIDOS MEDIANTE ESPECTROMETRÍA DE RADIACIÓN GAMMA

Jorge Antonio Carrazana González

Programa de Doctorado: Modelización y
Experimentación en Ciencia y Tecnología

2017

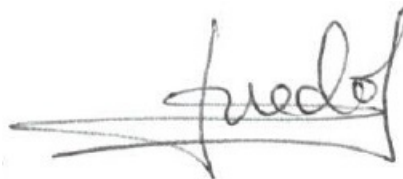
TESIS DOCTORAL

CONTRIBUCIONES A LA MEJORA DE LA DETERMINACIÓN DE RADIONUCLEIDOS MEDIANTE ESPECTROMETRÍA DE RADIACIÓN GAMMA

Jorge Antonio Carrazana González

Programa de Doctorado: Modelización y
Experimentación en Ciencia y Tecnología

Conformidad del Director:



Fdo: Dr. D. Miguel Jurado Vargas

2017

El Dr. D. MIGUEL JURADO VARGAS, Profesor Titular de Física Atómica, Molecular y Nuclear, y miembro del Departamento de Física de la Universidad de Extremadura

INFORMA

Que la presente memoria titulada "Contribuciones a la mejora de la determinación de radionucleidos mediante espectrometría de radiación gamma", ha sido realizada por D. Jorge Antonio Carrazana González bajo su dirección en el Departamento de Física de la Universidad de Extremadura.

Y para que conste a efectos oportunos, firma el presente informe en Badajoz, en Mayo de 2017.

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'Jurado', with a long horizontal stroke extending to the left.

Fdo.: Miguel Jurado Vargas

A todos mis seres queridos (familiares y amigos), a los presentes y a los que ya no están ...

AGRADECIMIENTOS

Deseo expresar mi profunda gratitud hacia todos los que han contribuido, de una u otra forma, a obtener los resultados presentados en este trabajo de tesis. El aporte de cada uno de ellos ha sido muy valioso.

Mi mayor agradecimiento para mi Tutor y Director de Tesis en la Universidad de Extremadura (UEX), el Dr. Miguel Jurado Vargas, por su constante guía, apoyo y aliento, permitiéndome hacer realidad un sueño.

Muchas gracias al Dr. Néstor Cornejo Díaz por sus continuas enseñanzas y ayuda durante todo mi trabajo en el campo de la espectrometría gamma.

Un especial reconocimiento al Dr. José Antonio Tamayo García, por su permanente colaboración y por la supervisión de mi trabajo de tesis en el Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR).

A la Dirección General del CPHR, y a todos mis colegas del Laboratorio de Vigilancia Radiológica Ambiental, muchas gracias por apoyarme y ayudarme durante todo mi proceso de doctorado.

Índice general

Capítulo 1. Descripción y objetivos	1
Capítulo 2. Espectrometría gamma: Fundamentos y Equipos de Detección	5
2.1 Naturaleza de la radiación gamma	5
2.2 Mecanismos de interacción de la radiación gamma con la materia	6
2.2.1 Absorción fotoeléctrica	8
2.2.2 Dispersión Compton	11
2.2.3 Formación de pares	14
2.3 Interacción de la radiación gamma con el detector	15
2.4 Interacción de la radiación gamma con el blindaje	20
2.5 Equipos de Detección	23
2.5.1 Detectores centelleadores	26
2.5.2 Detectores semiconductores	28
2.6 Calibración de los equipos de detección	31
2.6.1 Calibración en energía	32
2.6.2 Calibración en resolución	33
2.6.3 Calibración en eficiencia	35
Capítulo 3. Aplicación del Método de Monte Carlo en espectrometría gamma y propuestas de mejora	39
3.1 Problemas asociados a la calibración en eficiencias y determinación de actividades	39
3.2 Uso de la simulación Monte Carlo en espectrometría gamma	44
3.2.1 Calibración en eficiencia empleando la simulación Monte Carlo	47

3.3 Descripción del código DETEFF	51
3.3.1 Introducción	51
3.3.2 Características de DETEFF	52
3.4 Propuestas de mejora	54
Capítulo 4. Correcciones por autoabsorción en la determinación de radionucleidos de baja energía	57
4.1 Introducción	57
4.2 Publicación No. 1	63
4.2.1 Presentación de la publicación	63
4.2.2 Informe	65
4.2.3 Copia de la publicación.....	66
4.3 Publicación No. 2.....	71
4.3.1 Presentación de la publicación	71
4.3.2 Informe	73
4.3.3 Copia de la publicación	74
Capítulo 5. Transferencia de eficiencias entre diferentes geometrías de medida	81
5.1 Introducción	81
5.2 Publicación No. 3.....	87
5.2.1 Presentación de la publicación	87
5.2.2 Informe	89
5.2.3 Copia de la publicación	90
Capítulo 6. Calibración en eficiencia para la determinación de radionucleidos depositados en el terreno (“in situ”).....	97
6.1 Introducción	97

6.2 Publicación No. 4.....	103
6.2.1 Presentación de la publicación	103
6.2.2 Informe	105
6.2.3 Copia de la publicación	106
Capítulo 7. Conclusiones.....	111
Bibliografía.....	115
Apéndice A. Uso de DETEFF en el ejercicio de intercomparación de códigos de transferencia de eficiencias	127
Apéndice B. Participación en eventos.....	133
B.1 Conferencia Internacional sobre Metrología de Radionucleidos y sus Aplicaciones (ICRM 2009)	133
B.2 Reunión Técnica de la IAEA sobre “Intercambio de experiencias, estado actual y guías para la utilización efectiva de la instrumentación nuclear para aplicaciones medioambientales en los Estados Miembros en desarrollo”	137
B.3 IX Congreso Regional de Seguridad Radiológica y Nuclear IRPA 2013	169

Capítulo 1

Descripción y objetivos

La espectrometría de radiación gamma es una técnica analítica multielemental y no destructiva que permite la identificación y cuantificación de diferentes radionucleidos emisores gamma en una gran variedad de matrices. Una importante ventaja de esta técnica, comparada con otros métodos de análisis, es que en una sola medida y con una preparación sencilla de la muestra es posible determinar de forma simultánea todos los radionucleidos con energías fotónicas incluidas en el rango energético del detector utilizado. Con el uso de la espectrometría gamma se obtiene muy buen compromiso entre la cantidad de información extraída y los costes asociados al proceso de detección.

Esta técnica se basa fundamentalmente en dos propiedades asociadas a los nucleidos radiactivos. Primeramente el hecho de que las energías de los fotones gamma emitidos por un radionucleido son específicas de ese radionucleido. Esto permite la identificación de radionucleidos en una muestra a partir de la medida de la energía de los fotones emitidos. En segundo lugar, la tasa de emisión de fotones de determinada energía puede ser empleada para estimar la actividad o concentración de actividad de un radionucleido en una muestra. La tasa de emisión de fotones de un radionucleido específico, para una energía dada, no varía significativamente si el mismo está sólo o en compañía de otros radionucleidos en la muestra. Esto trae como consecuencia que en esta técnica no se necesite una separación radioquímica para el análisis de los radionucleidos presentes en la muestra, como sucede, por ejemplo, en espectrometría de partículas alfa.

Básicamente, la espectrometría de radiación gamma consiste en la obtención y análisis del espectro gamma correspondiente a la medida de una muestra. Los detectores más utilizados, a través de la historia de aplicación de esta técnica analítica, han sido los cristales centelleadores inorgánicos y los detectores de semiconductor. Inicialmente, los detectores más empleados fueron los cristales centelleadores inorgánicos de ioduro de sodio activado con talio NaI(Tl) , aunque hoy en día se emplean también otros centelleadores, como el ioduro de cesio CsI , el germanato de bismuto $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ y los de bromuro y cloruro de lantano activados con cerio ($\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ y $\text{LaCl}_3(\text{Ce})$). Los detectores de semiconductor, por su parte, fueron

en un inicio de Si(Li) y Ge(Li), logrando una mejora considerable en la resolución comparados con los de NaI(Tl). Los detectores de germanio hiperpuro HPGe, con una resolución similar, vinieron a sustituir poco a poco a los detectores de Si(Li) y Ge(Li), ya que únicamente necesitan estar refrigerados durante su funcionamiento con el objetivo de reducir el ruido electrónico (corrientes de fuga) a un nivel aceptable.

Un sistema de espectrometría gamma se compone fundamentalmente de un detector acoplado a una cadena electrónica. El detector convierte la energía depositada por los fotones en una señal que es proporcional a esa energía. La señal es posteriormente procesada por la electrónica asociada con el objetivo de proveerla de una mejor conformación (forma y amplitud óptimas). En sistemas con procesamiento digital, la señal luego es digitalizada y finalmente es clasificada de acuerdo a su amplitud. De este modo, el espectro gamma se forma mostrando el número de señales en función de su amplitud, convertida a número de canales. La Figura 1.1 muestra el esquema general de un sistema de espectrometría gamma con detector de germanio hiperpuro (HPGe).

La espectrometría gamma tiene diversos campos de aplicación. Es utilizada en investigaciones vinculadas a procesos básicos de la Física Nuclear como el estudio de modelos nucleares, la cuantificación de períodos de semidesintegración radiactiva y la obtención de datos nucleares. Estudios de datación isotópica, como la determinación de la edad de los sedimentos, y el análisis por activación neutrónica se basan en el uso de esta técnica analítica. En la gestión de desechos radiactivos, la espectrometría gamma permite caracterizar los bidones radiactivos para su posterior disposición. En su aplicación directamente en el terreno ("in situ"), es considerada un método rápido y fiable para la determinación de radionucleidos en el medioambiente. Existen también aplicaciones en diferentes áreas de la industria como la minería, aportando información de relevancia en la prospección minera y en la elaboración de mapas geológicos. Particularmente, la espectrometría gamma ha contribuido significativamente al desarrollo de la Protección Radiológica, permitiendo la realización de investigaciones relacionadas con la evaluación de la contaminación radiactiva en el medioambiente, la vigilancia radiológica de los alimentos, y la caracterización radiológica de diferentes escenarios de interés. En la actualidad, esta técnica está siendo también utilizada para estudios forenses en el campo nuclear, con el objetivo de determinar el origen de materiales radiactivos.

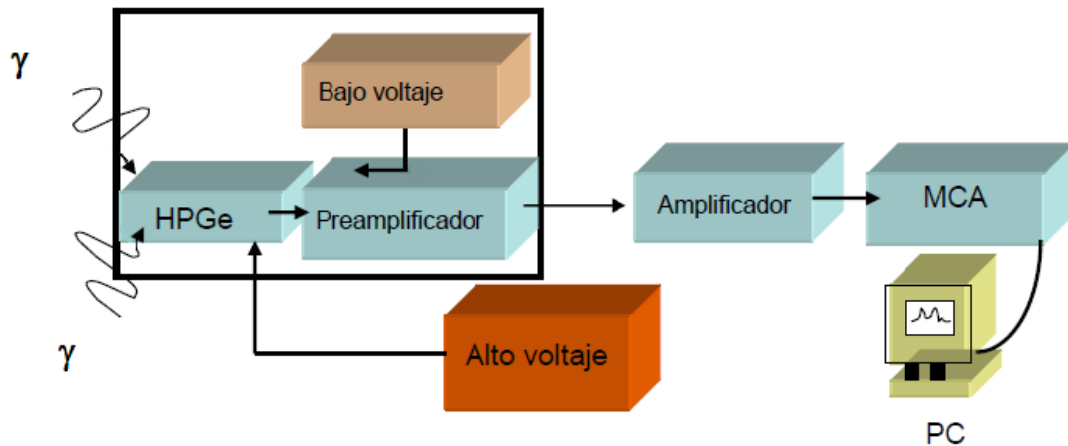


Figura 1.1: Diagrama de bloques de un sistema de espectrometría gamma con detector de germanio hiperpuro (HPGe) [Reguigui, 2006].

El objetivo fundamental de esta tesis doctoral es contribuir a la mejora de la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma, mediante el uso de la simulación Monte Carlo. Dichas mejoras y contribuciones se realizan a través del estudio de diferentes factores asociados a las calibraciones en eficiencia para distintos tipos de matrices y también en aplicaciones "in situ". Este objetivo ha sido requerido por la comunidad científica internacional dedicada a la detección mediante espectrometría gamma.

En el Capítulo 2 se realiza una descripción general de la técnica de espectrometría gamma, mencionando sus fundamentos y los equipos de detección utilizados. Se hace referencia a la naturaleza de la radiación gamma, y a sus principales mecanismos de interacción con el material del detector y del blindaje que lo rodea. Se tratan las particularidades de las interacciones de los fotones con detectores de diferentes dimensiones y se analizan los componentes más importantes de un espectro gamma. Se describen las características principales de los equipos de detección más utilizados en esta técnica analítica, y se menciona la forma en que se realiza la calibración de los mismos. Se definen los distintos tipos de eficiencias, y se muestran las diferentes formas de calcularlas, haciendo énfasis en la eficiencia en el pico de absorción total.

En el Capítulo 3 se tratan algunas problemáticas actuales asociadas a la medida de radionucleidos por espectrometría gamma, y se mencionan las propuestas de mejoras

realizadas con esta tesis, haciéndose referencia a cómo los trabajos desarrollados contribuyen a una mejor determinación de radionucleidos en el laboratorio y directamente en el terreno (“in situ”). Se describe brevemente el método matemático de simulación Monte Carlo, y se expresan las razones fundamentales que motivaron su uso en espectrometría gamma. Se mencionan los códigos de simulación Monte Carlo (generales y específicos) más utilizados en esta técnica analítica, destacándose la posibilidad de aplicarlos para realizar calibraciones en eficiencia, y efectuar las correcciones asociadas a estas.

En los siguientes capítulos se expone una presentación temática de las publicaciones realizadas:

- Capítulo 4: Correcciones por autoabsorción en la determinación de radionucleidos de baja energía.
- Capítulo 5: Transferencia de eficiencias entre diferentes geometrías de medida.
- Capítulo 6: Calibración en eficiencia para la determinación de radionucleidos depositados en el terreno (“in situ”).

En estos tres capítulos se describen los detalles de cada investigación realizada, partiendo de una introducción extensa, exponiendo los aspectos novedosos incluidos, y mostrando la versión original de cada publicación. Para cada artículo se da una breve presentación del mismo, en la cual aparece el nombre y filiación de todos los coautores y la referencia completa de la revista en que se publicó. Seguidamente se incluye una carta del director de la tesis doctoral sobre el factor de impacto de la publicación, especificando la participación del doctorando en el trabajo realizado.

En el Capítulo 7 se presenta un resumen de los principales resultados y conclusiones obtenidos en cada una de las investigaciones desarrolladas en este trabajo de tesis, haciendo énfasis en los aportes realizados para contribuir a la mejora de la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma. Las referencias y los apéndices constituyen los dos últimos capítulos de la tesis.

Capítulo 2

Espectrometría Gamma: Fundamentos y Equipos de Detección

Los fotones son partículas sin carga y, por esto, no producen ionización en el medio a través del cual pasan. Son los electrones creados en las interacciones con estos fotones los que proveen la información sobre la naturaleza de la radiación incidente. La espectrometría gamma se basa en la detección de esos electrones en el material del detector. De hecho, el detector de radiación gamma debe actuar como un medio de conversión en el cual los fotones tengan una elevada probabilidad de interacción para producir uno o más electrones, y debe funcionar también como un medio de detección para dichos electrones [Knoll, 1989]. El conocimiento de los fundamentos de la espectrometría gamma lleva consigo la comprensión de importantes aspectos como la naturaleza de la radiación gamma, sus diferentes mecanismos de interacción con el detector y con el medio que lo rodea, y el estudio de la influencia de esos tipos de interacción en el espectro de la muestra.

2.1 Naturaleza de la radiación gamma

La radiación gamma es una radiación electromagnética, como lo son las ondas de radio, las microondas y la luz visible. El espectro electromagnético tiene un rango de energías muy amplio, y dentro de este la radiación gamma ocupa la región de mayores energías y longitudes de onda más corta. La Figura 2.1 muestra la región que ocupa la radiación gamma dentro del espectro electromagnético.

La emisión de radiación gamma está asociada a transiciones que ocurren entre los estados excitados del núcleo atómico [Debertin y Helmer, 1988]. Los rayos X aparecen como resultado de un reacomodo de los electrones que se encuentran alrededor del núcleo atómico, después de los procesos de captura electrónica y conversión interna. No existe una frontera clara en energía entre los rayos X y la radiación gamma. De hecho, los rayos X y la radiación gamma comparten un rango energético común (hasta aproximadamente 100 keV).

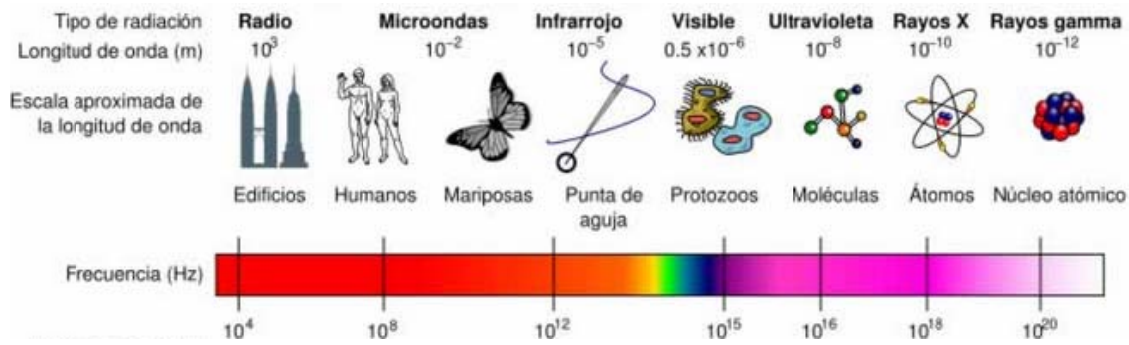


Figura 2.1: Espectro de las radiaciones electromagnéticas.

La mayoría de la radiación gamma es emitida como parte de un decaimiento β . Inmediatamente después de ocurrir el decaimiento β , el núcleo queda en un estado inestable y libera la energía en exceso a través de la emisión de radiación gamma. El tiempo que transcurre entre una y otra emisión es tan corto (inferior a una billonésima parte de un segundo) que se puede considerar que ambas emisiones ocurren prácticamente simultáneamente en una misma desintegración. La probabilidad de emisión gamma no es necesariamente, sin embargo, igual a la probabilidad de decaimiento β , esto se debe al proceso de conversión interna.

2.2. Mecanismos de interacción de la radiación gamma con la materia

Cuando penetran en la materia, los rayos X y gamma pueden interactuar con los átomos que la componen de diferentes formas. Los mecanismos de interacción de la radiación gamma con la materia que tienen mayor importancia en espectrometría gamma son la absorción fotoeléctrica, la dispersión Compton y la formación de pares. Estos tres procesos conducen a la transferencia (parcial o completa) de la energía de los fotones a los electrones del medio.

La radiación gamma también puede interactuar con la materia a través de dispersión coherente (dispersión de Bragg o Rayleigh) y mediante reacciones fotonucleares [Gilmore y Hemingway, 1995]. La dispersión coherente implica la re-emisión del fotón gamma (luego de su absorción) con la misma energía pero con diferente dirección. En este tipo de interacción no existe una excitación del átomo y prácticamente no se

transfiere energía a los electrones del medio, por lo que el fotón gamma incidente conserva su energía inicial. Por otra parte, las secciones eficaces para las reacciones fotonucleares no son significativas para energías de fotones gamma por debajo de 5 MeV. Como es conocido, en la mayoría de las determinaciones realizadas por espectrometría gamma, este rango de energía no se utiliza.

En las interacciones que ocurren por efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y formación de pares, se generan electrones libres. Estos electrones pierden energía al atravesar la materia. En su recorrido a través de la materia, los electrones libres crean pares ion-electrón o electrón-hueco. En muchos detectores de fotones se hace uso de esos pares de cargas creados para detectar el paso de un fotón, o determinar su energía a través de la medida de la cantidad de carga producida.

Como es posible observar en la Figura 2.2, las interacciones por efecto fotoeléctrico prevalecen a bajas energías de los fotones (hasta varios cientos de keV), la formación de pares es predominante para altas energías (por encima de 5 a 10 MeV), y la dispersión de Compton para energías comprendidas entre esos dos extremos. El número atómico (Z) del material tiene una gran influencia en la probabilidad de ocurrencia de estos tres tipos de interacción. La dependencia más marcada se observa para el efecto fotoeléctrico, donde la sección eficaz de interacción varía aproximadamente como $Z^{4.5}$.

El conocimiento de los mecanismos de interacción fundamentales de la radiación gamma con la materia es esencial para la comprensión de los elementos presentes en un espectro gamma, debido a las interacciones de este tipo de radiación con el propio detector y con los materiales que lo rodean. Seguidamente aparece una descripción de los mecanismos de interacción de la radiación gamma con la materia más importantes en espectrometría gamma.

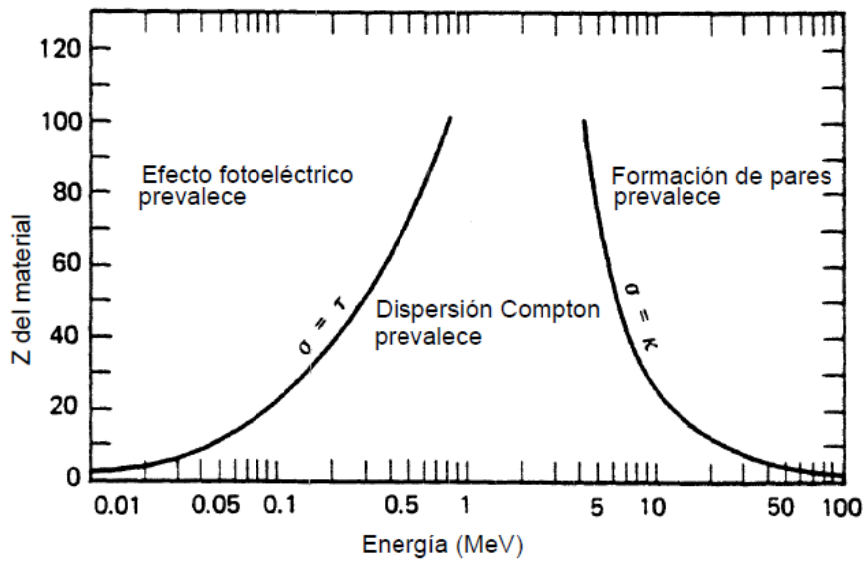


Figura 2.2: Secciones eficaces de interacción en función de la energía de los fotones y el número atómico (Z) del material [Knoll, 1989].

2.2.1 Absorción fotoeléctrica

La absorción fotoeléctrica es un mecanismo de interacción en el cual el fotón gamma incidente interactúa con un electrón enlazado del átomo, siendo absorbida toda la energía del fotón. Como consecuencia de esto, el electrón es expulsado del átomo con una energía cinética E_e que se puede determinar aproximadamente a través de la siguiente relación:

$$E_e = E_\gamma - E_b \quad (2-1),$$

donde E_γ es la energía del fotón gamma incidente, y E_b es la energía de enlace del electrón en su capa. Para energías de los rayos gamma de algunos cientos de keV, el fotoelectrón queda con gran parte de la energía del fotón gamma incidente.

El nivel energético desde donde puede ser emitido el electrón depende de la energía del fotón incidente. Es más probable que la emisión ocurra de la capa K, para la cual la energía de enlace del electrón se encuentra entre unos pocos keV (para materiales de bajo Z) hasta decenas de keV (para materiales con Z elevado). En la Figura 2.3 aparece representado el mecanismo de absorción fotoeléctrica con la emisión de un fotoelectrón de la capa K.

La absorción fotoeléctrica no puede tener lugar con un electrón no enlazado porque no sería posible la conservación del momento y la energía. Si no existe suficiente energía para que el electrón sea emitido desde la capa K, entonces se emitirá de las capas con menor energía de enlace como la L o la M. Este hecho da lugar a las discontinuidades que existen en las curvas de absorción fotoeléctricas. Estas discontinuidades, que ocurren a las energías de enlace de las capas electrónicas, están causadas por el hecho de que los fotones con energías menores no pueden interactuar con los electrones de la capa correspondiente. Por ejemplo, las discontinuidades a la energía de enlace de los electrones en la capa K aparecen en 11.1 keV para el Germanio, y 1.84 keV para el Silicio. Para energías inferiores a esas, solamente podrían ser expulsados (por efecto fotoeléctrico) electrones de la capa L o las capas sucesivas que presentan una menor energía de enlace.

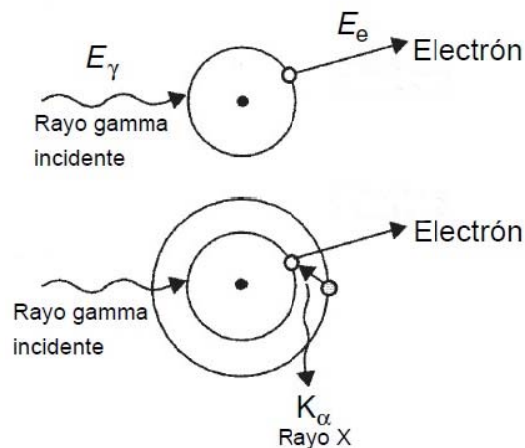


Figura 2.3: Mecanismo de absorción fotoeléctrica con la emisión de un electrón de la capa K del átomo [Gilmore y Hemingway, 1995].

La Figura 2.4 muestra el coeficiente de atenuación lineal de varios materiales en función de la energía, donde se pueden apreciar las discontinuidades correspondientes a las capas K y L.

A no ser que la interacción ocurra en el vacío, la energía del electrón expulsado va disminuyendo a medida que el mismo atraviesa la materia. La vacante que se crea, por la emisión del fotoelectrón, es generalmente ocupada por electrones de las capas más externas del átomo, con la consiguiente emisión de un rayo X característico. Los

rayos X característicos pueden recorrer cierta distancia (generalmente 1 mm o menos) antes de ser reabsorbidos a través de interacciones fotoeléctricas con electrones de las capas más externas del átomo. Alternativamente, la energía de excitación del átomo puede ser transferida a uno de los electrones de las capas con menor energía de enlace, causando su expulsión del átomo. A este electrón se le denomina electrón Auger, y tiene una energía dada por la diferencia entre la energía de excitación del átomo y la energía de enlace del electrón en la capa de la cual el mismo es expulsado. Los electrones Auger tienen un recorrido muy corto en el material debido a sus bajas energías. La emisión de electrones Auger se favorece en materiales de bajo Z porque en esos materiales la energía de enlace de los electrones es pequeña.

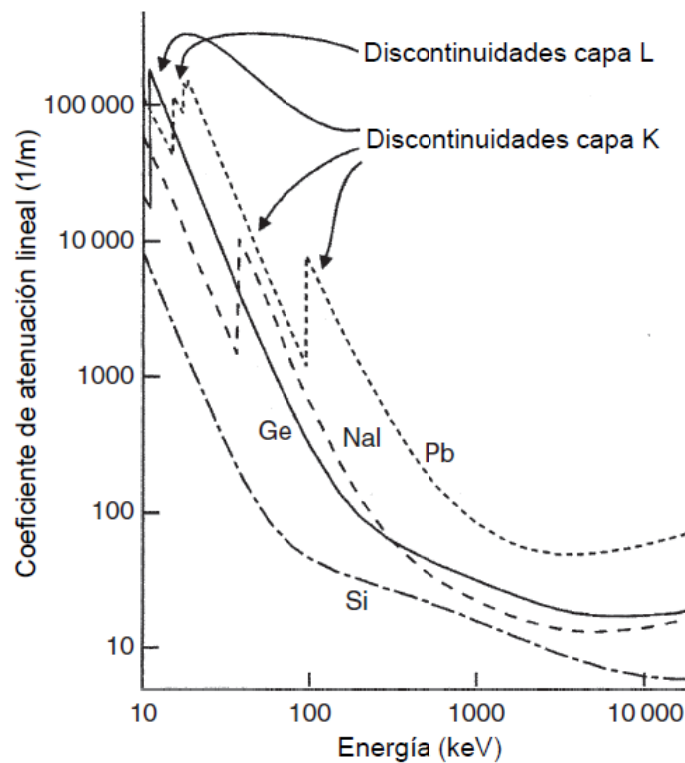


Figura 2.4: Coeficiente de atenuación lineal de varios materiales en función de la energía de la radiación gamma [Gilmore y Hemingway, 1995].

La probabilidad que un fotón interactúe por efecto fotoeléctrico puede ser descrita a través de la sección eficaz τ . Esta sección eficaz no puede ser expresada, a través de una expresión analítica sencilla, en todo el rango de energías y para diferentes Z. No obstante, es posible establecer su dependencia (de forma aproximada) con Z y con la energía de los fotones a través de la siguiente relación:

$$\tau \propto \frac{Z^n}{E_\gamma^m} \quad (2-2),$$

donde los exponentes n y m se encuentran entre 3 y 5, dependiendo de la energía de la radiación gamma. La dependencia con el número atómico indica que un material de elevado Z resulta muy efectivo para la absorción de los fotones. Al ser inversamente proporcional a la energía, la sección eficaz τ es mayor para bajas energías de los fotones, siendo despreciable para altas energías.

Desde el punto de vista de la espectrometría gamma, la absorción fotoeléctrica es un proceso ideal porque a través del mismo es posible conocer la energía original de la radiación gamma que incide en el detector. En este sentido, la energía cinética total de los electrones es igual a la energía de la radiación gamma incidente.

2.2.2 Dispersión Compton

En la dispersión Compton el fotón gamma incidente interactúa, de forma directa, con un electrón. En esta interacción, solo una fracción de la energía del fotón incidente es transferida al electrón, el que se considera que inicialmente está en reposo. Es más probable que la interacción ocurra no con un electrón libre, sino con uno enlazado al átomo. En principio, este hecho haría necesario tomar en consideración la energía de enlace del electrón al átomo en su correspondiente capa. Sin embargo, la mayoría de las interacciones de este tipo ocurren con los electrones más externos del átomo, los cuales poseen una energía de enlace muy pequeña en comparación con la energía del fotón gamma incidente (unos pocos eV frente a cientos de keV). Esto hace que prácticamente se pueda considerar despreciable la energía de enlace del electrón.

Como resultado de la dispersión Compton, el fotón incidente es dispersado con un ángulo θ respecto a su dirección original, y lleva consigo una energía igual a la diferencia entre la energía del fotón gamma incidente y la energía del electrón de retroceso. La energía total del fotón incidente no se deposita en el lugar de la primera interacción. Por ejemplo, para un fotón de alta energía (aproximadamente 1 MeV) pueden ocurrir varios eventos de dispersión Compton, cada uno de ellos con fotones secundarios de menor energía. De esta manera, la energía del fotón gamma incidente puede ser distribuida en un volumen significativo de materia.

La dispersión Compton es el mecanismo de interacción predominante para las energías de la radiación gamma usualmente presentes en las fuentes radioisotópicas.

En la Figura 2.5 aparece representado el mecanismo de interacción por dispersión Compton.

Para la conservación del momento y la energía, las energías del fotón dispersado y del electrón de retroceso están relacionadas con sus ángulos de emisión. La energía impartida al electrón de retroceso E_e se expresa a través de la siguiente ecuación:

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma \quad (2-3),$$

donde E_γ es la energía del fotón gamma incidente, y E'_γ es la energía del fotón gamma dispersado.

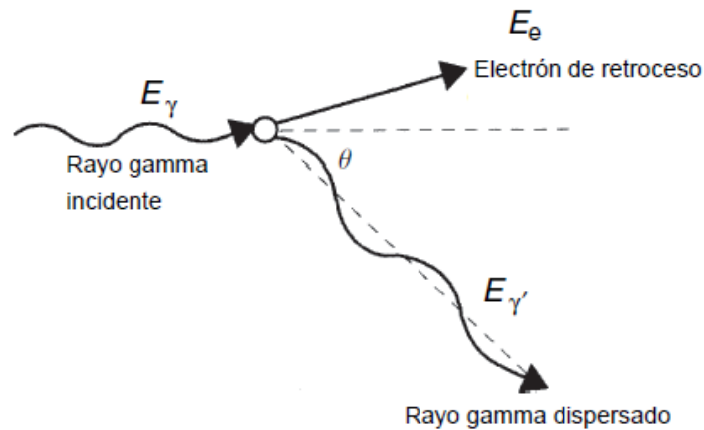


Figura 2.5: Mecanismo de interacción por dispersión Compton [Gilmore y Hemingway, 1995].

En función del ángulo de emisión θ del fotón dispersado, E_e puede ser expresado como:

$$E_e = E_\gamma \left\{ 1 - \frac{1}{1 + E_\gamma(1 - \cos \theta)/m_0c^2} \right\} \quad (2-4),$$

donde m_0c^2 corresponde a la energía de la masa en reposo del electrón (0.511 MeV). Como todos los ángulos de dispersión son posibles, la energía transferida al electrón puede variar desde 0 hasta una importante fracción de la energía del fotón incidente.

La distribución angular de los fotones gamma dispersados se puede predecir a través de la fórmula de Klein-Nishina [Klein y Nishina, 1929] para la sección eficaz de dispersión diferencial $d\sigma/d\Omega$:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_0^2 \left(\frac{1}{1+\alpha(1-\cos\theta)} \right) \left(\frac{1+\cos^2\theta}{2} \right) \left(1 + \frac{\alpha^2(1-\cos\theta)^2}{(1+\cos^2\theta)[1+\alpha(1-\cos\theta)]} \right) \quad (2-5),$$

donde α es la energía del fotón incidente en unidades de la energía de la masa en reposo del electrón ($\alpha = E_\gamma/m_0c^2$) y r_0 es el radio clásico del electrón $r_0 = e^2/4\pi\epsilon_0mc^2 \approx 2.818 \text{ fm}$. En la Figura 2.6 aparece una representación gráfica de la distribución angular de los fotones gamma dispersados. Se observa que la dispersión ocurre en todas direcciones para bajas energías de los fotones incidentes. Sin embargo, para fotones con energías elevadas, existe una fuerte tendencia de que ocurra una dispersión directamente hacia adelante.

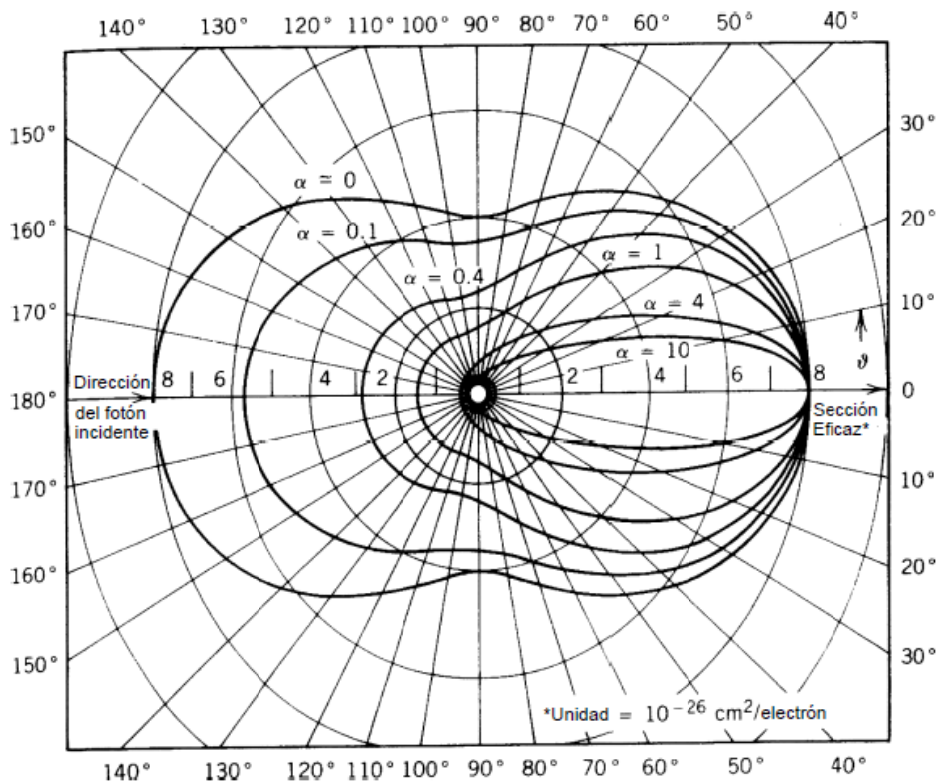


Figura 2.6: Representación polar de la intensidad de la radiación dispersa (por efecto Compton) en función del ángulo de dispersión θ . Los fotones inciden por la izquierda [Britton, 2014].

La sección eficaz para la dispersión Compton, σ , se relaciona con el número atómico del material y con la energía del fotón gamma incidente a través de la siguiente relación:

$$\sigma = k \cdot Z \cdot E^{-1} \quad (2-6),$$

donde k es una constante.

2.2.3 Formación de pares

Diferente a lo que ocurre en la absorción fotoeléctrica y en la dispersión Compton, en la producción de pares el fotón gamma incidente interactúa con el átomo como un todo. Este proceso se produce en el campo de Coulomb del núcleo, ocurriendo la desaparición del fotón gamma, y el surgimiento de un par electrón – positrón. Si la energía del fotón incidente supera dos veces la energía de la masa en reposo del electrón (1.02 MeV), la producción de pares es energéticamente posible. Toda la energía en exceso que posee el fotón incidente (por encima de 1.02 MeV) se convierte en energía cinética, la cual se distribuye de forma equitativa entre el electrón y el positrón. Ambas partículas pierden energía a medida que atraviesan el detector. Cuando la energía del positrón es del orden de la energía térmica de los electrones en el material, este interactúa con un electrón y se produce la aniquilación de los dos, originándose dos fotones de aniquilación con una energía de 511 keV cada uno. Para la conservación del momento, estos fotones de aniquilación se emiten en direcciones opuestas. En la Figura 2.7 se representa el mecanismo de interacción por formación de pares.

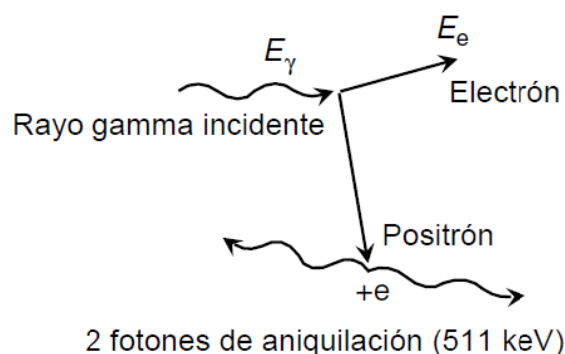


Figura 2.7: Mecanismo de interacción por formación de pares [Gilmore y Hemingway, 1995].

Generalmente los fotones de aniquilación aparecen en un tiempo de aproximadamente 1 ns desde la creación del par electrón – positrón. Basándose en el hecho que los detectores más utilizados en espectrometría gamma tienen un tiempo de colección de carga entre 100 y 700 ns, se puede considerar que la radiación de aniquilación aparece de forma instantánea con la producción de pares.

La sección eficaz K para la interacción por producción de pares, depende de la energía del fotón incidente y del número atómico Z del material en una forma compleja. De modo general, esa relación puede ser expresada como:

$$K \propto Z^2 \cdot f(E_\gamma, Z) \quad (2-7),$$

La función $f(E_\gamma, Z)$ tiene una ligera dependencia con Z , pero varía de forma continua con la energía a partir de 1.02 MeV, por tanto, para energías mayores que 10 MeV la producción de pares es el mecanismo de interacción predominante.

2.3 Interacción de la radiación gamma con el detector

La operación de los detectores de radiaciones depende básicamente de la manera en la cual la radiación interacciona con el material que lo compone. De hecho, la comprensión de la respuesta de cualquier tipo de detector se basa en el conocimiento de los mecanismos de interacción de la radiación con el material del detector. Como ya había sido expresado anteriormente, la detección de radiación X y gamma no es un proceso directo debido a que estos tipos de radiaciones no tienen carga intrínseca y no pueden, por consiguiente, producir excitación ni ionización del medio que atraviesan. En este sentido, la detección de este tipo de radiaciones depende de su transferencia de energía a los electrones del material con el cual interactúan (por efecto fotoeléctrico y dispersión Compton), o (como en el caso de la formación de pares) al par electrón - positrón. La energía de esas partículas individuales se puede encontrar desde casi cero hasta la energía del fotón incidente.

La manera en la cual el fotón gamma incidente interacciona con el material del detector, está relacionada con la amplitud de la señal producida en el mismo. Esto depende de la energía inicial de los fotones, el Z del material del detector, y (para dispersión Compton) del ángulo de dispersión del fotón gamma.

Debido a que es poco probable que en una sola interacción se absorba toda la energía del fotón gamma incidente, la deposición de dicha energía depende del lugar en que el

fotón interactúe dentro del detector (para tomar en consideración el posible escape de radiación secundaria), y de las dimensiones del propio detector.

Cuando las dimensiones del detector son lo suficientemente grandes que permiten la interacción de la radiación gamma mediante uno u otro mecanismo de los mencionados anteriormente (efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y formación de pares), no se produce el escape de radiación secundaria. Debido a que ninguna radiación secundaria escapa del detector, la energía total de los electrones producidos coincide con la energía inicial del fotón gamma incidente, sin importar cuan compleja pueda ser la historia de interacción de los fotones. La respuesta del detector es, por tanto, la misma que si el fotón gamma incidente hubiese tenido una única interacción en el detector por efecto fotoeléctrico. Para energías típicas de los fotones gamma, este detector debería tener dimensiones del orden de muchas decenas de centímetros. La Figura 2.8 muestra la interacción de los fotones con un detector de gran volumen, y la respuesta del detector.

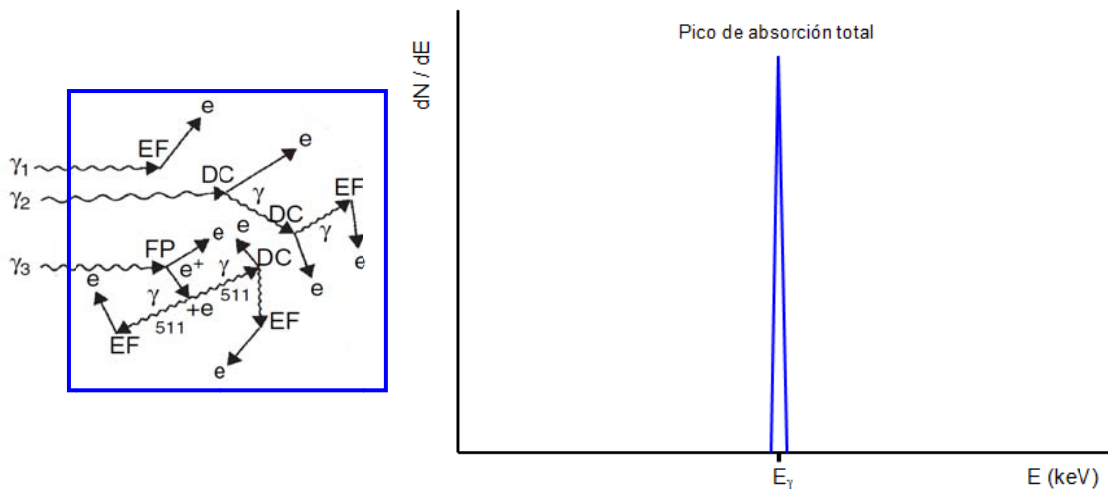


Figura 2.8: Interacción de la radiación gamma en un detector de gran volumen, y respuesta del detector [Gilmore y Hemingway, 1995; Knoll, 1989].

En el caso en que las dimensiones del detector sean pequeñas comparadas con el recorrido libre medio de la radiación gamma secundaria, la forma del espectro de deposición de energía de los electrones depende de la energía del fotón incidente. En este sentido, si la energía inicial del fotón es menor que 1.02 MeV, el espectro está compuesto por la combinación de los efectos de dispersión Compton y absorción

fotoeléctrica. El continuo de energía correspondiente a los electrones dispersados por efecto Compton se denomina “continuo Compton”, mientras que la absorción completa de los fotoelectrones está asociada al pico de absorción total o “fotopico”.

Si la energía del fotón gamma incidente es suficientemente alta (> 1.02 MeV), el proceso de formación de pares también aporta al espectro de deposición de energía de los electrones, escapando del detector la radiación de aniquilación del positrón. Esto produce en el espectro un “pico de doble escape” ubicado a una energía de $2m_0c^2$ (~ 1.02 MeV) por debajo de la energía del fotopico. Debido a que el recorrido libre medio de los rayos gamma secundarios es generalmente de varios centímetros, las dimensiones del detector se consideran pequeñas si las mismas no exceden 1 o 2 cm. Este tipo de detector no es muy diferente a los detectores planares pequeños utilizados para la medida de rayos X y rayos gamma de baja energía. En la Figura 2.9 se representa las interacciones de los fotones gamma incidentes en un detector de volumen muy pequeño, y el espectro de deposición de energía de los electrones cuando se considera que también ocurre el proceso de formación de pares.

Los detectores reales empleados en espectrometría gamma poseen un volumen entre los dos extremos mencionados anteriormente. Incluso los detectores de mayor volumen tienen que ser considerados finitos porque algunas interacciones ocurren cerca de la superficie donde inciden los fotones. La respuesta de un detector real debe, por tanto, combinar algunas de las características mencionadas anteriormente para los detectores muy grandes y muy pequeños, así como también tener algunos elementos adicionales relacionados con la deposición parcial de energía de la radiación gamma secundaria.

Como ya se vio anteriormente, el espectro de deposición de energía de los electrones para energías medias y bajas de los fotones incidentes (para las cuales no ocurre el proceso de formación de pares) está formado por el continuo de Compton y el fotopico. En este caso, sin embargo, la relación entre el área del fotopico y el área bajo el continuo de Compton es mayor que para el caso del detector de volumen muy pequeño porque otros eventos también contribuyen al área del pico de absorción total.

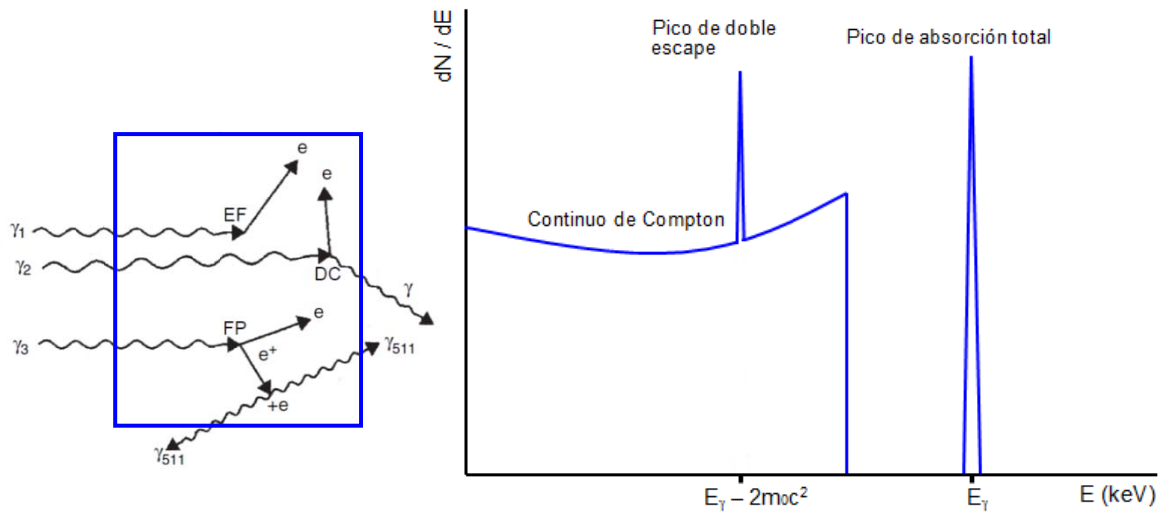


Figura 2.9: Interacción de la radiación gamma en un detector de volumen muy pequeño, y espectro de deposición de energía de los electrones [Gilmore y Hemingway, 1995; Knoll, 1989].

Mientras menor es la energía del fotón gamma incidente, menor es la energía promedio de los fotones dispersados por efecto Compton. Esto hace que la distancia promedio de migración de esos fotones dispersos sea también menor. El área relativa bajo el fotopico aumenta con la disminución de la energía de los fotones incidentes. De hecho, para energías muy bajas (< 100 keV) el continuo de Compton puede desaparecer.

Para energías medias de los fotones incidentes pueden ocurrir dispersiones Compton múltiples seguidas por el escape de los rayos gamma dispersados en la etapa final. Esto conduce a que ocurra una deposición total de energía mayor que la que tiene lugar en una dispersión simple. Estos eventos múltiples se ubican en la banda de energía existente entre el borde de Compton y el pico de absorción total, distorsionando la forma que tendría el espectro para una dispersión Compton simple.

Si la energía del fotón gamma incidente es suficiente para que pueda ocurrir la formación de pares, los fotones de aniquilación pueden escapar del detector o interactuar nuevamente dentro del mismo. Estas interacciones adicionales pueden provocar la absorción parcial o completa de la energía de uno o ambos fotones de aniquilación. Si ambos fotones de aniquilación escapan del detector, aparece en el

espectro (como fue mostrado anteriormente en el detector pequeño) el pico de doble escape. También puede ocurrir que solamente un fotón de aniquilación escape del detector, mientras el otro es completamente absorbido. En este último caso, en el espectro aparece un “pico de escape simple” con una energía m_0c^2 inferior a la del fotopico. En la Figura 2.10 se muestran las interacciones que pueden tener lugar en un detector real, y el espectro de deposición de energía de los electrones.

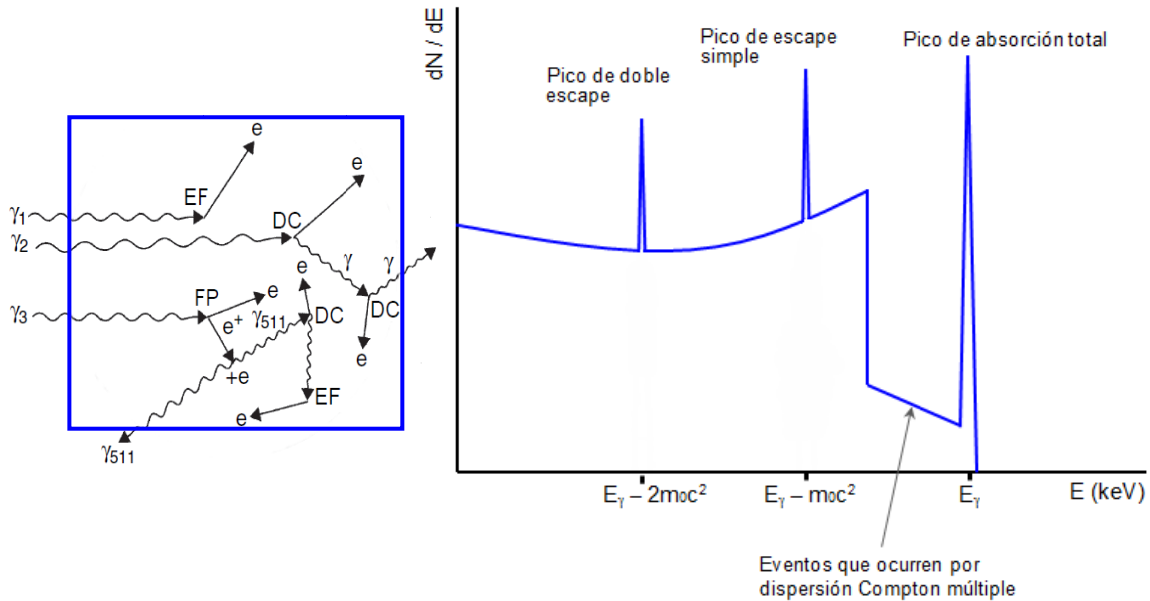


Figura 2.10: Interacción de la radiación gamma en un detector real, y espectro de deposición de energía de los electrones [Gilmore y Hemingway, 1995; Knoll, 1989].

Para altas energías de los fotones, los picos de escape simple y doble escape constituyen partes prominentes del espectro, pudiendo (en ciertas circunstancias) ser mayores que el pico de absorción total. En el espectro real de una muestra pueden aparecer, además, otros elementos como un continuo (diferente al fondo radiactivo) a energías superiores a la del fotopico, y otros picos adicionales. El continuo a mayor energía que el fotopico se debe a las sumas aleatorias (apilamiento) y depende de la tasa de conteo de la muestra. Los picos adicionales se originan como consecuencia de las sumas en coincidencias que se producen para los radionucleidos que decaen en cascada. Las sumas en coincidencias dependen del esquema de desintegración del radionucleido y de la geometría muestra – detector.

En general, la respuesta de un detector real depende de su forma, volumen, material del cual está compuesto, características de los radionucleidos determinados, y también de la geometría propia de las condiciones de medida. Es muy difícil de predecir con detalle esta respuesta, a no ser usando la simulación Monte Carlo, la que permite seguir la historia de los fotones y tomar en consideración las características del detector, la muestra (incluyendo el esquema de decaimiento de los radionucleidos presentes en esta) y la geometría de medida.

2.4 Interacción de la radiación gamma con el blindaje

Existen componentes del espectro gamma que no están relacionados con la interacción de la radiación gamma con el detector. Estos elementos son llamados “artefactos”, y su presencia se debe a la interacción de la radiación gamma con los materiales que rodean al detector. La Figura 2.11 presenta algunas de las interacciones que pueden tener lugar en el blindaje que generalmente rodea al detector. Las letras A, B y C representan las radiaciones secundarias que llegan al detector producto de las interacciones que tienen lugar en el blindaje por absorción fotoeléctrica (A), dispersión Compton (B) y formación de pares (C).

En la Figura 2.12 se ilustra el efecto que tienen estas radiaciones secundarias que llegan al detector en el espectro de la muestra. Como ya fue explicado anteriormente, la probabilidad de ocurrencia del efecto fotoeléctrico, y el surgimiento de rayos X característicos (A), se incrementa con el Z del material con el cual los fotones interactúan. Los materiales de elevado Z (como el plomo) son, sin embargo, los más efectivos y los más utilizados para el blindaje de la radiación gamma. Los rayos X característicos del plomo producen en el espectro picos en la región energética 70 – 85 keV. Existe, no obstante, una forma de eliminar la influencia de estos rayos X característicos a través del uso de blindajes compuestos. La parte interior de este tipo de blindaje está compuesta por dos capas de diferentes materiales, generalmente cadmio y cobre. El cadmio, que va unido al plomo, absorbe los rayos X característicos de este último, pero produce, a su vez, rayos X característicos de menor energía provenientes del cadmio. Los rayos X característicos del cadmio son absorbidos por el cobre. Los rayos X característicos del cobre tienen una energía muy baja (8 – 9 keV) y no constituyen un problema en la mayoría de las determinaciones realizadas por espectrometría gamma.

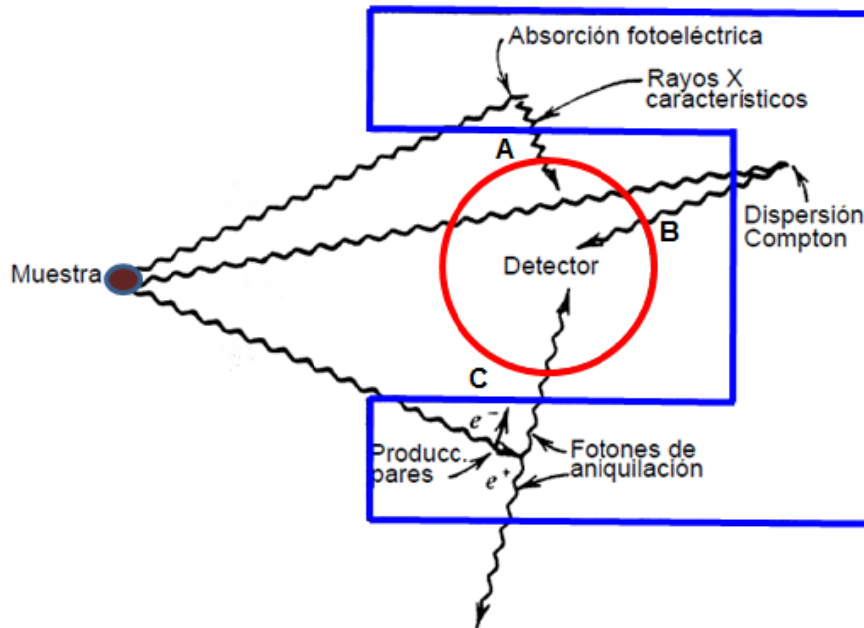


Figura 2.11: Interacción de la radiación gamma con el blindaje que rodea al detector [Knoll, 1989].

En el caso del fotón gamma dispersado que aparece por efecto Compton (B), cuando el ángulo de dispersión es mayor que $110 - 120^\circ$ los fotones dispersados tienen aproximadamente la misma energía. Si la energía inicial de los fotones incidentes en el blindaje es alta ($E_\gamma \gg \frac{m_0c^2}{2}$), el pico de retrodispersión aparece a una energía de aproximadamente 0.2 MeV. A diferencia de lo expresado para los rayos X característicos, no hay mucho que se pueda hacer para evitar la presencia del pico de retrodispersión en el espectro, aunque un blindaje de mayores dimensiones pudiera contribuir a hacerlo menos pronunciado.

El pico de aniquilación, que se produce como consecuencia del proceso de formación de pares en el blindaje, aparece a una energía de 0.511 MeV. Debe tenerse cuidado al identificar el origen del pico de aniquilación porque existe el riesgo de confundirlo con el pico de aniquilación producido por fuentes radiactivas que emiten positrones.

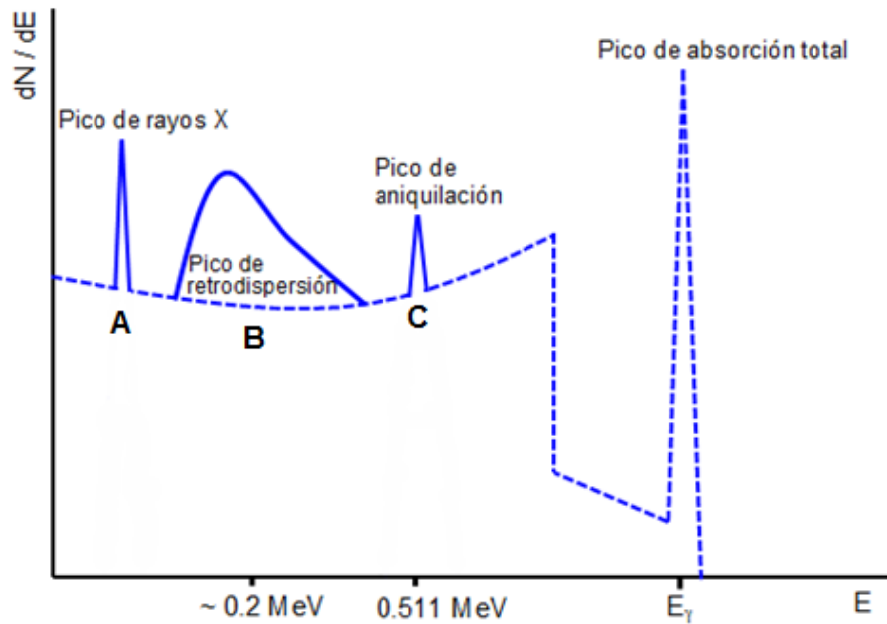


Figura 2.12: Influencia que tienen en el espectro de la muestra las radiaciones secundarias que llegan al detector producto de la interacción de la radiación gamma con el blindaje [Knoll, 1989].

Aparte de la influencia en el espectro de las interacciones de la radiación gamma con el blindaje que rodea al detector, la forma del espectro también se puede ver afectada por la detección de radiación de frenado (“bremsstrahlung”). Como se expresó con anterioridad, la mayoría de las fuentes de rayos gamma decaen por emisión β^- . Este hecho hace que en el proceso de absorción de la radiación beta en el encapsulado de la fuente, se produzca radiación secundaria en la forma de radiación de frenado, la cual puede llegar al detector y tener influencia en la forma del espectro. Debido a que es continua, la radiación de frenado no provoca la aparición de picos en el espectro, sino que añade un continuo preferentemente en la zona de las bajas energías. En la práctica, la radiación de frenado es significativa cuando la energía de la partícula β es mucho mayor que 1 MeV. El efecto de la radiación de frenado en el espectro provoca un incremento del fondo radiactivo en la zona de las bajas energías, y reduce la precisión de las determinaciones en este rango energético. La Figura 2.13 muestra el efecto de la radiación de frenado en el espectro.

La contribución de la radiación de frenado no puede ser sustraída del espectro de la muestra como sucede con el fondo radiactivo. Es por esta razón que su inclusión

puede falsear el área de los fotopicos en su región de influencia. El uso de absorbedores de radiación β hechos de materiales de bajo Z como el berilio, puede minimizar la aparición de radiación de frenado.

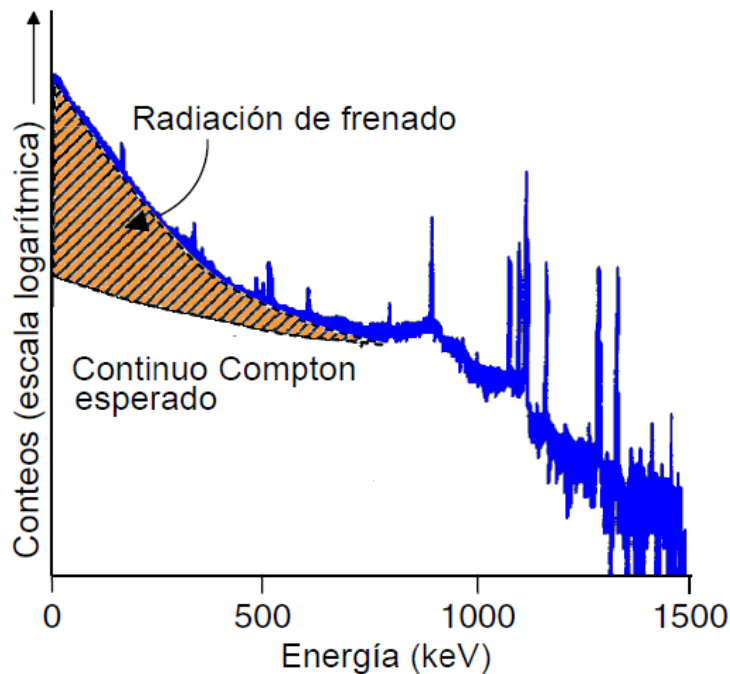


Figura 2.13: Influencia en el espectro de la radiación de frenado [Gilmore y Hemingway, 1995].

2.5 Equipos de Detección

Para que la radiación gamma pueda ser registrada por un equipo de detección, esta debe interactuar con el material que lo compone. En general, la interacción ocurre en un tiempo muy pequeño, pudiéndose considerar que la deposición de energía ocurre de forma prácticamente instantánea [Knoll, 1989]. En casi todos los equipos de detección de radiaciones, el resultado neto de la interacción de la radiación lo constituye la aparición de una determinada cantidad de carga eléctrica en el volumen activo del detector. Esta carga debe ser colectada para formar una señal eléctrica. La colección de las cargas ocurre debido al voltaje aplicado a los detectores, el que crea un campo eléctrico que provoca que las cargas negativas y positivas (creadas por la radiación) se desplacen en direcciones opuestas hacia los correspondientes electrodos. El tiempo requerido para colectar todos los portadores de carga varía de

un tipo de detector a otro. En el caso de un detector semiconductor es de unos pocos nanosegundos.

Existen propiedades comunes que permiten caracterizar a los detectores usados en espectrometría de radiación gamma, independientemente de su tipo. Entre esas propiedades se encuentran la resolución energética, la relación pico-Compton, la eficiencia y la fotofracción.

La resolución energética está relacionada con la respuesta del detector a radiación gamma monoenergética. La Figura 2.14 muestra la distribución diferencial de altura de pulsos que se produciría en un detector en esas condiciones. La resolución se define como el ancho total (en keV) a la semialtura del pico (FWHM). Es común expresar también la resolución en tanto por ciento, calculada a partir de la relación entre FWHM y el centroide del pico (H_0). Esta definición de resolución presupone que el fondo radiactivo o el continuo sobre el cual el pico pueda estar ubicado es despreciable, o fue eliminada su contribución con anterioridad. En una muestra que contenga varios radionucleidos emisores gamma, la resolución expresa la capacidad que tiene el detector de poder separar energías que se encuentren muy cercanas. De hecho, cuando los centroides de dos picos bien conformados (con formas gaussianas) están separados por más de 3 veces la FWHM, los picos son claramente identificables de manera independiente.

Existen una serie de fluctuaciones en la respuesta de un detector que afectan su resolución energética. Entre esas fluctuaciones está cualquier variación en los parámetros operacionales que pueda tener lugar en el proceso de medida, ruidos aleatorios en el propio detector y en la electrónica asociada al mismo, y ruido estadístico proveniente de la naturaleza discreta de la señal medida (variación del número discreto de portadores de carga que se originan). En este sentido, siempre se produce una variación pulso a pulso aún cuando los fotones depositen la misma cantidad de energía en el detector en cada evento. Particularmente, el ruido estadístico constituye una fluctuación que siempre está presente en la señal del detector, sin importar cuán perfecto sea el funcionamiento del resto de la cadena electrónica.

La relación pico – Compton se define como el cociente entre la amplitud máxima del fotopico con centroide en 1332.5 keV (del ^{60}Co), y la amplitud promedio para la distribución de Compton entre 1046 y 1096 keV, determinada en el mismo espectro originado por la fuente de ^{60}Co .

2.5.1 Detectores centelleadores

El volumen sensible de un detector centelleador lo constituye el material luminiscente, el cual está acoplado a un equipo (generalmente un tubo fotomultiplicador) que detecta las emisiones de luz inducidas por la interacción de la radiación gamma. La intensidad de la luz emitida posee un comportamiento lineal con la energía absorbida en el cristal. Los materiales centelleadores pueden ser orgánicos o inorgánicos, siendo los últimos los más empleados en espectrometría gamma. Ejemplos de materiales centelleadores orgánicos lo constituyen el antraceno (con mayor eficiencia) y algunos plásticos y líquidos. Entre los centelleadores inorgánicos se encuentran el ioduro de sodio (NaI), ioduro de cesio (CsI), fluoruro de calcio (CaF), sulfuro de zinc (ZnS), ioduro de litio (LiI), germanato de bismuto (BGO) y los haluros de lantano.

El mecanismo de centelleo en los materiales inorgánicos depende de los estados energéticos determinados por la estructura cristalina del material [Knoll, 1989]. En materiales aislantes, como los que componen los centelleadores inorgánicos, los electrones solo tienen disponible bandas discretas de energía. En la banda de valencia se encuentran aquellos electrones que están enlazados a los átomos del cristal. En la banda de conducción, por su parte, están los electrones que tienen suficiente energía para migrar a través del cristal. Existe una banda intermedia de energía, la banda prohibida, en la cual nunca se pueden encontrar electrones en un cristal puro. La absorción de energía por el material centelleador puede conducir a la elevación de un electrón desde su posición normal en la banda de valencia, a la banda de conducción. Este hecho deja un déficit de carga negativa en la banda de valencia denominado hueco. En un cristal puro, el regreso del electrón a la banda de valencia con la emisión de un fotón es un proceso ineficiente. Para amplitudes típicas de la banda prohibida, el fotón emitido tendría una energía tan elevada que no estaría en el rango de la luz visible.

Para incrementar la probabilidad de emisión de fotones de luz visible durante el proceso de desexcitación, se añaden pequeñas cantidades de impurezas al centelleador inorgánico. Esas impurezas, llamadas activadores, crean sitios especiales en la estructura cristalina del material (estados energéticos intermedios en la banda prohibida) a través de los cuales el electrón puede desexcitarse para regresar a la banda de valencia. Esta nueva transición puede dar lugar a fotones de luz visible, lo que constituye la base del proceso de centelleo.

Cuando una partícula cargada pasa a través del detector, se forman un gran número de pares electrón – hueco, originados por el paso de los electrones de la banda de valencia a la banda de conducción. Los huecos (con carga positiva) se desplazan hacia los sitios de los activadores y los ionizan. Esto es posible porque la energía de ionización de la impureza es menor que la de los sitios de la red cristalina pura. Los electrones migran por el cristal hasta encontrar a activadores ionizados, pudiendo caer en los sitios de las impurezas creando una configuración neutra de las mismas (con sus propios estados excitados). Si la transición del estado excitado del activador al estado básico es permitida, la desexcitación ocurrirá en un tiempo muy breve (aproximadamente 0.1 μ s en la mayoría de los casos) y con una alta probabilidad de emisión de fotones de luz visible. En la Figura 2.15 se representa la estructura de bandas energéticas de un cristal centelleador inorgánico con activador.

Entre los centelleadores inorgánicos con activador, el más empleado es el NaI(Tl). Debido a que este detector presenta la mayor salida luminosa de todos los centelleadores inorgánicos tradicionales que usan fotomultiplicadores convencionales, su resolución es también la mejor. Su respuesta a los electrones (y por tanto a la radiación gamma) es prácticamente lineal en todo el rango energético de interés en espectrometría gamma. Otra ventaja adicional es que los detectores de este tipo pueden ser fabricados en una gran variedad de formas y volúmenes. El NaI(Tl) tiene, sin embargo, algunas desventajas como su fragilidad, sensibilidad a gradientes y choques térmicos, higroscopía y sus limitaciones (debido a la fosforescencia) en aplicaciones que involucren medidas de elevadas tasas de conteo.

En general, los detectores centelleadores tienen una resolución pobre. La cadena de eventos que tiene lugar para convertir la energía de la radiación incidente en luz, y la posterior generación de una señal eléctrica, consta de muchas etapas ineficientes. La energía requerida para la creación de un portador de carga (un fotoelectrón) es de 100 eV o más, y el número de fotoelectrones que se originan por la interacción de la radiación no es mayor que unos pocos miles. Como consecuencia de esto, las fluctuaciones estadísticas en el número de portadores de carga son grandes, siendo esta la causa principal de la limitada resolución de estos detectores. Por ejemplo, la resolución del NaI(Tl) es de alrededor de 6% para la energía de 662 keV del ^{137}Cs , y depende fundamentalmente de las fluctuaciones estadísticas en el número de fotoelectrones.

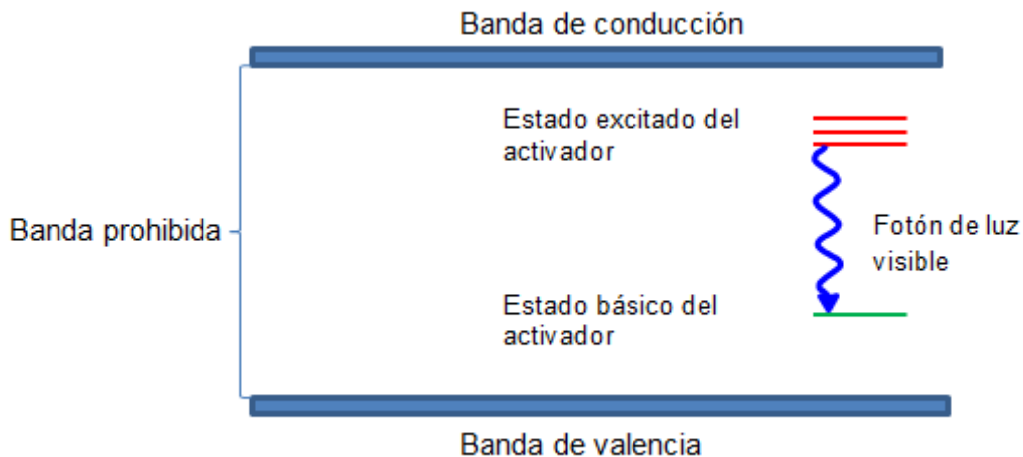


Figura 2.15: Estructura de bandas energéticas de un cristal centelleador inorgánico con activador [Knoll, 1989].

2.5.2 Detectores semiconductores

Entre los detectores semiconductores, los más empleados en espectrometría gamma son los de silicio y germanio. Los detectores de silicio, a pesar de su elevada pureza fruto del desarrollo de la industria electrónica, poseen un número atómico bajo ($Z=14$), lo que significa que en la práctica solamente puedan ser empleados para las medidas de fotones de baja energía (< 150 keV) y rayos X ($1 - 50$ keV). El germanio, con un $Z = 32$, posee un coeficiente de atenuación lineal mayor que el silicio para los fotones, lo que lo hace más conveniente para determinaciones por espectrometría gamma en un amplio rango energético.

Los detectores de germanio fueron introducidos por primera vez en el año 1962 [Tavendale y Ewan, 1963], constituyendo desde esa fecha los más empleados en aplicaciones de la espectrometría gamma que requieren de una alta resolución. Debido a su menor espesor en la banda prohibida (0.67 eV) [Gilmore y Hemingway, 1995], en el germanio se produce un mayor número de portadores de carga (pares electrón - hueco) por cada fotón incidente. Este hecho provoca que exista una menor fluctuación estadística en el número de portadores de carga, y que se obtenga la mejor resolución energética de todos los detectores empleados en la espectrometría de la radiación gamma.

En un material semiconductor puro, la excitación térmica provoca el movimiento de un determinado número de electrones de la banda de valencia a la banda de conducción, dejando atrás igual número de huecos. Cuando un semiconductor tiene igual número de electrones y de huecos, se le denomina semiconductor intrínseco. En la práctica, no es posible contar con un material que esté completamente libre de impurezas, las cuales tienen un efecto significativo en la conductividad del semiconductor.

La presencia de una impureza aceptadora o una impureza donante en el material semiconductor, hace que disminuya la energía necesaria para la creación de los pares electrón – hueco. Esto se debe a la aparición de nuevos estados energéticos arriba de la banda de valencia (estados aceptadores), y por debajo de la banda de conducción (estados donantes), lo que hace más estrecha la banda prohibida e incrementa la conductividad del material. El cristal de germanio con impurezas aceptadoras (átomos del grupo III de la Tabla Periódica) se denomina tipo-p, mientras que cuando posee impurezas donantes (átomos del grupo V de la Tabla Periódica) se clasifica como tipo-n. Cuando el dopaje es muy alto (elevada concentración de impurezas de tipo p y n), siendo mínima la concentración de portadores minoritarios, los semiconductores del tipo n se denotan como n^+ y los del tipo p como p^+ . Los semiconductores n^+ y p^+ tienen una alta conductividad eléctrica, empleándose fundamentalmente en los contactos eléctricos rectificadores de estos detectores.

Un detector de radiación gamma, de un material semiconductor como el germanio, se basa en el establecimiento de una unión p-n en uno de sus electrodos. En este sentido, estos detectores tienen una estructura del tipo p-i-n, en la cual la región intrínseca (i) está constituida por una zona libre de portadores de carga, a la que se aplica un voltaje inverso a través de los contactos p^+ y n^+ . La región libre de portadores de carga es mayor cuanto menor es la concentración de impurezas en el semiconductor. En la Figura 2.16 aparece una representación genérica de un detector semiconductor.

Una forma de disminuir la concentración de impurezas en un material semiconductor es a través de la compensación de las impurezas residuales con otras impurezas opuestas. En el silicio y en el germanio, el material con mayor grado de pureza es generalmente de tipo-p, requiriéndose por tanto la adición de átomos donantes (a través de la difusión de átomos de Li) para lograr la compensación. Los detectores que se obtienen con este proceso son los de Si(Li) y Ge(Li). Los iones de Li tienen una alta movilidad en el Ge a temperatura ambiente, constituyendo esto una de las principales desventajas de estos detectores, al requerir estar permanentemente enfriados a la

temperatura del nitrógeno líquido (77 K) para que no se rompa el balance de impurezas.

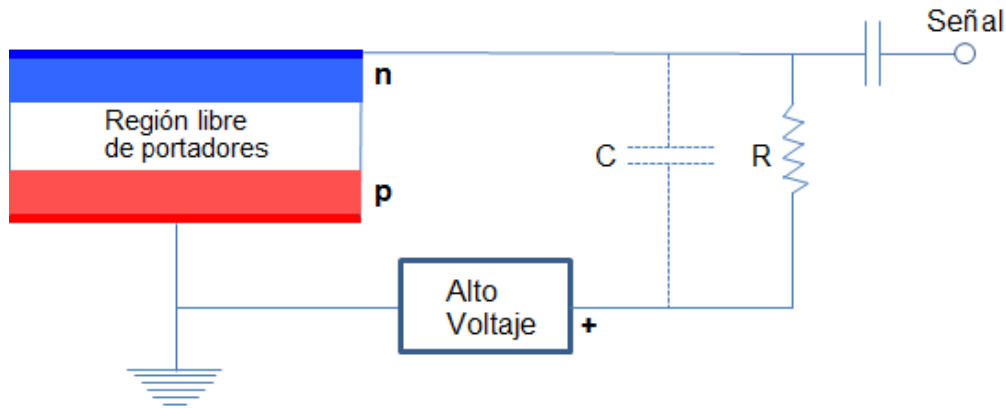


Figura 2.16: Representación de los componentes típicos de un detector semiconductor [Reilly et al., 1991].

Otra forma de disminuir la cantidad de impurezas en el material semiconductor es contar con procesos adicionales que permitan alcanzar la pureza deseada. Tal es el caso de la fabricación del germanio hiperpuro (HPGe) [Hall y Soltys, 1971; Hansen, 1971], que constituyó un gran avance en espectrometría gamma. Los detectores HPGe cuentan con una concentración de impurezas de 10^{10} átomos cm^{-3} (alrededor de 10^{-6} ppm), eliminando la necesidad de la compensación con litio. Estos detectores requieren ser enfriados a la temperatura del nitrógeno líquido sólo durante su funcionamiento, con el objetivo de reducir a un nivel aceptable el ruido electrónico (corrientes de fuga) que se origina por la excitación térmica de los portadores de carga.

Los detectores HPGe se fabrican con diferentes configuraciones, entre las que se encuentran los planares, coaxiales y de pozo, dependiendo de la aplicación específica en la que se utilicen. En la configuración coaxial, un electrodo está ubicado en la superficie exterior de un cristal de germanio de forma cilíndrica, mientras que el otro está localizado en la superficie interior del hueco central. De este modo, el volumen activo es mayor. Los detectores coaxiales pueden ser abiertos o cerrados. Los cerrados son aquellos en los cuales solamente una parte del núcleo del cristal es retirado para formar el electrodo central, extendiéndose el electrodo exterior sobre la superficie lateral del semiconductor. Esta configuración es la más empleada en los

detectores HPGe coaxiales. En principio, la unión p-n en los detectores coaxiales puede estar en la superficie interior o exterior del cristal. La unión p-n localizada en la superficie exterior requiere de un voltaje mucho menor para el crecimiento total de la región intrínseca, por esa razón es la configuración que se prefiere.

Debido a que los detectores tipo p tienen una capa muerta relativamente gruesa (contacto n+ de litio de alrededor de 700 μm), estos detectores se utilizan para la determinación de radionucleidos con energías de los fotones superiores a 40 keV. Por el contrario, en los detectores tipo n la capa muerta es mucho más delgada (de aproximadamente 0.3 μm), pudiendo emplearse para medidas de fotones con unos pocos keV de energía cuando se utilizan ventanas de materiales ligeros como el berilio ($Z = 4$).

Los detectores de pozo se usan para incrementar la eficiencia de detección de la radiación gamma de muestras de pequeño volumen y baja actividad. En la geometría de pozo, el ángulo sólido entre la muestra y el volumen activo del detector es de aproximadamente 4π sr.

2.6 Calibración de los equipos de detección

La calibración de los equipos de detección permite la interpretación de los espectros de radiación gamma en términos de energía (en lugar de número de canales) y actividad del radionucleido (en lugar de número de impulsos). En el análisis del espectro gamma de una muestra, particularmente cuando se emplean programas de cálculo para ello, es también importante tomar en consideración la variación de la resolución de los fotopicos con la energía. De lo anterior se deduce que un correcto análisis espectral requiere que los equipos de detección estén calibrados en energía (correspondencia canal - energía), resolución (en función de la energía) y eficiencia (relación entre el número de cuentas y la tasa de desintegración del radionucleido). Seguidamente se describe, de forma breve, las particularidades de cada una de estas calibraciones.

2.6.1 Calibración en energía

El objetivo de la calibración en energía es el establecimiento de una relación entre la posición de los fotopicos en el espectro de la muestra y sus correspondientes energías gamma. Esta calibración se desarrolla midiendo una fuente que emita fotones con energías bien conocidas (tomadas de bases de datos nucleares fiables), y relacionando las posiciones de los fotopicos en el espectro con sus respectivas energías.

Para la calibración en energías se pueden emplear fuentes que contengan uno (por ejemplo ^{152}Eu) o varios radionucleidos. Cualesquiera que sean las fuentes empleadas, siempre se debe asegurar que las energías de los fotones utilizadas en la calibración cubran todo el rango energético del equipo de detección. El espectro de calibración se mide durante un tiempo lo suficientemente grande como para asegurar una adecuada precisión estadística (< 0.2 keV para la posición de los fotopicos).

En muchos casos es adecuado establecer una relación lineal entre la cantidad de energía transferida al detector (E), y la altura del pulso eléctrico que se produce, que está en correspondencia con el número del canal (K) donde el pulso es almacenado. De forma general:

$$E = mK + c \quad (2-8),$$

donde m es la escala lineal de energía (keV/canal), y c es el intercepto, que normalmente se ubica lo más próximo posible a cero.

La adecuación de esta expresión para relacionar la energía con el número de canal, depende de la linealidad integral del equipo de detección usado. Suponiendo una linealidad integral de 0.05% del amplificador espectroscópico, y de 0.02% del conversor análogo digital (ADC), esto implicaría un error máximo de 1 keV al emplear esa calibración lineal para estimar la posición de los fotopicos en un espectro de 0 a 2000 keV. En la actualidad, la linealidad de los conversores análogo digitales es extremadamente buena, lo que permite que los errores en la determinación de la posición de los fotopicos sean muy pequeños. Las desviaciones de la linealidad que puedan existir se localizan en los extremos del rango en canales del ADC (que se corresponde con los extremos en la escala de energía).

Generalmente, se emplea una escala de 0.3 keV/canal en espectrometría gamma de alta energía (hasta 2400 keV) utilizando un analizador multicanal (MCA) de 8192

canales. Para bajas energías, una escala de 0.05 keV/canal es adecuada en la mayoría de los casos.

2.6.2 Calibración en resolución

Cuando un detector registra fotones monoenergéticos provenientes de la desintegración radiactiva de un radionucleido (por ejemplo, los de 662 keV del ^{137}Cs), teóricamente la amplitud de los pulsos, originados como consecuencia de los eventos de deposición total de energía, debería ser la misma en todos los casos, apareciendo en el espectro de la muestra una respuesta semejante a una función matemática de tipo delta en 662 keV [Knoll, 1989]. En la práctica, sin embargo, existen diversos factores que provocan variaciones en las amplitudes de los pulsos, con su consiguiente ubicación en diferentes canales del MCA, dando origen a la resolución energética en los fotopicos que aparecen en el espectro medido.

La resolución energética está influenciada por las fluctuaciones estadísticas que se producen en el detector asociadas a la variación en el número de portadores de carga, así como a su colección, transmisión y medida, como consecuencia de los eventos que resultan en la deposición total de energía. La resolución se puede ver también afectada por diversos elementos tecnológicos de la cadena de espectrometría gamma utilizada, entre los que se encuentra el ruido electrónico de la cadena de amplificación y procesamiento de los pulsos. Otros parámetros, que dependen de las condiciones específicas en que se desarrolle cada medida, como la tasa de contaje del detector (por el apilamiento de pulsos que pudiera ocurrir), el tiempo de conformación de los pulsos, y la cancelación polo – cero establecidos, son elementos que han de ser evaluados en el análisis de la resolución. Tomando en consideración las diferentes contribuciones mencionadas anteriormente, la resolución (FWHM) puede ser expresada de la siguiente forma [Debertin y Helmer, 1988]:

$$FWHM = \sqrt{(FWHM)_E^2 + (FWHM)_C^2 + (FWHM)_R^2} \quad (2-9),$$

donde $FWHM_E$ es la contribución a la resolución debido a la fluctuación estadística de los portadores de carga, $FWHM_C$ es la degradación de la resolución provocada por la fluctuación de la colección de cargas eléctricas, y $FWHM_R$ es el aporte a la anchura de los fotopicos causado por el ruido electrónico de la cadena espectrométrica.

La variación en el número de portadores de carga está dada por la siguiente expresión:

$$FWHM_E = 2.355\sqrt{F \epsilon E_\gamma} \quad (2-10),$$

donde F es el factor de Fano, ϵ es la energía requerida para la formación de un par electrón-hueco, y E_γ es la energía de los fotones. El factor de Fano F se introduce para efectuar la corrección entre las fluctuaciones estadísticas observadas de los portadores de carga, y las que se predicen según la distribución de Poisson. La distribución de Poisson asume que los eventos individuales de creación de portadores de carga son independientes. En realidad, esto no sucede así porque el surgimiento de un par electrón-hueco altera la distribución electrónica local de la estructura cristalina del detector, pudiendo esto afectar la probabilidad de creación de otro par electrón-hueco en esa misma área local.

Las fluctuaciones que ocurren en la colección de cargas eléctricas ($FWHM_C$) están dadas fundamentalmente por la existencia de trampas en la estructura del cristal provocadas por la presencia de impurezas e imperfecciones, o por daños causados al detector por radiaciones, y a la no homogeneidad del campo eléctrico en el detector. El efecto de esta componente se puede reducir aumentando el voltaje de trabajo del detector, tomando en consideración no sobrepasar el límite establecido para el cual aparecen corrientes de fuga que fluyen por la superficie del cristal.

Todas las incertidumbres asociadas a las señales electrónicas, al ser procesadas por el preamplificador, el amplificador y el MCA, conforman un ruido electrónico. La contribución del ruido electrónico ($FWHM_R$), que no depende de la energía de la radiación incidente ni de la amplitud del pulso, se debe principalmente a las vibraciones térmicas aleatorias de los electrones (ruido térmico o de Johnson), y por la naturaleza estadística de los procesos que generan la corriente eléctrica (ruido de disparo) [Gilmore y Hemingway, 1995].

Si en el espectro medido de la muestra, las áreas de los fotopicos fuesen determinadas de forma manual a través del establecimiento de regiones de interés (ROI), no se necesitaría realizar una calibración en resolución. Sin embargo, cuando se emplean programas de cálculo para tal fin, se hace necesario decirle al programa cuál es la forma esperada del pico, es decir, este debe ser capaz de decidir la resolución del fotopico en función de su energía.

La calibración de la resolución se realiza de forma conjunta con la calibración en energías, ajustando los puntos de calibración (FWHM versus energía de la radiación gamma) con una función analítica adecuada. A pesar de que la función que mejor ajusta la dependencia entre la resolución y la energía es de tipo cuadrática [Hurtado et al., 2006], esta opción generalmente no se encuentra incluida en los programas de análisis de espectros. En la práctica, las incertidumbres en la estimación de la resolución de los fotopicos del espectro son mucho mayores que los errores en que se incurren al asumir una dependencia lineal entre la resolución y la energía.

2.6.3 Calibración en eficiencia

En espectrometría gamma es posible definir diferentes tipos de eficiencia, entre las que se encuentran la eficiencia intrínseca en el pico de absorción total (ε_i), la eficiencia absoluta en el pico de absorción total (ε_{FEP}) y la eficiencia absoluta total (ε_T).

La ε_i expresa la relación entre el número de fotones que dejan toda su energía en el volumen activo del detector, y el número de fotones que inciden en el mismo. Esta eficiencia depende principalmente del material del detector, de la energía de la radiación incidente, y del espesor del detector en la dirección de incidencia de los fotones. La ε_i está estrechamente vinculada con la fotofracción, definida como la relación entre el área del fotopico y el área total del espectro. La fotofracción es una propiedad de los detectores que constituye una medida directa de la probabilidad de que los fotones incidentes, cualquiera que sea el mecanismo de interacción en el que incurran, depositen toda su energía en el detector. Un valor elevado de fotofracción es conveniente para minimizar los efectos indeseados en el espectro del continuo de Compton y de los picos de escape.

La ε_{FEP} toma en consideración el número de fotones que depositan toda su energía en el volumen activo del detector, del total de fotones emitidos por la muestra en el ángulo sólido 4π sr. De forma general, esta eficiencia, que depende de la geometría de medida, de las características propias de la muestra y el detector, y de la energía de los fotones incidentes, se puede expresar a través de la siguiente relación [Cornejo Díaz, 2009]:

$$\varepsilon_{FEP} = \varepsilon_i \frac{\Omega_m}{4\pi} \cdot \Psi_m \quad (2-11),$$

donde ε_i es la eficiencia intrínseca en el pico de absorción total, Ω_m es el ángulo sólido medio entre la muestra y el volumen activo del detector, y Ψ_m es la transmisión media de los fotones desde su origen en la muestra hasta que alcanzan el volumen activo del detector, tomando en consideración la autoabsorción en la muestra, así como la atenuación que tiene lugar en los materiales que conforman el encapsulado del detector, y en su capa muerta.

De forma experimental, la ε_{FEP} (para cada energía de interés) se determina empleando patrones de calibración trazables, con actividades certificadas, que contengan radionucleidos que emitan fotones en todo el rango energético considerado. La eficiencia en el pico de absorción total en función de la energía ($\varepsilon_{FEP}(E)$) se calcula como:

$$\varepsilon_{FEP}(E) = \frac{\dot{N}_{FEP}(E)}{AI_\gamma(E)} \quad (2-12),$$

donde $\dot{N}_{FEP}(E)$ es la tasa de contaje neta en el fotopico con centroide en la energía E , A es la actividad certificada del radionucleido en la fecha de determinación de la eficiencia, y $I_\gamma(E)$ es la probabilidad de emisión de un fotón con energía E por cada desintegración radiactiva del radionucleido en el patrón de calibración.

La ε_T está dada por el cociente entre el número de fotones que interactúan en el volumen activo del detector, y el total de fotones emitidos por la muestra en el ángulo sólido 4π sr. Particularmente esta eficiencia es muy importante en el cálculo de los factores de corrección por sumas en coincidencia, determinados para radionucleidos (que decaen en cascada) presentes en muestras colocadas a pequeñas distancias del detector.

La eficiencia que resulta de interés para la determinación de la actividad de los radionucleidos por espectrometría gamma, es la eficiencia absoluta en el pico de absorción total (ε_{FEP}). La actividad A de una muestra se calcula a través de la siguiente relación [Debertin y Helmer, 1988]:

$$A = \frac{N}{I_\gamma t \varepsilon_{FEP}} \prod_{i=1}^n C_i \quad (2-13),$$

donde N es el número de cuentas netas en el fotopico, I_γ es la probabilidad de emisión de un fotón con la energía de interés por cada desintegración radiactiva de la fuente, t es el tiempo de recuento, ε_{FEP} es la eficiencia en el pico de absorción total

para la energía considerada, y C_i son los coeficientes de corrección debidos al decaimiento radiactivo antes y durante la medida, al efecto de suma por coincidencias, a las sumas aleatorias y a las pérdidas de cuentas por saturación.

La determinación de actividad, según la expresión anterior, requiere de una previa calibración en eficiencia (ε_{FEP}) del sistema de espectrometría gamma para diferentes energías de emisión de los fotones. En la calibración en eficiencias, los pares eficiencia-energía que se obtienen con valores discretos de energía, se ajustan con funciones analíticas apropiadas para hacer posible la interpolación posterior al valor de energía que sea requerido. Algunas de las expresiones analíticas más usadas son las siguientes:

$$\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \ln(E_\gamma)^1 + a_2 \ln(E_\gamma)^2 + a_3 \ln(E_\gamma)^3 + \dots \quad (2-14),$$

$$\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{E_\gamma}\right)^1 + a_2 \left(\frac{1}{E_\gamma}\right)^2 + a_3 \left(\frac{1}{E_\gamma}\right)^3 + \dots \quad (2-15),$$

Capítulo 3

Aplicación del método de Monte Carlo en espectrometría gamma y propuestas de mejora

3.1 Problemas asociados a la calibración en eficiencia y determinación de actividades.

La estimación de actividades por espectrometría de radiación gamma requiere de una previa calibración en eficiencias, basada en el pico de absorción total y establecida para un amplio rango de energías de los fotones. Generalmente, la incertidumbre asociada a la calibración en eficiencias es una de las que más influencia tiene en la incertidumbre de la actividad. Por esta razón, la calibración en eficiencias debe ser realizada con extremo cuidado y precisión. La determinación experimental de la eficiencia suele ser el método de calibración más empleado. Sin embargo, no siempre es posible realizar la calibración en eficiencia de forma experimental, al no contarse con patrones de calibración que se adapten (en cuanto a geometría, composición química elemental y densidad) a las características particulares de cada muestra medida.

Las diferencias entre las características de las muestras medidas y el patrón de calibración provocan grandes desviaciones en los valores de actividad estimados, con relación a las actividades reales. El coste de los patrones, y dificultades asociadas a su uso, como el hecho de que pueden contener radionucleidos con cortos períodos de semidesintegración (siendo necesaria la renovación de los mismos con cierta periodicidad), y aspectos de protección radiológica durante su uso y almacenamiento, son otros factores que limitan en muchos casos su disponibilidad en los laboratorios analíticos. Particularmente, la calibración en eficiencias empleando radionucleidos de corta vida, como por ejemplo el ^{54}Mn (312.3 d), ^{57}Co (271.8 d), ^{85}Sr (64.9 d), ^{88}Y (106.6 d), ^{109}Cd (462.6 d), ^{113}Sn (115.1 d), ^{139}Ce (137.6 d), y ^{203}Hg (46.6 d), trae consigo la pérdida paulatina de puntos en la curva de calibración, con el correspondiente incremento de la incertidumbre asociada a los procedimientos de interpolación.

Las determinaciones de baja actividad que se realizan por espectrometría gamma, como el análisis de muestras del medioambiente y alimentos, generalmente son desarrolladas ubicando la muestra volumétrica a pequeñas distancias del detector (casi siempre colocándolas directamente sobre este). Estas condiciones de medida tienen asociadas una elevada eficiencia y bajos límites de detección, pero también conllevan la necesidad de efectuar importantes correcciones. En este tipo de medidas, la eficiencia se hace más dependiente de las características de la matriz de la muestra porque la autoabsorción de los fotones depende de la composición química elemental y la densidad de la misma. Las muestras medioambientales, por ejemplo, pueden diferir mucho en cuanto a sus composiciones químicas y sus densidades (variando desde valores cercanos a 0 hasta unos 2 g/cm³).

Particularmente para radiación gamma de baja energía, las correcciones por autoabsorción a la eficiencia presentan una contribución importante. En este rango de energía los coeficientes de atenuación másicos tienen valores muy diferentes para diversos elementos, lo que contribuye a que se cometan errores y que existan desviaciones grandes respecto a los valores de eficiencia real al emplear patrones con matrices diferentes a la de la muestra de interés. En la Tabla 3.1 aparecen los coeficientes de atenuación másicos para diferentes elementos químicos y para una energía de los fotones de 46.5 keV. Los coeficientes de atenuación másicos fueron calculados empleando el programa XCOM [Berger y Hubbell, 1987]

Elemento químico	Coefficiente de atenuación másico (cm ² g ⁻¹)
H	0.3378
O	0.2006
Al	0.3664
Si	0.4446
Ca	1.125
Fe	2.247

Tabla 3.1: Coeficientes de atenuación másicos para diferentes elementos químicos y para una energía de los fotones de 46.5 keV.

Existen diferentes metodologías para efectuar las correcciones por autoabsorción, siendo una de las más difundidas la del método experimental de transmisión de Cutshall [Cutshall et al., 1983]. Básicamente, en este método se hace uso de una fuente radiactiva (generalmente una fuente puntual) colimada que es ubicada encima de la muestra, la cual es colocada sobre el detector. La corrección por autoabsorción se calcula mediante una expresión que relaciona las tasas de contaje netas (obtenidas en el experimento de transmisión) para el caso del contenedor de la muestra vacío y con la matriz de la muestra en su interior. En la Figura 3.1 aparece un esquema ilustrativo del método de transmisión de Cutshall. La aplicación de este método requiere la utilización de fuentes puntuales (de elevada actividad) con diferentes energías de los fotones, las cuales no siempre están disponibles en los laboratorios analíticos. Estudios precedentes [Jodlovski et al., 2014] demuestran que, por ejemplo, para la determinación específica de ^{210}Pb (con una energía de emisión de 46.5 keV), el método de Cutshall sobrestima en gran medida el valor del factor de corrección por autoabsorción para muestras que tengan un coeficiente de atenuación lineal mayor que el del patrón de calibración. De igual modo, este método conlleva una subestimación del factor de corrección en el caso contrario.

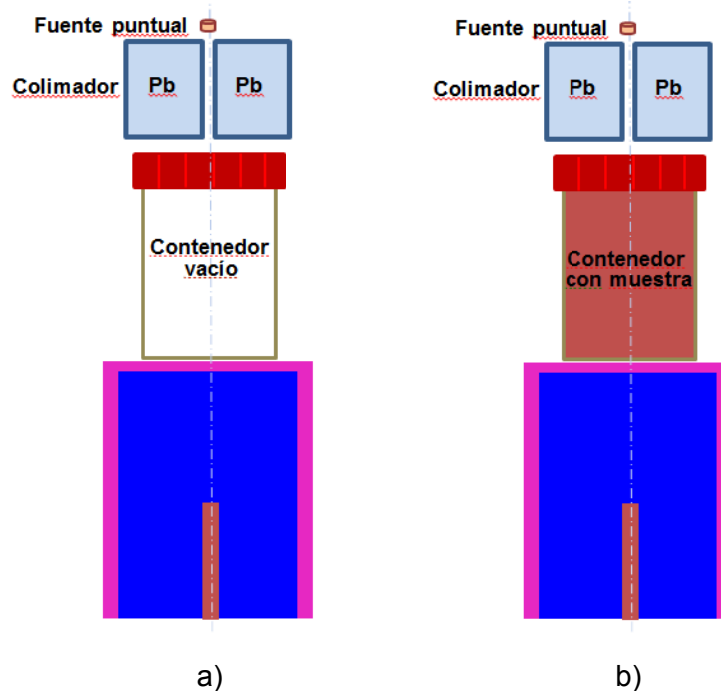


Figura 3.1: Esquema ilustrativo del método de transmisión de Cutshall indicando las medidas con el contenedor de la muestra vacío (a), y con la matriz de la muestra en su interior (b).

Investigaciones previas han tratado las correcciones por autoabsorción de la radiación gamma en el rango energético aproximado de 60 – 2000 keV para muestras ambientales en geometrías cilíndricas. La dependencia de la eficiencia de pico (“pico de absorción total”) con la densidad de la matriz ha sido estudiada por varios autores [Jurado Vargas et al., 2002] para este rango energético. Por el contrario, son pocos los estudios realizados para evaluar las desviaciones que se pueden presentar al determinar los valores de concentración de actividad para muestras de suelos y sedimentos, al detectar radionucleidos de baja energía (≤ 60 keV) cuando la composición química elemental de la muestra varía. Igualmente, y como consecuencia, no se ha evaluado el impacto que tienen dichas correcciones por autoabsorción en la datación de sedimentos, cuando las edades se determinan particularmente empleando los radionucleidos ^{210}Pb y ^{241}Am , ambos con bajas energías de emisión.

En las determinaciones realizadas por espectrometría gamma existe un número considerable de radionucleidos que provocan una distorsión significativa en el espectro de la muestra. Esta distorsión es debida al efecto de las sumas en coincidencia, lo que conlleva a que la eficiencia sea dependiente del tipo de radionucleido que se mida. Los efectos de las sumas en coincidencia dependen de las características del detector utilizado, la geometría de medida y el esquema de desintegración del radionucleido. Las correcciones por este efecto juegan un importante papel en las determinaciones que se realizan por espectrometría gamma, especialmente en la actualidad, donde se suelen emplear detectores con elevadas eficiencias y grandes volúmenes. La obtención de los factores de corrección por sumas en coincidencias no es una tarea trivial, especialmente para muestras volumétricas ubicadas sobre el detector. Una de las dificultades existentes para el cálculo de los factores de corrección es la obtención de datos nucleares fiables. Algunos autores [Sinkko y Aaltonen, 1985] han realizado compilaciones de factores de corrección por sumas en coincidencia para mostrar la importancia de este tipo de corrección en un gran número de radionucleidos con desintegración en cascada. Aunque existen programas basados en simulación Monte Carlo para efectuar este tipo de correcciones (como por ejemplo GESPECOR), esos programas no son de fácil aplicación vinculados a los programas de análisis de espectros más comúnmente usados. Esto indica la necesidad de realizar un análisis a posteriori del espectro de la muestra para cada fotopico de interés.

La aplicación clásica de la espectrometría gamma contempla la toma de muestras para su posterior análisis en el laboratorio en un ambiente controlado. Este tipo de medidas tiene la ventaja de tener asociada una mayor precisión para los resultados

individuales. Sin embargo, no siempre se pueden realizar las medidas en el laboratorio. Existen ocasiones en que la muestra la constituye una extensa área de terreno. Las dimensiones propias de la muestra pueden dificultar también su transporte y análisis en el laboratorio, como en el caso de los bidones con desechos radiactivos, o las tuberías de procesos industriales que contengan radionucleidos naturales (NORM). En estas situaciones es mucho más conveniente y menos costoso realizar las medidas en el lugar (“in situ”).

La determinación de radionucleidos emisores gamma en el terreno puede ser realizada a través de la toma (y posterior análisis en el laboratorio) de muestras de suelo, y mediante el desarrollo de medidas directamente en el lugar de interés (“in situ”). La toma de muestras puede proporcionar información sobre la distribución horizontal y vertical de los radionucleidos en el terreno. Sin embargo, este método consume mucho tiempo y requiere el análisis de muchas muestras para la correcta caracterización de la zona de estudio. Las medidas “in situ”, por otra parte, tienen menor coste y pueden desarrollarse de un modo rápido colocando el detector generalmente a 1 metro de altura sobre la superficie del suelo. De este modo, el detector mide la radiación gamma proveniente de un área de varios cientos de metros cuadrados, obteniéndose valores medios más fiables de la actividad de los radionucleidos en el terreno producto de la integración del flujo de fotones que tiene lugar en toda el área de medida. La Figura 3.2 muestra la geometría de medida empleada para la determinación de radionucleidos en el terreno por espectrometría gamma “in situ”, y la contribución relativa al flujo primario total a 1 m de altura sobre la superficie del suelo para una distribución de ^{137}Cs (662 keV) en el terreno caracterizada por un perfil de profundidad $\alpha/\rho = 0.21 \text{ cm}^2\text{g}^{-1}$.

En las determinaciones “in situ” la calibración experimental en eficiencia suele ser un proceso difícil y largo que requiere el uso de un gran número de patrones de calibración, generalmente fuentes puntuales certificadas con diferentes energías de emisión, de las cuales no siempre existe disponibilidad en el laboratorio, y de la realización de numerosas medidas.

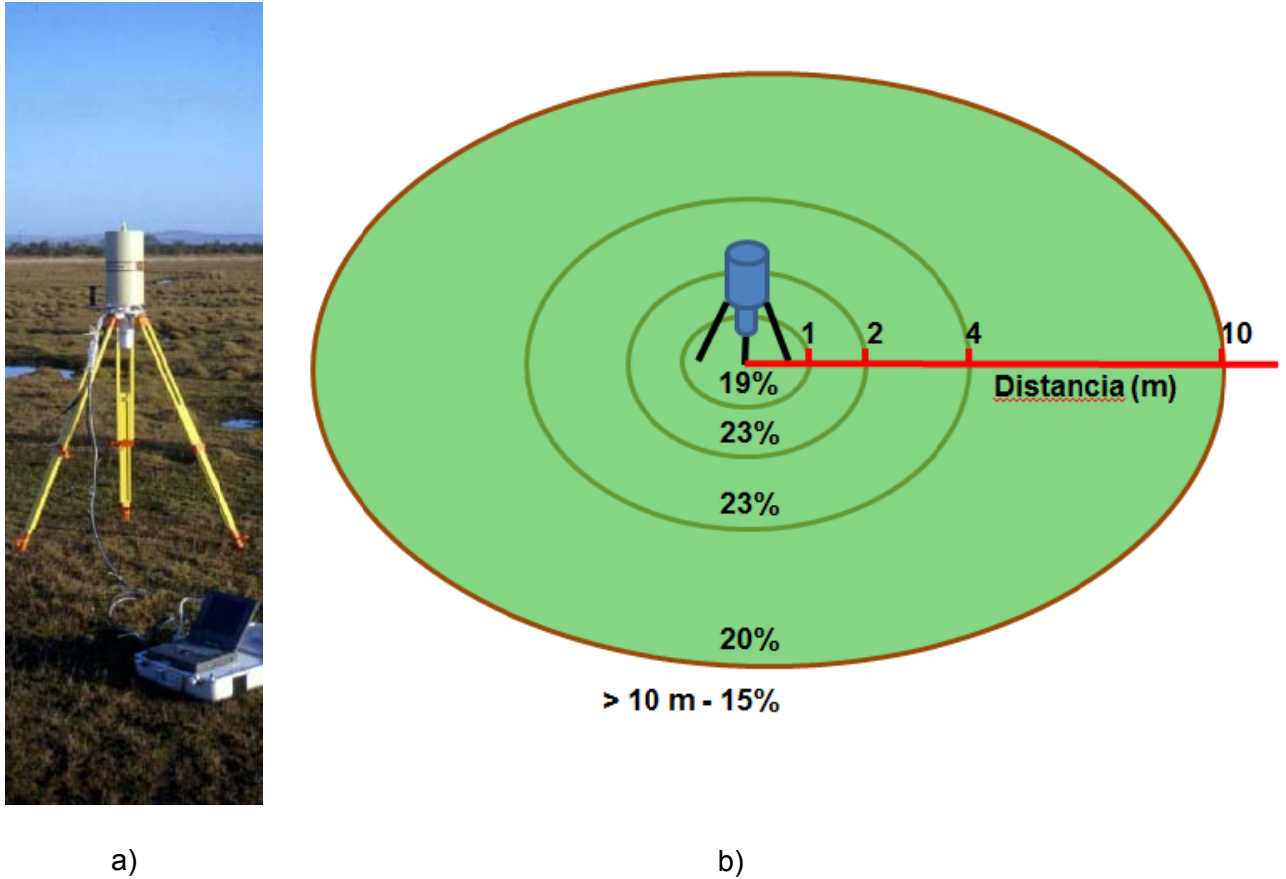


Figura 3.2: Geometría de medida empleada para la determinación de radionucleidos en el terreno por espectrometría gamma “in situ” (a), y contribución relativa al flujo primario total a 1 m de altura sobre la superficie del suelo para una distribución de ^{137}Cs (662 keV) con un perfil de profundidad $\alpha/\rho = 0.21 \text{ cm}^2\text{g}^{-1}$ (b) [Helfer y Miller, 1988].

3.2 Uso de la simulación Monte Carlo en espectrometría gamma

La simulación Monte Carlo es un método matemático en el que el problema de interés se resuelve mediante el uso de un modelo basado en números aleatorios tomados de una distribución específica. Este método no solamente puede ser aplicado para la solución de problemas estadísticos, sino también a aquellos de naturaleza determinista. Desde sus inicios, la simulación Monte Carlo fue aplicada para la resolución de problemas relacionados con la interacción de las partículas nucleares. De hecho, el desarrollo de la simulación Monte Carlo como método científico está

estrechamente vinculado con el Proyecto Manhattan, donde su aplicación incluyó la simulación del transporte de radiaciones.

Cualquier simulación de los procesos físicos relacionados con la interacción de las radiaciones ionizantes, tiene que dar seguimiento a las partículas de dichas radiaciones para poder tener una valoración del proceso estudiado al registrar un número significativo de eventos. En la simulación Monte Carlo aplicada a la espectrometría gamma, se realiza una simulación estadística de los procesos físicos que tienen lugar en el sistema muestra - detector. La historia de cada fotón es seguida, comenzando con su estado inicial que lo constituye su punto de origen dentro de la muestra. Posteriormente se determina el punto de interacción y el proceso que ocurre con cada partícula. Se registra la energía depositada y se le da seguimiento a las partículas secundarias. El seguimiento finaliza cuando ocurre la absorción de los fotones por efecto fotoeléctrico, o cuando la partícula alcanza un estado tal que haga innecesario su seguimiento ulterior (abandona el volumen del detector o alcanza un determinado valor de energía). En la Figura 3.3 se representan historias de los fotones que pueden ser seguidas empleando la simulación Monte Carlo. Las interacciones con el detector se producen por efecto fotoeléctrico (EF), dispersión Compton (DC) y formación de pares (FP). Como se aprecia, todas las historias mostradas concluyen con la absorción completa de la energía de los fotones.

La aplicación de la simulación Monte Carlo en espectrometría gamma tiene una historia de más de 50 años. Su uso en esta técnica analítica es una consecuencia de la imposibilidad de contar con un gran número de patrones experimentales para las calibraciones en eficiencia, que se adaptaran (en cuanto a geometría, composición química elemental y densidad) a los distintos tipos de muestras medidas y los diferentes escenarios caracterizados. Como generalmente los laboratorios analíticos disponían de un limitado número de patrones de calibración, se hacía necesario estudiar la dependencia de la eficiencia en el pico de absorción total respecto a la composición química elemental y a la densidad de la muestra (el efecto matriz). De igual modo, la aplicación de la simulación Monte Carlo a la espectrometría gamma estuvo motivada por la necesidad de efectuar correcciones a la eficiencia por el efecto de las “coincidencias sumas” en la determinación de radionucleidos con desintegración en cascada.

Los centelleadores fueron los primeros detectores simulados. El trabajo de Berger y Doggett [1956] fue quizás el primero en probar la posibilidad real de aplicar la simulación Monte Carlo a la espectrometría gamma, al obtener resultados mediante la simulación matemática bastante similares a los valores experimentales.

Específicamente en detectores semiconductores de germanio, los primeros trabajos fueron los de Wainio y Knoll [1966], y De Castro Faria y Levesque [1967].

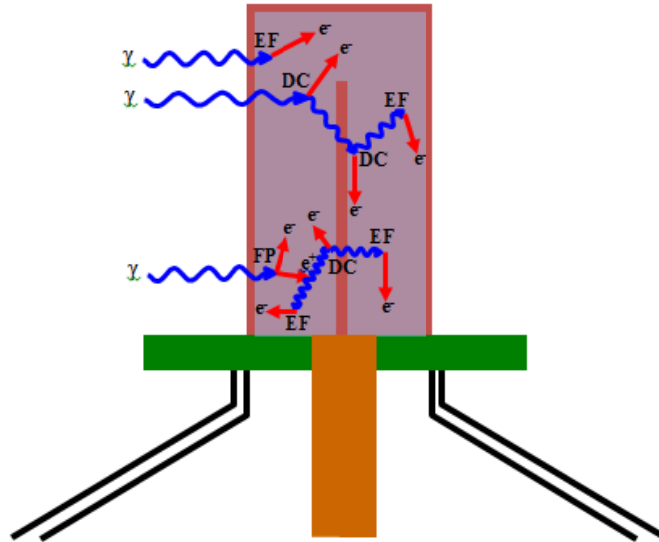


Figura 3.3: Historias de los fotones que suelen ser seguidas empleando la simulación Monte Carlo para la calibración en eficiencia en el pico de absorción total. Las interacciones con el detector ocurren por efecto fotoeléctrico (EF), dispersión de Compton (DC) y formación de pares (FP).

Los primeros programas desarrollados para simulación Monte Carlo en detectores de germanio fueron programas diseñados y elaborados para tal fin. Los programas de cálculo de este tipo se denominan códigos específicos, muchos de los cuales fueron desarrollados desde el año 1970, aunque las referencias en la literatura sobre el uso de los mismos han sido más frecuentes en los últimos años. Más tarde, códigos de propósito general fueron adaptados para su aplicación en espectrometría gamma. Estos códigos generales cuentan con procedimientos bien establecidos para la simulación de los diferentes procesos físicos, pero requieren que el usuario introduzca los datos de entrada necesarios para su adaptación a esta técnica analítica. Esta tarea no es trivial y requiere de un entrenamiento previo por parte del usuario en la misma. Entre los códigos generales usados en espectrometría gamma se encuentran GEANT, MCNP, MCNPX, PENELOPE, EGS, ITS-CYLTRAN y ETRAN. Códigos específicos como ANGLE, DETEFF, GESPECOR, ETNA y EFFTRAN son utilizados para realizar calibraciones en eficiencia, transferencia de eficiencias, correcciones por

autoabsorción y correcciones por suma en coincidencias (esto último no en todos). Estos programas cuentan además con la ventaja de ser de fácil manejo para el usuario.

En un inicio, la aplicación rutinaria de la simulación Monte Carlo a la espectrometría gamma, gobernada por la interacción probabilística de la radiación con la materia, estuvo limitada por los largos tiempos de simulación. Hoy en día esto no constituye un problema debido a la potencia de cálculo de los ordenadores actuales que son capaces de generar una gran cantidad de números pseudo-aleatorios en tiempos relativamente pequeños. En general, los códigos específicos tienen asociados menores tiempos de simulación que los códigos de propósito general. Esto es debido a la implementación de varias técnicas de reducción de varianzas como el hecho de seguir solamente las historias de los fotones emitidos por la muestra que se dirigen hacia el detector, el uso de factores de atenuación analíticos calculados previamente, y la consideración de que la primera interacción ocurre en el interior del detector.

3.2.1 Calibración en eficiencia empleando la simulación Monte Carlo

No existe una función analítica, basada en los principios físicos que ocurren en el interior del detector, que pueda describir satisfactoriamente la variación de la ε_{FEP} en función de la energía. Algunos autores [Freeman y Jenkin, 1966; Mowatt, 1969; Harvey, 1970; Euler y Kaplan, 1970] han establecido diferentes expresiones semiempíricas para este fin. Sin embargo, esas aproximaciones sólo se pueden aplicar a determinados tipos de detectores, y rangos energéticos, no proporcionando en muchos casos el grado de exactitud requerido en las determinaciones desarrolladas por los laboratorios analíticos. La transferencia de eficiencias planteada por Moens [Moens et al., 1981], basada en asumir que la relación entre la eficiencia absoluta total y la ε_{FEP} es independiente de la posición, el volumen y composición de la muestra, constituyó una contribución importante al desarrollo de los métodos semiempíricos. De acuerdo con el método de transferencia de eficiencias, la ε_{FEP} en la muestra de interés se puede obtener a partir de la ε_{FEP} de la muestra de referencia determinada experimentalmente, y de las eficiencias absolutas totales calculadas (para las muestras de interés y de referencia). En el trabajo de [Sima, 2012] se destaca que los métodos analíticos y semiempíricos son rápidos, pero están basados necesariamente en modelos simplificados del sistema muestra-detector, en los cuales

se realizan aproximaciones (e incluso omisiones) de algunas de sus características, contribuyendo esto a las inexactitudes de los resultados obtenidos.

En el campo de la espectrometría gamma, el método Monte Carlo posibilita la simulación del sistema de medida con un elevado grado de detalle, siendo posible alcanzar una exactitud que supera a la lograda con los métodos semiempíricos [Lépy, et. al., 2000], [Lépy et. al., 2001]. En este sentido, la simulación Monte Carlo es más realista, más flexible y tiene una aplicación más general que los métodos analíticos y semiempíricos. La simulación Monte Carlo ha demostrado que puede ser aplicada con éxito para el desarrollo de calibraciones en eficiencia y para la determinación de los factores de corrección asociados a estas. Particularmente, el método de Monte Carlo es muy útil para efectuar calibraciones en eficiencia complejas como las vinculadas a diferentes tipos de aplicaciones de la espectrometría gamma, entre las que se encuentran las medidas que se realizan con un alto nivel de “sumas por coincidencia”, así como las desarrolladas en muestras de gran volumen, y muestras no homogéneas.

Básicamente, el cálculo de la eficiencia absoluta en el pico de absorción total empleando la simulación Monte Carlo, puede ser desarrollado de dos formas diferentes. En la primera de ellas, la ε_{FEP} se obtiene en base a la simulación de la historia de los fotones que depositan toda su energía en el volumen activo del detector a través de los diferentes mecanismos de interacción (efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y formación de pares) que tienen lugar en el propio detector y en los materiales que lo rodean. Otra forma de calcular la ε_{FEP} es mediante la simulación del espectro de deposición de energía de los fotones. En este caso se aplica la simulación Monte Carlo denominada análoga o imitativa [Sima, 2012], lo que conlleva un tiempo de simulación mucho mayor. Este tipo de simulación constituye una réplica de todos los procesos físicos de interacción de los fotones que ocurren en la realidad. Si un espectro real es simulado, incluyendo la resolución energética, dicho espectro puede ser evaluado empleando el mismo programa usado para analizar los espectros experimentales, obteniéndose de esa forma las áreas de los fotopicos requeridas para el cálculo de la ε_{FEP} . El cálculo de la eficiencia, basado en la simulación de espectros, es desarrollado (en la mayoría de los casos) utilizando códigos generales adaptados para ese fin.

Para obtener curvas de calibración en eficiencia por simulación numérica, que se ajusten a las experimentales, es necesario contar con las dimensiones precisas del detector utilizado. Esto no siempre es posible tomando en consideración la información proporcionada por el fabricante, siendo necesario realizar una caracterización

detallada o ajuste fino del detector utilizando otros métodos experimentales como el empleo de fuentes puntuales [Jurado Vargas y Guerra, 2006], o a través de la realización de una radiografía que revele su estructura interna. La Figura 3.4 muestra ejemplos de radiografías realizadas a dos detectores con características diferentes. Algunos autores [Novotny y To, 2015] han propuesto una metodología para la calibración en eficiencias de detectores HPGe usando MCNP con un modelo de detector ajustado a través de una optimización realizada aplicando medidas experimentales y el método de mínimos cuadrados no lineal.

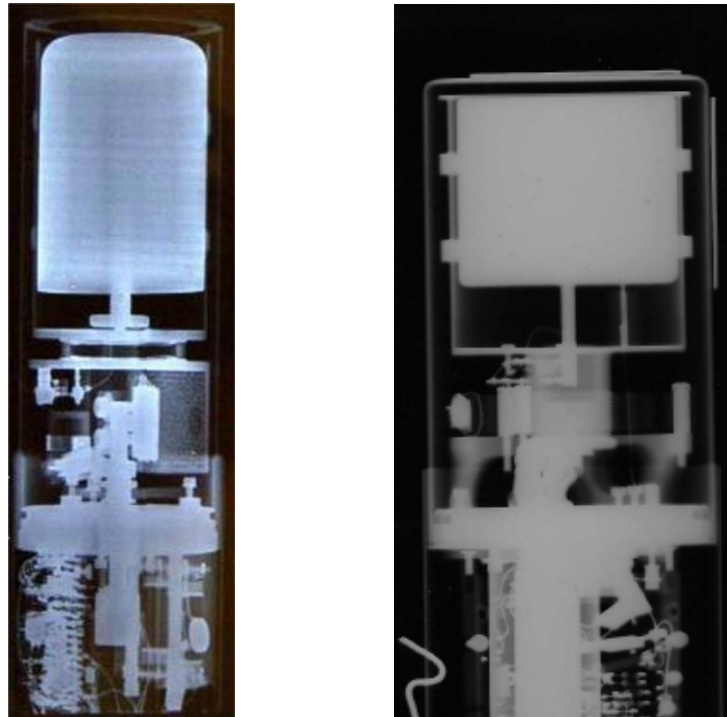


Figura 3.4: Ejemplos de radiografías realizadas a dos detectores de germanio hiperpuro (HPGe) con características diferentes [Cornejo Díaz, 2009; Dryak y Kova, 2006].

La influencia en la ε_{FEP} de la variación de los parámetros del detector ha sido analizada entre otros autores por [Vargas et al. 2002], estudiando el efecto del diámetro y altura del cristal de Ge, del tamaño del “core interno” y de la distancia entre el cristal de Ge y la ventana de entrada al detector. Por otra parte, en dos ejercicios de intercomparación desarrollados por Lépy et al. [2001] y Vidmar et al. [2008], se analizó la influencia del modelo de simulación empleado y de algunas características del

detector en la eficiencia. En la primera de estas intercomparaciones, los participantes recibieron valores experimentales de eficiencia (para geometría de fuente puntual) y las principales características del detector, siendo requerido el cálculo de la eficiencia para otras geometrías de medida. A los participantes les fue permitido optimizar los parámetros no conocidos del detector, con el objetivo de hacer coincidir la eficiencia simulada con la experimental. Esto trajo como consecuencia que diferentes participantes emplearan diferentes datos de entrada. En este sentido, una de las conclusiones de este ejercicio fue que una parte de las discrepancias observadas entre los resultados obtenidos por los diferentes códigos, puede ser atribuida al empleo de diferentes parámetros del detector (datos de entrada) por parte de los participantes.

En la segunda intercomparación, los códigos Monte Carlo más empleados en espectrometría gamma fueron comparados unos con otros, con el objetivo de analizar las diferencias entre ellos en el cálculo de eficiencias absolutas (ϵ_{FEP} y total). En este caso los participantes fueron provistos con todas las características de la geometría de medida, sin hacerse ninguna referencia a datos experimentales. Los resultados de este ejercicio indicaron la existencia de importantes desviaciones en las eficiencias obtenidas con los diferentes códigos, llegando a ser en algunos casos del 10% para bajas energías (45 keV). En esta intercomparación se analizó que uno de los aspectos que contribuye a la diferencia entre los valores de eficiencia calculados, usando distintos códigos Monte Carlo, es el empleo de diferentes datos para las secciones eficaces utilizadas.

Los factores de corrección a la eficiencia por autoabsorción, y los factores de transferencia de eficiencias, pueden ser calculados con mucha mayor precisión que las propias eficiencias. Estos factores tienen la característica de ser robustos debido a que los mismos prácticamente no se ven afectados por las incertidumbres asociadas a los parámetros del detector y al modelo definido para el desarrollo de las simulaciones. Al ser estos factores relativos, y ser determinados a partir del cociente de eficiencias (de la muestra y del patrón) calculadas en las mismas condiciones, las incertidumbres referidas anteriormente se cancelan y no influyen en su cálculo [Jurado Vargas et al., 2003]. Existen trabajos previos sobre la utilización de la simulación Monte Carlo para efectuar correcciones a la eficiencia por autoabsorción en espectrometría gamma [Nakamura y Suzuki, 1983; Sima, 1990; Sánchez et al., 1991; Overwater et al., 1993; Sima y Dovlete, 1997]. Sin embargo, como fue comentado anteriormente, pocos estudios han sido desarrollados para realizar una estimación de las desviaciones que pueden presentar los valores de concentración de actividad (en muestras de suelos y

sedimentos) al detectar radionucleidos de baja energía (≤ 60 keV) cuando la composición química elemental de la muestra varía. De modo semejante, y como consecuencia, no se ha evaluado el impacto que tienen dichas correcciones por autoabsorción en la datación de sedimentos, cuando las edades se determinan particularmente empleando los radionucleidos ^{210}Pb y ^{241}Am , ambos con bajas energías de emisión.

En relación a la calibración en eficiencias en la medida de radionucleidos “in situ”, algunos autores han empleado métodos semiempíricos [ICRU, 1994; Boson et al., 2006] y códigos generales de simulación Monte Carlo [Gering et al., 1998; Likar et al., 2004; Boson et al., 2009], asumiendo determinada distribución de los radionucleidos en el terreno. En este sentido, la simulación Monte Carlo constituye una opción más efectiva y menos costosa, permitiendo realizar calibraciones para una gran variedad de distribuciones de radionucleidos y para diferentes geometrías de medida. No obstante, según nuestro conocimiento actual, aún no se ha probado la aplicabilidad de códigos específicos para este fin. Este tipo de códigos más específicos, aplicados a la calibración de los sistemas de detección gamma “in situ”, podrían ofrecer notables ventajas, tales como un menor tiempo de simulación, con precisiones semejantes a las obtenidas empleando códigos generales, y un uso más fácil y amigable para los usuarios.

3.3. Descripción del código DETEFF

3.3.1 Introducción

DETEFF [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008] es un código Monte Carlo que emplea la simulación estadística de los procesos físicos que tienen lugar en el sistema fuente - detector, para el cálculo de eficiencias de detección en sistemas de espectrometría gamma. Este programa puede ser aplicado por los laboratorios, dedicados a este tipo de medidas, para realizar calibraciones en eficiencia en los casos en que no se disponga de fuentes patrones con las mismas características de las muestras a medir. Esta situación se puede presentar con mucha frecuencia en los laboratorios de vigilancia radiológica ambiental, y en aquellos encargados de los análisis en situaciones de emergencia nuclear o radiológica. DETEFF ha transitado con éxito por

diferentes etapas de verificación y validación, demostrando ser un programa fiable, amigable y rápido para la calibración en eficiencias en espectrometría gamma.

DETEFF ha sido el programa utilizado para el desarrollo de las investigaciones realizadas en el marco de este trabajo de tesis, relacionadas con el estudio de diferentes factores, asociados a las calibraciones en eficiencia, vinculados a la medida de distintos tipos de matrices ambientales, y también en aplicaciones “in situ”. Seguidamente se describen las principales características de este código.

3.3.2 Características de DETEFF

DETEFF fue escrito en Borland Delphi 3, y corre sobre la plataforma Windows. Este programa fue específicamente diseñado para la determinación de la eficiencia en el pico de absorción total en diferentes tipos de detectores: centelleadores (NaI y CsI) y semiconductores (Ge(Li), HPGe y Si(Li)), tomando en consideración los parámetros del sistema fuente – detector, y los procesos físicos relevantes que tienen lugar en el mismo.

Las geometrías de las muestras incluidas en este código son puntuales, cilíndricas, prismas, rectangulares, planas y de tipo Marinelli. Este programa ofrece la posibilidad de considerar, además, la atenuación de los fotones causada por la presencia de algún material adicional (denominado filtro) ubicado entre la muestra y el detector. El filtro puede ser de un solo material o compuesto de varias láminas de diferentes materiales. En las simulaciones con DETEFF, se considera que las muestras están axialmente centradas con relación al detector, quedando definida la posición de la muestra por la distancia muestra – detector. La incertidumbre relativa de la eficiencia simulada puede ser ajustada por el usuario, siendo esta inversamente proporcional a la raíz cuadrada del número de fotones generados.

DETEFF está estructurado en siete módulos principales, con tareas bien definidas en cada uno de ellos. La Figura 3.5 muestra los módulos de este código, y la interrelación entre ellos.

En DETEFF se han aplicado técnicas de reducción de varianzas que han permitido obtener figuras de mérito superiores (dadas por la convergencia de las simulaciones para una incertidumbre relativa determinada) a las obtenidas con otros códigos de uso general, contribuyendo esto a que los tiempos de simulación de DETEFF sean mucho

menores (del orden de las fracciones a unidades de minuto) que los de los códigos generales.

Este programa ha transitado por diferentes versiones, incorporándose mejoras en cada una de ellas [Cornejo Díaz, 2009]. En la última versión de este código, se mejoró la relación entre el tiempo de simulación y la exactitud de los valores de eficiencia obtenidos. En este sentido, se implementaron procedimientos rápidos y sencillos para la generación y seguimiento de la radiación de frenado [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2010], considerando el escape de electrones a través de la superficie del cristal, sin llevar a cabo una simulación detallada de las partículas cargadas secundarias. Este hecho contribuyó a la mejora de la exactitud de las simulaciones en el intervalo energético de 1500 – 2000 keV. Así mismo, se incorporó un módulo para el seguimiento de la radiación característica del Ge, con el objetivo de mejorar la exactitud de las simulaciones para energías inferiores a 100 keV y extender el límite inferior a 10 keV, siendo posible utilizar el código en el rango energético 10-2000 keV. De igual modo, se consideró el redondeamiento de las esquinas de los detectores semiconductores [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2010], y se sustituyó el generador congruente lineal de números pseudoaleatorios del paquete de Borland – Delphi por el generador más eficaz “Mersenne Twister” [Cornejo Díaz et al., 2010].

DETEFF ha sido ampliamente verificado y validado para las geometrías de medida comúnmente usadas en los laboratorios analíticos dedicados a la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma [Jurado Vargas, et al., 2002; Jurado Vargas, et al., 2003; Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008; Cornejo Díaz, 2009; Cornejo Díaz et al., 2010; Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2010; Vidmar et al., 2010]. Particularmente, la validación de este programa se ha apoyado esencialmente en la comparación de sus resultados con los obtenidos experimentalmente. Por ser un programa fiable, de fácil manejo, y con una relación “exactitud – tiempo de ejecución” aceptable para su uso rutinario, numerosas instituciones internacionales han solicitado este código para su empleo como herramienta en las determinaciones que realizan por espectrometría gamma [Cornejo Díaz, 2009].

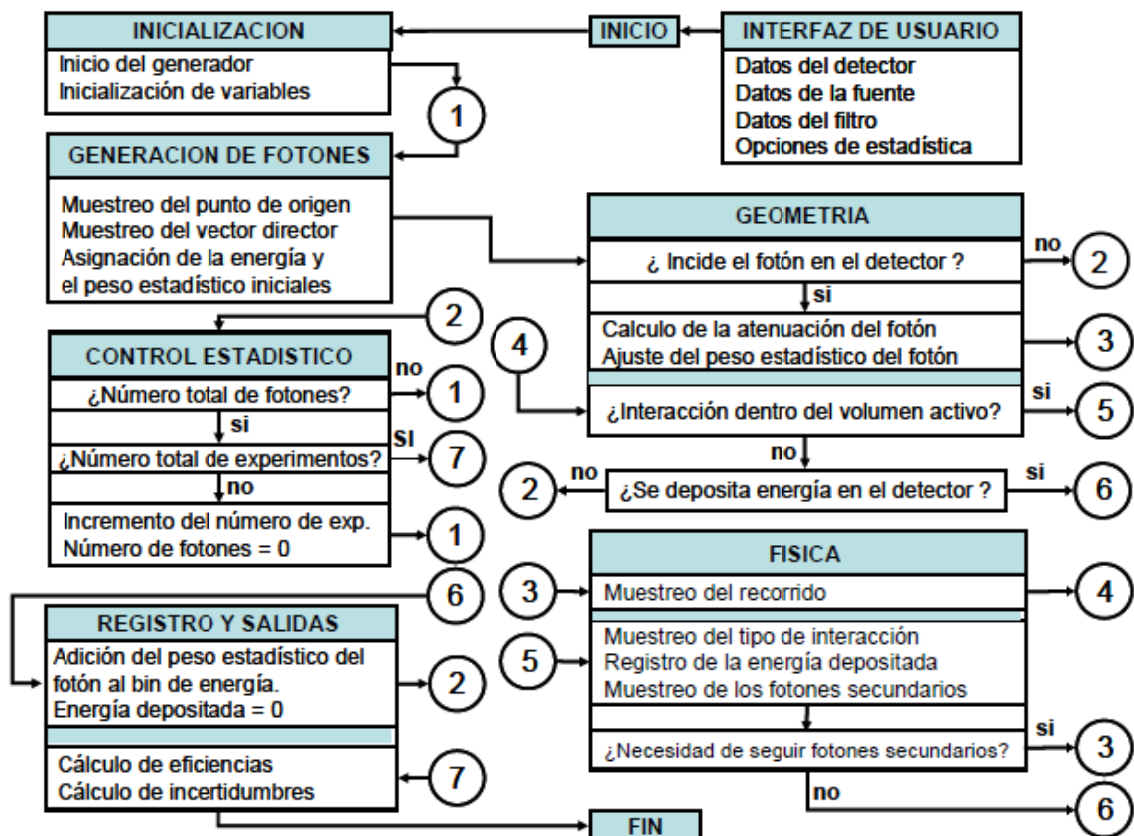


Figura 3.5: Estructura del código DETEFF, mostrando la interrelación entre los principales módulos del programa [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008].

3.4 Propuestas de mejora

La determinación de la actividad de emisores gamma en diferentes tipos de matrices y escenarios tiene una gran importancia en la actualidad, y muy especialmente para fines de protección radiológica. La espectrometría de radiación gamma es una de las técnicas analíticas más empleadas a nivel internacional para la estimación de los valores de actividad en muestras ambientales, alimentos y directamente en el terreno (determinaciones “in situ”). La contribución a la inocuidad alimentaria desde el punto de vista radiológico, el desarrollo de estudios medioambientales, y la caracterización radiológica de diferentes escenarios a partir de la detección de la radiación gamma en muestras, o medida “in situ”, son algunas de las principales aplicaciones de esta técnica.

Como es bien conocido, tanto la fiabilidad de los resultados analíticos como su trazabilidad, dependen en gran medida de la exactitud de la calibración en eficiencia utilizada para la estimación de la actividad de los diversos radionucleidos que contiene la muestra. Según ya ha sido mencionado, es usual en un laboratorio de espectrometría gamma la detección de muestras con una amplia variedad de geometrías, densidades y composiciones químicas elementales, siendo muy difícil para dicho laboratorio contar con patrones de calibración experimentales que se adapten a las características de cada una de las muestras objeto de estudio. Como consecuencia, la aplicación errónea o imprecisa de determinadas correcciones (como por ejemplo la correspondiente a la autoabsorción), conduce a resultados con discrepancias importantes respecto a los valores de actividad reales.

En cuanto a las determinaciones “in situ”, en ocasiones se hace necesario disponer de calibraciones en eficiencia de un modo rápido, como en el caso de las situaciones de emergencia. Sin embargo, la calibración experimental para esta aplicación de la espectrometría gamma, es un proceso largo y complejo, que implica el desarrollo de muchas medidas experimentales, y que requiere el empleo de varias fuentes puntuales certificadas con una actividad determinada. Por otra parte, estas fuentes deben contener diversos radionucleidos que emitan fotones gamma en un amplio rango energético, y además necesitan ser renovadas con cierta periodicidad, debido al corto período de semidesintegración de muchos de estos nucleidos.

Debido a los inconvenientes ya analizados asociados a las calibraciones experimentales, en los últimos años ha ganado popularidad el uso de la simulación Monte Carlo para este objetivo. De hecho, la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA) ha potenciado en el marco de Proyectos de Investigación Coordinados [IAEA CRP 1471, 2008] el uso de la simulación Monte Carlo para el desarrollo de calibraciones en eficiencia asociadas a la determinación de radionucleidos en diferentes tipos de muestras por espectrometría gamma.

Los estudios presentados en este trabajo de tesis constituyen una contribución a la mejora en diversos aspectos que forman parte de la problemática actual que señalan los expertos de la comunidad internacional en espectrometría gamma, particularmente los asociados a la determinación de radionucleidos mediante esta técnica analítica. Las propuestas de mejoras incluidas, están basadas en una serie de trabajos vinculados con el estudio de diferentes factores asociados a las calibraciones en eficiencia para diferentes tipos de matrices y geometrías de medida, y también en aplicaciones “in situ”. Los trabajos que se presentan se han clasificado en tres grupos.

Esta clasificación responde principalmente a criterios prácticos a la hora de relacionar entre sí los trabajos realizados, con el objetivo de dar coherencia e integridad a la tesis.

El primer grupo, titulado “Correcciones por autoabsorción en la determinación de radionucleidos de baja energía”, se presenta en el Capítulo 4. En este capítulo se incluyen los estudios realizados sobre la influencia de la composición química elemental en la determinación de radionucleidos de baja energía en muestras de suelo y sedimento. Las publicaciones obtenidas de estos estudios son:

- Artículo N° 1. “The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples”.
- Artículo N° 2. “Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating”.

El segundo grupo, presentado en el Capítulo 5, se denomina “Transferencia de eficiencias entre diferentes geometrías de medida”, y en él se incluye el siguiente artículo:

- Artículo N° 3. “Testing efficiency transfer codes for equivalence”

En este trabajo se realizó un estudio de la equivalencia de diferentes códigos de simulación Monte Carlo (de usos general y específico) para el cálculo de factores de transferencia de eficiencias para un conjunto de parámetros bien definidos de la muestra y el detector, y para un grupo de energías típicas de la aplicación de la espectrometría gamma a medidas de radiactividad ambiental.

Por último, en el tercer grupo incluido en el Capítulo 6, y que lleva por título “Calibración en eficiencia para la determinación de radionucleidos depositados en el terreno (“in situ”)”, se presenta el artículo que se menciona a continuación, relacionado con el estudio de la aplicabilidad del código específico de simulación Monte Carlo DETEFF para la calibración en eficiencia de detectores utilizados para la determinación de deposición de actividad en el terreno por espectrometría gamma “in situ”.

- Artículo N° 4. “Application of the Monte Carlo code DETEFF to efficiency calibrations for in-situ gamma-ray spectrometry”

Capítulo 4

Correcciones por autoabsorción en la determinación de radionucleidos de baja energía

4.1 Introducción

La actividad de las muestras medidas por espectrometría gamma se deriva de la curva de eficiencia (en el pico de absorción total) determinada con un patrón de calibración. Cuando se miden muestras volumétricas colocadas directamente sobre el detector, como suele ser el caso en la determinación de radionucleidos en muestras ambientales, los mejores resultados se obtienen cuando la muestra y el patrón de calibración poseen características similares en cuanto a geometría, composición química elemental y densidad. Reproducir la geometría de medida de la muestra generalmente no constituye un problema. Sin embargo, en la práctica, las diferentes muestras de interés cubren un amplio rango de densidades, y presentan composiciones químicas muy diferentes, resultando muy difícil contar con un patrón de calibración que se adapte a las características de cada muestra. Cuando eso sucede, se hace necesario efectuar correcciones por autoabsorción a la eficiencia, que tomen en consideración las diferencias existentes entre las matrices de la muestra medida y del patrón de calibración. La autoabsorción está presente incluso cuando se miden muestras de pequeño volumen en un detector HPGe de pozo [San Miguel et al., 2002], aunque obviamente el factor de corrección por autoabsorción disminuye a medida que es menor el recorrido de los fotones en la muestra.

El factor de corrección por autoabsorción ($F_a(E)$) se define, de forma general, como la relación entre las eficiencias en el pico de absorción total para la muestra ($\varepsilon_{FEP_m}(E, \mu_m)$) y para el patrón ($\varepsilon_{FEP_p}(E, \mu_p)$):

$$F_a(E) = \frac{\varepsilon_{FEP_p}(E, \mu_p)}{\varepsilon_{FEP_m}(E, \mu_m)} \quad (4-1),$$

donde μ_p y μ_m son los coeficientes de atenuación lineal del patrón y de la muestra, respectivamente.

Las diferencias en cuanto a composición química elemental, existentes entre las muestras ambientales, no constituye un problema importante para energías de los fotones por encima de aproximadamente 80 keV. En este sentido, un trabajo previo [Jurado Vargas et al., 2002] planteó que en este rango energético, y para materiales con número atómico $Z < 20$, los coeficientes de atenuación másicos son prácticamente independientes del número atómico efectivo Z_{eff} del material. Las matrices ambientales ($Z_{\text{eff}} < 15$) cumplen con este requerimiento, pudiéndose asumir que las mismas presentan coeficientes de atenuación másicos similares a los del agua para ese rango de energías de los fotones (> 80 keV). De este modo, para la mayoría de las muestras ambientales medidas en estas condiciones, las correcciones por autoabsorción no dependen significativamente de la composición química elemental de la matriz, sino de su densidad.

Sin embargo, para energías inferiores a aproximadamente 60 keV, las correcciones por autoabsorción tienen una marcada dependencia de la composición química elemental de las matrices ambientales. Como fue expresado anteriormente, para estas energías los coeficientes de atenuación másicos tienen valores muy diferentes para diversos elementos, lo que provoca errores y grandes desviaciones en los valores de actividad de la muestra, al emplear un patrón de calibración con una composición química elemental diferente.

Los factores de corrección por autoabsorción pueden ser determinados de forma experimental aplicando el método de Cutshall [Cutshall et al., 1983], basado en el desarrollo de medidas de transmisión. Sin embargo, como se mencionó previamente, este método presenta algunos inconvenientes asociados principalmente a la falta de disponibilidad en algunos laboratorios de fuentes puntuales de elevada actividad y diferentes energías de los fotones, a la necesidad de realizar medidas en duplicado (con y sin la muestra en el interior del contenedor), y a la exactitud del factor de corrección obtenido [Jodlovski et al., 2014]. En este sentido, los cálculos de los factores de corrección por autoabsorción empleando simulación Monte Carlo son más rápidos, universales y precisos, pero requieren conocer la composición química elemental de la matriz de la muestra. Una ventaja adicional asociada al uso de la simulación Monte Carlo para este fin es que, al ser calculado el factor de autoabsorción como un cociente de eficiencias determinadas en las mismas condiciones, prácticamente no influyen las inexactitudes en el modelo del detector

usado, pudiéndose emplear las dimensiones nominales del detector proporcionadas por el fabricante.

A lo largo de la historia de aplicación de la espectrometría gamma a la determinación de radionucleidos en muestras ambientales, algunos autores [Joshi, 1987; Galloway, 1991; Kitto, 1991; Venturini y Vanin, 1993; El-Daoushy y García-Tenorio, 1995; Bolívar et al., 1996; Kunzendorf, 1996; Hussain et al., 1996; Ramos-Lerate et al., 1998; Jurado Vargas et al., 2002; Jodlowski, 2006] han estudiado el problema de la autoabsorción en este tipo de muestras para diferentes geometrías de medida, y determinadas energías de los fotones. A pesar de ser un tema ampliamente tratado con anterioridad, la comunidad internacional dedicada a las medidas por espectrometría gamma reconoce que las correcciones por autoabsorción continúan siendo tema de interés aún en nuestros días [Sima, 2012]. Este hecho ha quedado evidenciado en ejercicios de intercomparación y ensayos de aptitud organizados por la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA), en los cuales uno de los mayores problemas en las determinaciones analíticas por espectrometría gamma ha estado asociado a la medida de radionucleidos de baja energía, debido a la falta de aplicación (o aplicación incorrecta) de las correcciones por autoabsorción.

En general son escasos los estudios desarrollados con el objetivo de evaluar las desviaciones que se pueden presentar al determinar los valores de concentración de actividad, en muestras de suelo y sedimento, al detectar radionucleidos de baja energía (≤ 60 keV) cuando la composición química elemental de la muestra varía. De igual modo, y como consecuencia de esto, no se ha estudiado el impacto que tienen las correcciones por autoabsorción en la datación de sedimentos, cuando las edades se determinan en base a las medidas de los radionucleidos ^{210}Pb y ^{241}Am , ambos con bajas energías de emisión. Los dos trabajos presentados en este capítulo investigan esta problemática, aportando elementos que contribuyen al estudio del fenómeno de la autoabsorción en la determinación de radionucleidos en muestras ambientales por espectrometría gamma. En estos trabajos se analiza, además, cómo influye la variación de la composición química elemental en los resultados obtenidos por diferentes laboratorios analíticos en ensayos de aptitud hipotéticos con matrices ambientales de suelo y sedimentos.

El primer trabajo investigó el efecto de la composición química elemental en las correcciones por autoabsorción asociadas a la determinación de actividad de radionucleidos que emiten fotones de baja energía (< 60 keV) en muestras de suelo. En este sentido, se desarrolló un ensayo de aptitud hipotético en el cual diferentes

laboratorios analíticos analizaron una muestra de suelo considerando la misma densidad, pero diferentes composiciones químicas (cada laboratorio usó una composición química diferente). Los radionucleidos considerados en este estudio fueron el ^{109}Cd (24.9 keV), ^{210}Pb (46.5 keV) y ^{241}Am (59.5 keV), medidos en cinco tipos diferentes de suelo [ICRU, 1994]. Uno de los tipos de suelo fue tomado como referencia, evaluándose respecto a este las desviaciones en los valores de actividad obtenidos por los diferentes laboratorios. Las correcciones por autoabsorción fueron incluidas en las eficiencias en el pico de absorción total calculadas empleando simulación Monte Carlo con el código DETEFF [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008].

Los resultados de esta investigación, publicados en la revista "*Applied Radiation and Isotopes*", y presentados en diferentes eventos científicos (Ver puntos B1 y B2 del Apéndice B), demostraron que pueden obtenerse desviaciones relativas importantes (del orden de 70%) en los valores de actividad determinados, por el simple hecho de considerar una composición química elemental diferente a la hora de efectuar las correcciones por autoabsorción. De igual modo, en los resultados del ensayo de aptitud hipotético realizado, se corroboró que la incorrecta aplicación de las correcciones por autoabsorción puede conducir a que un número significativo de los valores de actividad aportados por los laboratorios analíticos (50% en este estudio) sean "no aceptables". Por lo anteriormente expuesto, esta investigación concluyó que el conocimiento de la composición química elemental de la muestra es esencial para el desarrollo de las correcciones por autoabsorción, para los laboratorios que emplean la simulación Monte Carlo para tal fin.

El otro trabajo incluido en este capítulo estudió principalmente la influencia de las correcciones por autoabsorción en la determinación de actividades específicas de ^{210}Pb (46.5 keV) y ^{241}Am (59.5 keV), usadas para la datación de sedimentos. En este sentido, se investigó el impacto que tendrían las desviaciones relativas en los valores de concentración de actividad de ^{210}Pb (46.5 keV) en la estimación de la edad de los sedimentos, determinada aplicando el modelo de datación de tasa de suministro constante (CRS) de ^{210}Pb "no soportado" al sedimento [Appleby y Oldfield, 1978]. Para el desarrollo de esta investigación, se consideraron las composiciones químicas asociadas a sedimentos de distintas regiones geográficas, y se usaron los modelos de 6 detectores HPGe diferentes (3 tipo n, y 3 tipo p) con el objetivo de estudiar la dependencia de las desviaciones en los valores de actividad específica respecto a las características de los detectores. Los valores de eficiencia en el pico de absorción total fueron obtenidos empleando el código DETEFF [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008]. En este trabajo también se evaluó la exactitud de los resultados de diferentes

laboratorios analíticos, en un ensayo de aptitud hipotético, al analizar una muestra de sedimento con la misma densidad, pero con diferentes composiciones químicas.

Los resultados de este estudio se publicaron en la revista "*Radiation Physics and Chemistry*", y demostraron que el hecho de considerar diferentes composiciones químicas en la muestra de sedimento conduce a importantes desviaciones en los valores de concentración de actividad de ^{210}Pb y ^{241}Am usados en la datación de sedimentos. Cuando los inventarios de esos radionucleidos son empleados para estudios geocronológicos, esas desviaciones en los valores de concentración de actividad tienen un impacto muy grande en la estimación de la edad de los sedimentos. De hecho, en esta investigación se apreció que si los inventarios de ^{210}Pb no soportado hubiesen sido determinados con las desviaciones relativas reportadas en este trabajo (con un valor máximo de 89.5%), se habrían obtenido importantes desviaciones en la edad de los sedimentos (siendo la mayor de 40.6 años). En el ensayo de aptitud hipotético se puso también de manifiesto que la mayoría de los valores de concentración de actividad de ^{210}Pb y ^{241}Am obtenidos por los laboratorios analíticos, para diferentes composiciones químicas de la muestra de sedimento, resultaron "no aceptables" para las determinaciones realizadas con cualquiera de los detectores empleados.

4.2 Publicación No. 1

“The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples”.

4.2.1 Presentación de la publicación

Título: The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples.

Autores: 1. Jorge A. Carrazana González^a

2. Néstor Cornejo Díaz^a

3. Miguel Jurado Vargas^b

4. Eduardo Capote Ferrera^a

Filiación: ^a Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR), La Habana, Cuba.

^b Departamento de Física, Universidad de Extremadura, Badajoz, España.

Revista: Applied Radiation and Isotopes.

Volumen: 68. Página inicial: 360 Página final: 363

Año de publicación: 2010

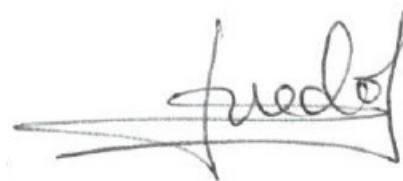
4.2.2 Informe

El artículo “The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples” fue publicado en la revista *Applied Radiation and Isotopes* en el año 2010. Ese año el factor de impacto de esta revista fue de 0,999, correspondiendo al puesto 15 (de un total de 35) dentro de la categoría “Nuclear Science and Technology”.

La participación del doctorando en este artículo ha sido muy importante para el estudio del efecto de la composición química elemental en las correcciones por autoabsorción asociadas a la determinación de actividad de radionucleidos que emiten fotones de baja energía (< 60 keV) en muestras de suelo. En este sentido, el doctorando diseñó el ensayo de aptitud hipotético, consistente en la medida (por parte de diferentes laboratorios analíticos) de una muestra de suelo con una misma densidad, pero con diferentes composiciones químicas, desarrollado para investigar las desviaciones que se pueden presentar en los valores de actividad por la incorrecta aplicación de este tipo de corrección. Participó, de igual forma, en la evaluación de los resultados de ese ejercicio, demostrando que pueden obtenerse desviaciones relativas importantes (del orden de 70%) en los valores de actividad determinados, por el simple hecho de considerar una composición química elemental diferente a la hora de efectuar las correcciones por autoabsorción.

Todas las tareas desarrolladas por el doctorando han sido desarrolladas bajo mi dirección y supervisión, pudiendo dar fe de que todo lo aquí expuesto es verídico.

Fdo. El Director de la Tesis



Dr. D. Miguel Jurado Vargas

Yo, Eduardo Adolfo Capote Ferrera, coautor de la publicación titulada “The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples” hago constar mediante este escrito que colaboré en dicha publicación, formando parte la misma de la Tesis Doctoral de Jorge Antonio Carrazana González. Del mismo modo, declaro que la referida publicación no va a ser utilizada por mí en mi Tesis Doctoral.



Eduardo Adolfo Capote Ferrera

4.2.3 Copia de la publicación



The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples

J. Carrazana González^{a,*}, N. Cornejo Díaz^a, M. Jurado Vargas^b, E. Capote Ferrera^a

^a Centre for Radiological Protection and Hygiene, Havana, Cuba

^b Physics Department, University of Extremadura, Badajoz, Spain

ARTICLE INFO

Article history:

Received 25 May 2009

Received in revised form

16 September 2009

Accepted 9 October 2009

Keywords:

Gamma-ray spectrometry

Efficiency calibration

HpGe detectors

Monte Carlo method

ABSTRACT

To study the influence of the source's chemical composition on the self-attenuation corrections during the activity quantification of low-energy gamma-ray emitters (< 60 keV) in soil samples, we conducted a Monte Carlo-based hypothetical proficiency test in which different analytical laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but a different chemical composition. The bias in the activity values was between 4% and 70%, with more than 50% of these results being unacceptable. Our work shows that collecting the detailed chemical composition of the samples is an essential issue to be considered by analytical laboratories that use the Monte Carlo method for the calculation of self-attenuation corrections.

© 2009 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

To quantify low energy radionuclides in environmental samples by gamma-ray spectrometry it is necessary to estimate the relevant self-attenuation corrections. There are two main possibilities for performing these estimations: using an experimental design based on collimated point sources, or simulating the absolute full energy peak efficiency by Monte Carlo simulation. In the latter case, the accuracy is strongly dependent on adequate knowledge of the elementary chemical composition of the source matrix.

In intercomparison exercises and proficiency tests, information on the elementary chemical composition of samples is often not provided. As a consequence, participating laboratories using Monte Carlo codes for efficiency calibration and considering different elementary chemical compositions of samples might show different performances, particularly for energies below 60 keV. In this sense, it is known that for this energy range the assumption of sample mass attenuation coefficients similar to those of water (for self-absorption corrections in environmental samples) is not correct. A previous work (Jurado Vargas et al., 2002) found that, for photon energies greater than about 80 keV and materials with $Z < 20$, the mass attenuation coefficients are almost independent of the effective atomic number Z_{eff} of the material. Below about 60 keV, however, the photon attenuation

correction for most environmental samples depends greatly on their elementary chemical composition.

To study the influence of the soil's chemical composition on the estimation of activity concentrations of low-energy radionuclides by gamma-ray spectrometry, we carried out a theoretical exercise evaluating the performance in a hypothetical proficiency test (or intercomparison exercise) in which four different analytical laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but a different chemical composition during Monte Carlo calculation of the self-attenuation corrections.

2. Hypothetical proficiency test

The task for each laboratory was to estimate the activity concentration of ^{109}Cd (24.9 keV), ^{210}Pb (46.5 keV), and ^{241}Am (59.5 keV) in a soil sample. Five different compositions of soil, published by the International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU) (ICRU, 1994), were considered (see Table 1). A given chemical composition was assumed for the reference soil, whereas other compositions from soil 1 to soil 4 were assigned to each of the four laboratories for Monte Carlo calculation of the absolute full energy peak (f.e.p.) efficiency corresponding to each energy value. It should be stressed that the corrections for self-attenuation in the soil matrix are included in the calculated f.e.p. efficiency values. It was assumed that the only difference between laboratories was the soil composition used for the aforementioned correction.

The performance evaluation of the participant laboratories was carried out following the approach used by the International

* Corresponding author. Fax: +537 203 0165.

E-mail address: carrazana@cphr.edu.cu (J. Carrazana González).

Table 1
Elementary chemical composition (in % of mass) of soil types used for the test.

Element	Ref. soil	Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
H	2.2	2.2	1.1	10.0	–
C	–	–	1.2	11.4	–
O	57.5	58.2	55.8	78.0	45.2
N	–	–	–	0.4	–
Mg	–	–	–	–	2.5
Al	8.5	10.6	7.2	–	8.3
Si	26.2	26.2	31.6	–	25.0
S	–	–	–	0.2	–
K	–	–	–	–	1.8
Ca	–	–	–	–	4.1
Ti	–	–	–	–	0.7
Mn	–	–	–	–	0.2
Fe	5.6	2.8	3.1	–	12.2

Atomic Energy Agency (IAEA) in recent intercomparison exercises and proficiency tests (IAEA, 2007; Shkhashiro et al., 2007).

For the trueness evaluation, the results are considered “Acceptable” if:

$$A_1 \leq A_2 \quad (1)$$

where

$$A_1 = |V_{\text{ref}} - V_{\text{lab}}| \quad (2)$$

and

$$A_2 = 2.58 \cdot \sqrt{U_{\text{ref}}^2 + U_{\text{lab}}^2} \quad (3)$$

with V_{ref} being the reference value for activity concentration, V_{lab} the activity concentration result reported by the participant laboratory, and U_{ref} and U_{lab} the standard combined uncertainties associated with V_{ref} and V_{lab} , respectively.

For the precision evaluation, the estimator P needs to be calculated according to the formula:

$$P = \sqrt{\frac{U_{\text{ref}}^2}{V_{\text{ref}}^2} + \frac{U_{\text{lab}}^2}{V_{\text{lab}}^2}} \times 100\% \quad (4)$$

The participant’s results are considered “Acceptable” for precision if the following condition is satisfied:

$$P \leq \text{LAP} \quad (5)$$

where LAP denotes the limit of acceptable precision, which is set for each analyte as a function of its concentration level and the difficulty of determination.

A result must obtain an “Acceptable” score in both criteria (trueness and precision) to be assigned the final score “Acceptable”. In cases where either precision or trueness is “Not Acceptable”, the relative deviation from the reference value ($Rd = A_1/V_{\text{ref}}$) must be compared with the maximum acceptable bias (MAB). When $Rd \leq \text{MAB}$ the result is considered as a “Warning”, otherwise when $Rd > \text{MAB}$ the result is evaluated as “Not Acceptable”.

In the framework of this theoretical exercise, the relative standard uncertainties $U_{\text{ref}}/V_{\text{ref}}$ and $U_{\text{lab}}/V_{\text{lab}}$ were considered as those established for the reference values during the ALMERA proficiency test (IAEA, 2007) for the determination of low energy radionuclides in soil samples, being 5% for ^{109}Cd and ^{210}Pb , and 2.5% for ^{241}Am . The LAP and MAB values established in IAEA (2007) were also adopted, and are listed in Table 2. One notes that the values of P calculated with Eq. (4) are lower than the corresponding LAP values, i.e., the test of precision is “Acceptable” for all laboratories and our exercise hence focuses on the test of trueness.

Table 2
Acceptable limits for LAP and MAB corresponding to the soil sample.

Radionuclide	LAP (%)	MAB
^{109}Cd	25	0.25
^{210}Pb	30	0.30
^{241}Am	25	0.25

Table 3
Characteristics of the n-type HpGe detector used for the proficiency test simulation.

Characteristic	Value (mm)
Crystal diameter	56
Crystal length	60
Core diameter	10
Core height	42
Frontal dead layer thickness	5E-04
Lateral dead layer thickness	5E-04
Be window to crystal distance	5
Entrance Be window diameter	66
Entrance Be window thickness	1
External diameter of Al cover	74
Frontal Al cover thickness	1
Lateral Al cover thickness	1

3. Efficiency calculations

Considering that the only different factor between laboratories is the soil composition assumed during the Monte Carlo calculation of the self-attenuation factor, the relationship between the reference value and the value reported by any laboratory can be calculated, for a given energy, as follows:

$$\frac{V_{\text{lab}}}{V_{\text{ref}}} = \frac{\varepsilon_{\text{ref}}}{\varepsilon_{\text{lab}}} \quad (6)$$

where ε_{ref} and ε_{lab} denote the f.e.p. efficiencies calculated for the reference soil and for the soil composition adopted by the laboratory, respectively.

The values of the f.e.p. efficiencies, for the selected gamma-ray energies in each type of soil, were determined using the Monte Carlo code DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008). This code was programmed in Object Pascal for detector-efficiency calculations in gamma-ray spectrometric systems with coaxial detectors, which can be scintillators (NaI or CsI) or semiconductor detectors (Ge(Li), HpGe or Si(Li)). DETEFF accepts gamma-ray energies in the range 10–2000 keV. The sample configurations can be cylindrical, rectangular, or Marinelli beakers, thus including the cases of point and disk sources as degenerate cylindrical geometries. The samples are considered to be axially centered with respect to the detector, so that the source position is defined by the source-to-detector distance. DETEFF has a user-friendly interface that facilitates the access to the code options.

The information concerning the properties of the HpGe (n-type) detector used is summarized in Table 3. The measurement geometry (cylindrical of 110 mL, with diameter=5.1 cm and height=5.4 cm) was selected considering 100 g of soil, which is usually the mass sent to participant laboratories during proficiency tests and intercomparison exercises organized by the IAEA. The source container (made of polyethylene with wall thickness=0.1 cm) was placed at 1 mm from the surface of the detector entrance window. The assumed density of the soil was 1.6 g cm^{-3} .

Mass attenuation coefficients corresponding to different soil compositions and energy values were calculated using the XCOM database (Berger et al., 1999). Table 4 shows significant differences between these coefficients, especially for the lowest energy value.

Table 4
Mass attenuation coefficients (μ/ρ) for soils defined by ICRU (1994).

Radionuclide	Energy (keV)	(μ/ρ) ($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)				
		Ref. soil	Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
^{109}Cd	24.9	1.755	1.423	1.507	0.434	3.039
^{210}Pb	46.5	0.396	0.343	0.354	0.212	0.591
^{241}Am	59.5	0.268	0.243	0.247	0.190	0.357

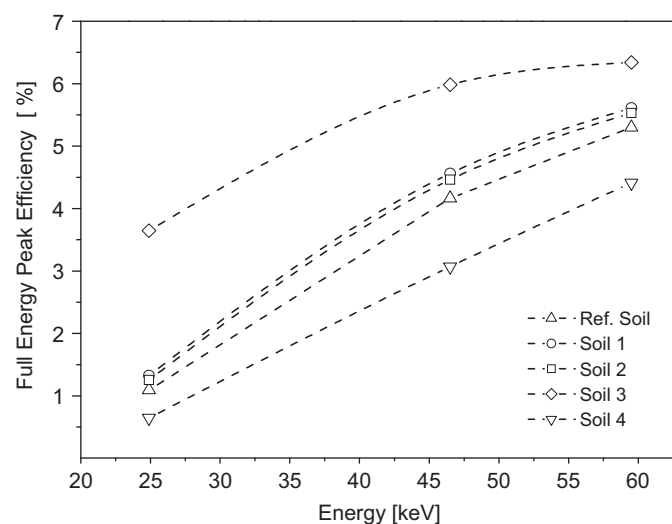


Fig. 1. Values of f.e.p. efficiencies calculated for the five types of soil used.

4. Results and discussion

Using the detector model and source geometry described previously, f.e.p. efficiencies were obtained by Monte Carlo simulation for each type of soil. Fig. 1 shows the plots of these efficiency values as a function of energy. The number of simulated photons was adjusted in each case to achieve relative statistical uncertainties (corresponding to one standard deviation) lower than 1%.

The results obtained by laboratories 1 to 4 during our hypothetical proficiency test, according to the IAEA performance evaluation criteria (IAEA, 2007), are presented in Table 5. In order to facilitate the analysis, the results were normalized with the reference values V_{ref} . As was noted above, it was assumed that the laboratories reported the results with the same precision as the reference laboratory, i.e., the relative uncertainties reported by the participant laboratories were considered equal to the relative uncertainties associated with the reference values.

The results obtained by Laboratories 1 and 2 show similar scores (“Acceptable”) for all the analyzed radionuclides except ^{109}Cd , for which Laboratory 1 failed the test of trueness and got a “Warning” final score. This is because, for this determination, the trueness test failed and $Rd \leq MAB$. In general, the chemical composition of the reference soil and soils 1 and 2 are quite similar, as can be noted from Table 1. However, it has been demonstrated that just slight differences in chemical composition can affect the activity concentration measurement of radionuclides with energies below 25 keV.

When the chemical composition of the soil differs significantly from that of the reference, marked relative deviations (about 70% or more) can arise in the quantification of low-energy gamma-emitting radionuclides. Laboratories 3 and 4 obtained “Not Acceptable” and “Warning” final scores for all the analytical determinations. The most problematic nuclides were ^{109}Cd and ^{210}Pb with “Not

Table 5
Normalized values for each laboratory and the corresponding proficiency test results.

Laboratory	Radionuclide	$V_{\text{lab}}/V_{\text{ref}}$	$U_{\text{lab}}/V_{\text{ref}}$	A_1/V_{ref}	A_2/V_{ref}	Trueness ^a	Final ^b score
1 (Soil 1)	^{109}Cd	0.824	0.041	0.176	0.167	N	W
	^{210}Pb	0.913	0.046	0.087	0.175	A	A
	^{241}Am	0.945	0.024	0.055	0.089	A	A
2 (Soil 2)	^{109}Cd	0.871	0.044	0.129	0.172	A	A
	^{210}Pb	0.933	0.046	0.067	0.175	A	A
	^{241}Am	0.958	0.024	0.042	0.089	A	A
3 (Soil 3)	^{109}Cd	0.300	0.015	0.700	0.135	N	N
	^{210}Pb	0.696	0.035	0.304	0.157	N	N
	^{241}Am	0.836	0.021	0.164	0.084	N	W
4 (Soil 4)	^{109}Cd	1.691	0.085	0.691	0.254	N	N
	^{210}Pb	1.357	0.068	0.357	0.218	N	N
	^{241}Am	1.201	0.030	0.201	0.101	N	W

^a N means Not Acceptable, and A means Acceptable.

^b The Final Score assumes that the test of precision was Acceptable for all laboratories. W means “warning”.

Acceptable” final scores in the determinations carried out by both laboratories. In the analysis of these radionuclides, the trueness test failed and the condition $Rd \leq MAB$ was not satisfied. ^{241}Am , with a higher gamma-ray energy, shared “Acceptable” and “Warning” final scores. As was expected, the self-absorption correction was more significant as the gamma-ray energy decreases.

Although Laboratories 1 and 2 obtained “Acceptable” and “Warning” results as final scores in all the analytical determinations, their assumed random selection of the type of soil indicates the fortuitous character of their results. The same is the case for Laboratories 3 and 4. Likewise, the final scores for the participant laboratories might be very different taking a different type of soil as reference. For example, if soil 3 had been taken as the reference soil, all participant laboratories would have obtained “Not Acceptable” final scores for ^{109}Cd and ^{210}Pb . As in the former case, ^{241}Am would have shared “Acceptable” and “Warning” final scores.

Furthermore, in a real exercise, the distribution of results would have to be wider because of the influence of other factors on the overall uncertainty. The assumption considered in this work, that only the self-absorption correction is responsible for the observed bias, is very conservative and is just an indicator of the isolated contribution of this parameter and its significant weight during the performance evaluation of a laboratory in a proficiency test or intercomparison exercise.

5. Conclusions

The use of Monte Carlo simulation for the efficiency calibration in gamma-ray spectrometry is becoming ever more common, with increasing numbers of laboratories trusting this calibration method whose use is being promoted by recognized organizations such as the IAEA in the framework of international projects (IAEA, 2008). Monte Carlo simulation offers the possibility of precise self-absorption corrections whenever the elementary chemical composition of the analyzed samples is well known.

The present work has shown that “Not Acceptable” results can be obtained by laboratories just from the fact of considering different types of soils for self-absorption corrections. In order to limit the bias of laboratories in real analytical problems, the conclusion has to be that collecting the detailed chemical composition of the samples is essential issue to be considered by analytical laboratories that use the Monte Carlo method for the calculation of self-attenuation corrections.

The production of new reference materials for low-energy gamma-emitting radionuclides, as expressed in IAEA (2007), could be of considerable help for analytical laboratories using gamma-ray spectrometry if these materials are accompanied by precise information on their chemical composition.

References

- Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Coursey, J.S., Zucker, D.S., 1999. XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.2). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: an improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 586, 204–210.
- ICRU, 1994. Gamma-Ray Spectrometry in the Environment. ICRU REPORT 53, 17.
- IAEA, 2007. Report on the IAEA-CU-2006-04 ALMERA Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides IAEA/AL/170.
- IAEA, 2008. Benchmarking Calibration for Low-Level Gamma Spectrometric Measurements of Environmental Samples. IAEA-CRP-1471.
- Jurado Vargas, M., Fernández Timón, A., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2002. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 57, 893–898.
- Shakhashiro, A., Fajgelj, A., Sansone, U., 2007. Comparison of different approaches to evaluate proficiency test data. In: Fajgelj, A., Belli, M., Sansone, U. (Eds.), *Combining and Reporting Analytical Results*. RSC Publishing, Cambridge.

4.3 Publicación No. 2

“Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating”.

4.3.1 Presentación de la publicación

Título: Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating.

Autores: 1. Jorge A. Carrazana González^a

2. Miguel Jurado Vargas^b

3. Reinaldo Gil Castillo^a

Filiación: ^a Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR), La Habana, Cuba.

^b Departamento de Física, Universidad de Extremadura, Badajoz, España.

Revista: Radiation Physics and Chemistry.

Volumen: 127. Página inicial: 92 Página final: 96

Año de publicación: 2016

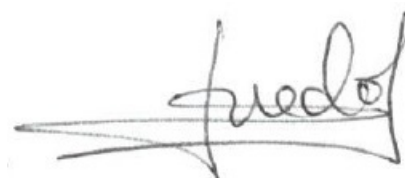
4.3.2 Informe

El artículo "Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating" fue publicado en la revista *Radiation Physics and Chemistry* en el año 2016. Ese año el factor de impacto de esta revista fue de 1,207, correspondiendo al puesto 7 (de un total de 32) dentro de la categoría "Nuclear Science and Technology".

La participación del doctorando en este artículo ha sido fundamental para el estudio del impacto de las correcciones por autoabsorción en la estimación de la edad de los sedimentos, cuando esta se determina en base a la medida de radionucleidos de baja energía como el ^{210}Pb (46.5 keV) y ^{241}Am (59.5 keV). El doctorando contribuyó al diseño de la investigación realizada, evaluando las características de sedimentos de diferentes regiones geográficas, seleccionando el modelo de datación a emplear, y los tipos de detectores a utilizar en el estudio. Participó en la estimación de las desviaciones relativas en los valores de actividad, y en la edad de los sedimentos, asociadas al empleo (para las correcciones por autoabsorción) de diferentes composiciones químicas para una muestra de sedimento, y de detectores de distintos tipos. Conjuntamente con los otros autores, demostró que si los inventarios de ^{210}Pb no soportado hubiesen sido determinados con las desviaciones relativas presentadas en este artículo (con un valor máximo de 89.5%), se habrían obtenido importantes desviaciones en la edad de los sedimentos (siendo la mayor de 40.6 años) al usar el modelo de datación de tasa de suministro constante (CRS).

Todas las tareas desarrolladas por el doctorando han sido desarrolladas bajo mi dirección y supervisión, pudiendo dar fe de que todo lo aquí expuesto es verídico.

Fdo. El Director de la Tesis



Dr. D. Miguel Jurado Vargas

Yo, Reinaldo Gil Castillo, coautor de la publicación titulada "Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating" hago constar mediante este escrito que colaboré en dicha publicación, formando parte la misma de la Tesis Doctoral de Jorge Antonio Carrazana González. Del mismo modo, declaro que la referida publicación no va a ser utilizada por mí en mi Tesis Doctoral.



Reinaldo Gil Castillo

4.3.3 Copia de la publicación



Influence of self-absorption corrections in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am for sediment dating

J. Carrazana González^{a,*}, M. Jurado Vargas^b, R. Gil Castillo^a

^a Centre for Radiological Protection and Hygiene, Havana, Cuba

^b Physics Department, University of Extremadura, Badajoz, Spain

HIGHLIGHTS

- Inaccuracies in sediment dating can be associated to self-attenuation corrections.
- Deviations in the estimation of ^{210}Pb sediment ages (CRS model) are presented.
- The performance of laboratories in an IAEA proficiency test is evaluated.

ARTICLE INFO

Article history:

Received 10 March 2016

Received in revised form

10 June 2016

Accepted 16 June 2016

Available online 17 June 2016

Keywords:

Gamma-ray spectrometry

Self-attenuation corrections

Sediment dating

HPGe detectors

Monte Carlo method

ABSTRACT

The nuclides ^{210}Pb and ^{241}Am are used in geochronological studies. In this work, we examine the influence of the sediment chemical composition on the self-attenuation corrections needed for the accurate determination of specific activities for ^{210}Pb and ^{241}Am used for sediment dating. A theoretical exercise was carried out evaluating the relative bias obtained by four different analytical laboratories in the quantification of the ^{210}Pb and ^{241}Am activity concentration by gamma-ray spectrometry. The laboratories considered the same density for the sediment sample, but each one used a different chemical composition in the Monte Carlo calculations, and six different HPGe detectors (including n and p-types). An estimate of the impact that would have the relative biases found in the estimation of the ^{210}Pb sediment ages, applying the Constant Rate of Supply (CRS) dating model, is also given. In addition, the performance scores that the laboratories would have obtained in a hypothetical IAEA proficiency test are also presented.

© 2016 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Sediments are a complex mixture of materials introduced through rivers, shoreline erosion, in-situ biological and chemical processes and human sources. Sediments store information about all these sources, particularly the temporal variations in their rates of supply. Documentation of such variations requires a chronological study based on the analysis of sediment cores.

Low energy gamma-emitting radionuclides, like ^{210}Pb and ^{241}Am , have been widely used in geochronological studies. In fact, dating of sediments using unsupported ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$) activity profiles has become a standard technique for the determination of recent (100–150 years) sedimentary geochronologies. Usually, the chronologies are based on two fundamentally different assumptions underlying $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ accumulation. In one hand, the constant

initial concentration (CIC) hypothesis, which assumes that the initial $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ concentration in the deposited sediment is always the same regardless of changes in the sediment accumulation rate. On the other hand, the constant rate of supply (CRS) hypothesis, which assumes that the supply of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ to the accreting material is constant in time. It is well known that chronologies derived from the same set of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ data using these hypotheses often show significant differences. The question as to which is the best representation can usually be resolved by the application of an additional independent dating tool, such as that based on anthropogenic fallout markers.

Of the fallout nuclides, ^{241}Am has been used as stratigraphic marker to resolve ambiguous or uncertain $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ chronologies. Under favourable circumstances, the activity profile of this nuclide should reflect their deposition history, providing accurate dates corresponding to specific events. ^{241}Am can be used to corroborate sediment dates when the profile has been disturbed. There is a growing evidence that ^{241}Am is less mobile and more strongly

* Corresponding author.

E-mail address: carrazana@cphr.edu.cu (J.C. González).

particle-associated in sediments than other radionuclides, especially under low pH conditions. Between 1952 and 1965, direct ²⁴¹Am fallout was negligible and the ²⁴¹Am found in present-day archives is a decay product of ²⁴¹Pu from weapons test fallout.

The accuracy in the dating of sediments is a prerequisite for effective studies of environmental changes. In this sense, the accuracy associated to the determination of the specific activities of ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am, on which the determination of sediment ages are based, is of crucial importance. Gamma-ray spectrometry enables the accurate determination of low-energy radionuclides in sediment samples; however, for measurement accuracy special attention has to be given to self-attenuation corrections.

In this work, we analyse how the sediment's chemical composition affects to the determination of ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am for sediment dating. We performed a theoretical exercise to evaluate the relative bias obtained by four different analytical laboratories in the quantification of ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am activity concentrations by gamma-ray spectrometry. For a same sediment, each laboratory considered a different chemical composition during the Monte Carlo calculations of the required self-attenuation corrections. An estimation of the impact that would have the maximum relative biases obtained in the deviations in the estimation of the ²¹⁰Pb sediment ages, applying the CRS dating model (Appleby and Oldfield, 1978), is also given. The performance scores that the laboratories would have obtained in a hypothetical IAEA proficiency test are also discussed.

2. Theoretical exercise

A Monte Carlo-based theoretical exercise was carried out in which four different analytical laboratories analyse a sediment sample assuming the same density but a different chemical composition. We considered six different HPGe detectors (three p-type and three n-type) for the analytical determinations at each laboratory to investigate the dependence of the relative bias in the ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am activity concentration on the detector characteristics for HPGe detectors. The task for each laboratory was to estimate the activity concentration of ²¹⁰Pb (46.5 keV) and ²⁴¹Am (59.5 keV) in the sediment sample.

In order to take into account some of the possible variability in elementary chemical composition that might be associated to different sediment samples, the chemical characterization of some types of sediments in selected locations of United States (Horowitz and Elrick, 1985) and Costa Rica (Salazar et al., 2004) was considered. Only the common elements reported in the above-mentioned works were used in this investigation. The concentrations of other elements usually present in sediment samples, like Si and O, were not informed by the referred authors. This is the reason why the sum of the fractions by weight of the reported elements does not reach 100%.

Table 1
Elementary chemical composition (in % of mass) of the sediment types used for the theoretical exercise.

Element	Reference Sediment ^a	Sediment 1 ^a	Sediment 2 ^b	Sediment 3 ^b	Sediment 4 ^b
Fe	3.35	11.3	7.5	1.9	9.08
Mn	0.04	0.08	0.13	0.03	0.14
Ti	0.51	–	1.3	0.33	1.12
Ca	0.83	2.9	7.3	4.6	4.74
K	1.4	1.26	0.2	0.53	0.94

^a Horowitz and Elrick, 1985

^b Salazar et al., 2004

In this study it was assumed that the sediment sample is composed just by the elements referred in Table 1. For the investigation carried out in this work, five of the different compositions reported in the above-mentioned papers were used (see Table 1). A given chemical composition was assumed for the reference sediment, whereas other compositions from sediment 1 to sediment 4 were assigned to each of the four laboratories for Monte Carlo calculation of the absolute full energy peak (f.e.p.) efficiency corresponding to each energy value. It should be emphasized that the corrections for self-attenuation in the sediment matrix are already included in the calculated f.e.p. efficiency values.

The evaluation of the results was carried out through the analysis of the relative bias between the reported and the reference value. The relative bias (B) for each laboratory was determined

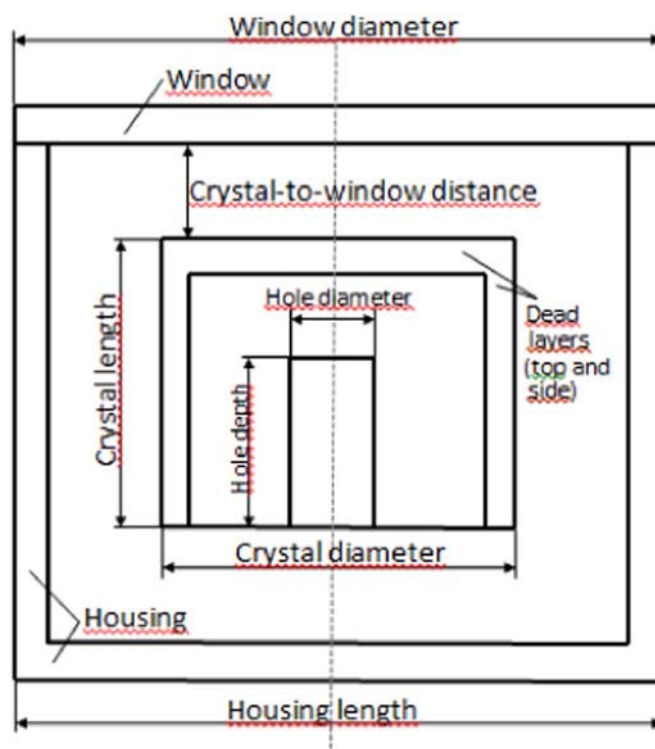


Fig. 1. Plot showing the main characteristics of the HPGe detectors considered in the Monte Carlo simulations with DETEFF.

Table 2
Characteristics of the HpGe detectors (n and p-types) used for the theoretical exercise. Dimensions are in mm.

Characteristic	N-1	N-2	N-3	P-1	P-2	P-3
Crystal material	Ge	Ge	Ge	Ge	Ge	Ge
Crystal diameter (including the side dead layer)	60	52	80	60	52	80
Crystal length (including the top dead layer)	60	52	80	60	52	80
Dead layer thickness (top and side)	0.0003	0.0003	0.0003	1	1	1
Hole diameter	10	10	10	10	10	10
Hole depth	40	30	60	40	30	60
Window diameter	80	72	100	80	72	100
Window thickness	0.5	0.5	0.5	1	1	1
Window material	Be	Be	Be	Al	Al	Al
Crystal-to-window distance	5	5	5	5	5	5
Housing length	80	72	100	80	72	100
Housing thickness	1	1	1	1	1	1
Housing material	Al	Al	Al	Al	Al	Al

according to the following equation:

$$B = \frac{|V_{ref} - V_{lab}|}{V_{ref}} \cdot 100\% \quad (1)$$

where V_{ref} is the reference value of activity concentration for the selected radionuclide, and V_{lab} is the activity concentration for the same radionuclide as determined by the analytical laboratory. Each laboratory, using a specific chemical composition of sediment, has associated six relative biases for each radionuclide, one for each detector used.

3. Efficiency determination

Assuming that the sediment chemical composition is the only different factor between laboratories during the Monte Carlo calculations, the relationship between the reference value of activity concentration and the value reported by any laboratory can be calculated, for a given energy, as follows:

$$\frac{V_{lab}}{V_{ref}} = \frac{\varepsilon_{ref}}{\varepsilon_{lab}} \quad (2)$$

where ε_{ref} and ε_{lab} denote the f.e.p. efficiencies calculated for the reference sediment and for the sediment composition adopted by the laboratory, respectively. The values of the f.e.p. efficiencies for

the selected gamma-ray energy (46.5 and 59.5 keV) were determined using the Monte Carlo code DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008). This code was designed for the determination of the efficiency in typical coaxial gamma-ray detectors, which can be scintillators (NaI or CsI) or semiconductor detectors (Ge(Li), HpGe or Si(Li)). The application of DETEFF has been checked in the range of energy from ~ 10 –2000 keV. The samples are considered to be axially centered with respect to the detector, which can be cylindrical, rectangular, or Marinelli beakers, thus including the cases of point and disk sources as degenerate cylindrical geometries. Several works deal with the validation and application of DETEFF in gamma-ray spectrometry (Jurado Vargas et al., 2002, 2003; Vidmar et al., 2010).

A plot showing the main geometrical characteristics considered for the detectors in the Monte Carlo simulations is given in Fig. 1. The geometrical parameters associated to the six detectors considered in this work are summarized in Table 2. We choose both p-type and n-type HPGe detectors in order to include different materials for the entrance window (Al for p-type and Be for n-type) and also very different values for the dead layer thickness (1 mm for p-type and 0.3 μm for n-type detectors).

The sample geometry was a cylindrical container of 110 mL (5.1 cm in diameter and 5.4 cm in height) containing 100 g of sediment. This container is made of polyethylene with a wall thickness of 0.1 cm, which was considered to be measured at 1 mm from the surface of the detector entrance window. A value of

Table 3
Mass attenuation coefficients for each type of sediment.

Radionuclide	Energy (keV)	(μ/ρ) [$\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$]				
		Ref. sediment	Sediment 1	Sediment 2	Sediment 3	Sediment 4
^{210}Pb	46.5	0.1056	0.3000	0.2728	0.1045	0.2843
^{241}Am	59.5	0.0544	0.1534	0.1410	0.0548	0.1461

Table 4
F.e.p. efficiency values for each detector and for each type of sediment.

Radionuclide	Sediment type	Eff _{N-1} (%)	Eff _{N-2} (%)	Eff _{N-3} (%)	Eff _{P-1} (%)	Eff _{P-2} (%)	Eff _{P-3} (%)
^{210}Pb (46.5 keV)	Reference	7.65	6.35	10.48	0.47	0.39	0.61
	1	4.27	3.62	5.74	0.25	0.21	0.32
	2	4.59	3.86	6.13	0.27	0.23	0.35
	3	7.67	6.40	10.51	0.47	0.39	0.61
	4	4.44	3.76	5.98	0.26	0.22	0.34
^{241}Am (59.5 keV)	Reference	9.33	7.72	12.88	2.10	1.73	2.83
	1	6.43	5.36	8.77	1.42	1.18	1.90
	2	6.70	5.60	9.20	1.48	1.23	1.98
	3	9.33	7.70	12.91	2.09	1.72	2.83
	4	6.59	5.48	9.02	1.46	1.21	1.95

Table 5
Relative bias of each analytical laboratory and for each detector.

Radionuclide	Laboratory	B _{N-1} (%)	B _{N-2} (%)	B _{N-3} (%)	B _{P-1} (%)	B _{P-2} (%)	B _{P-3} (%)
^{210}Pb (46.5 keV)	1	79.5	75.5	81.7	87.7	85.4	89.5
	2	66.8	64.6	70.0	74.6	72.8	76.1
	3	0.5	0.8	0.8	0.3	0.4	0.4
	4	72.2	68.9	74.9	80.4	78.6	82.6
^{241}Am (59.5 keV)	1	45.4	44.2	46.9	48.2	46.1	49.1
	2	39.3	38.0	40.7	41.7	41.2	42.7
	3	0.5	0.3	0.0	0.2	0.3	0.0
	4	42.0	40.9	43.5	44.5	43.0	45.3

2.2 g.cm⁻³ for the sediment density was assumed.

The values of the mass attenuation coefficients for each constituent of the analysed sediment (Fe, Mn, Ti, Ca and K) were obtained using the XCOM database (Berger et al., 1999). Mass attenuation coefficients for the energies of ²¹⁰Pb (46.5 keV) and ²⁴¹Am (59.5 keV), corresponding to the different sediment compositions studied, were calculated through the Bragg's formula for a mixture of elements (Jackson and Hawkes, 1981):

$$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{cc,E} = \sum_i w_i \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i \quad (3)$$

where $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{cc,E}$ is the mass attenuation coefficient for a given chemical composition (cc) and a specific gamma-ray energy (E), w_i is the fraction by weight and $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_i$ the mass attenuation coefficient for the i -th element in the analysed sediment sample. Table 3 shows the calculated mass attenuation coefficients for the energies of ²¹⁰Pb (46.5 keV) and ²⁴¹Am (59.5 keV) for each type of sediment.

4. Results and discussion

Table 4 shows the obtained f.e.p. efficiency values for the six HPGe detectors, and for the different compositions of sediments. For the simulation with DETEFF, the detector model specified in Fig. 1, and the source geometry described previously were used. The number of simulated photons was adjusted in each case to achieve relative statistical uncertainties (corresponding to one standard deviation) lower than 0.5%.

As expected, for each type of sediment the efficiency values for n-type detectors are much higher than the corresponding values for p-type detectors, considering the same photon energies. This is because n-type detectors have a beryllium window and a much thinner dead layer, providing less attenuation to low-energy photons.

The relative biases of activity concentrations (respect to the reference values) for laboratories 1–4 are presented in Table 5. It can be noted that the maximum relative biases are obtained by laboratory 1 (89.5% for ²¹⁰Pb, and 49.1% for ²⁴¹Am) using the p-type detector P-3. Note that the mass attenuation coefficients considered by laboratory 1 (for both ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am) differ from

those of the reference sediment more than the rest of laboratories. In fact, for laboratory 1, average relative biases of approximately 88% (for p-type detectors) and 79% (for n-type detectors) are obtained in the determination of ²¹⁰Pb. In the case of ²⁴¹Am, the average relative biases of this laboratory are about 48% and 46% for p-type and n-type detectors, respectively. As expected, these results demonstrate that ²¹⁰Pb (46.5 keV), with a lower gamma-ray energy, is more affected by self-absorption corrections than ²⁴¹Am (59.5 keV).

From the existent sediment dating models, the CRS model is perhaps the most widely used (Appleby, 1998). According to the CRS model, the ²¹⁰Pb deposition time or date t as a function of depth x (Appleby and Oldfield, 1978) is calculated using the following equation:

$$t = \frac{1}{\lambda} \cdot \ln\left(\frac{A_o}{A_x}\right) \quad (4)$$

where λ is the decay constant for ²¹⁰Pb, and A_o and A_x are the integrated activities (Bq/kg) of unsupported ²¹⁰Pb in the core and below depth x , respectively. These activities are obtained by integration of the ²¹⁰Pb profile.

We will now assume for the aims of this exercise that the deviations obtained by this method respect to the real ²¹⁰Pb sedimentation times are only due to the relative bias associated to the specific activities A_o and A_x for ²¹⁰Pb. In other words, we consider that the requirement of the CRS model (the supply of ²¹⁰Pb_{ex} is strictly constant in time) is totally satisfied for the system under study. In this case, if we take the relative biases obtained for the specific activities A_o and A_x by the laboratories, it would result in the deviations shown in Table 6 in the estimation of the ²¹⁰Pb sediment ages. As can be seen, these deviations are between 0.2 and 37.1 years for n-type detectors, and between 0.1 and 40.6 years for p-type detectors. This fact is especially important in the first few samples above the equilibrium depth where the accuracy in the dating by this model is crucially dependent on reliable estimates of the ²¹⁰Pb inventories (Appleby, 1998).

In general, as seen from Table 5, the relative bias of the activity concentration (for ²¹⁰Pb and ²⁴¹Am) does not strongly depend on the detector characteristics. This is mainly because in this theoretical exercise we calculated (for each detector) both the reference and the laboratory efficiencies using the same detector physical parameters. If the reference values were not calculated using the same detector,

Table 6
Deviations respect to the real ²¹⁰Pb sedimentation times for each analytical laboratory and for each detector.

Radionuclide	Laboratory	D _{N-1} (y)	D _{N-2} (y)	D _{N-3} (y)	D _{P-1} (y)	D _{P-2} (y)	D _{P-3} (y)
²¹⁰ Pb (46.5 keV)	1	36.1	34.3	37.1	39.8	38.8	40.6
	2	30.3	29.3	31.8	33.9	33.1	34.6
	3	0.2	0.4	0.4	0.1	0.2	0.2
	4	32.8	31.3	34.0	36.5	35.7	37.5

Table 7
Values of B/A₂ for each analytical laboratory and for each detector.

Radionuclide	Laboratory	(B/A ₂) _{N-1}	(B/A ₂) _{N-2}	(B/A ₂) _{N-3}	(B/A ₂) _{P-1}	(B/A ₂) _{P-2}	(B/A ₂) _{P-3}
²¹⁰ Pb (46.5 keV)	1	3.0	2.9	3.1	3.2	3.1	3.2
	2	2.7	2.6	2.8	2.9	2.8	2.9
	3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	4	2.8	2.7	2.9	3.0	3.0	3.1
²⁴¹ Am (59.5 keV)	1	4.0	3.9	4.1	4.2	4.0	4.2
	2	3.6	3.5	3.7	3.7	3.7	3.8
	3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	4	3.8	3.7	3.9	3.9	3.8	4.0

the relative bias could be strongly affected by the precision in the knowledge of the detector physical characteristics when Monte Carlo simulation is applied for the efficiency calibration.

We also investigated the performance scores that the laboratories would have obtained in a hypothetical IAEA proficiency test based on the obtained relative biases. In intercomparison exercises and proficiency tests, the IAEA uses an approach (IAEA, 2007; Shkhashiro et al., 2007) in which the relative bias (B) respect to the reference value is compared with the Maximum Acceptable Relative Bias (MARB), in order to decide if an analytical result (which do not pass either the precision or trueness test) obtains “Warning” ($B \leq \text{MARB}$) or “Not Acceptable” ($B > \text{MARB}$) scores. The value of MARB is determined considering the physical background of radioanalytical methods, including the level of radioactivity and the complexity of the task.

In this study, the relative uncertainties reported by the participant laboratories were considered equal to the relative uncertainties associated with the reference values. According to this, the test of precision is considered “Acceptable” for all laboratories and our analysis hence focuses on the test of trueness based on the use of the relative bias. For the trueness evaluation, the results are considered “Acceptable” if:

$$B \leq A_2 \quad (5)$$

where

$$A_2 = \frac{2.58 \cdot \sqrt{u_{ref}^2 + u_{lab}^2}}{V_{ref}} \cdot 100\% \quad (6)$$

being u_{ref} the uncertainty of the reference value, and u_{lab} the uncertainty calculated by the analytical laboratory.

The values of MARB considered in this exercise for the performance evaluation (30% for ^{210}Pb and 25% for ^{241}Am) were taken from a real ALMERA proficiency test on determination of low-energy radionuclides in environmental samples (IAEA, 2007). Table 7 shows the values of B/A_2 for each analytical laboratory and for all the detectors considered. It must be noted that, following the above mentioned proficiency test, laboratories 1, 2 and 4 would have failed the trueness test ($B > A_2$) and would have obtained “Not Acceptable” scores ($B > \text{MARB}$) for the determination of ^{210}Pb (46.5 keV) and ^{241}Am (59.5 keV) using anyone of the HPGe detectors considered in this work.

5. Conclusions

This work shows that important inaccuracies (expressed in terms of relative bias) can arise in the quantification of ^{210}Pb and ^{241}Am used for sediment dating, just from the fact of considering a

different chemical composition for the sediments to evaluate the required self-absorption corrections. Particularly, maximum relative biases of 89.5% and 49.1% were obtained for ^{210}Pb and ^{241}Am activities, respectively. If the inventories of these radionuclides are used for geochronological studies, these inaccuracies would have a severe impact in the determination of sediment ages. In fact, taking into consideration the theoretical exercise carried out here, if the integrated activities for unsupported ^{210}Pb (assuming the CRS dating model) had been determined with the relative biases for ^{210}Pb reported by laboratories 1, 2, and 4, important deviations between 29.3 and 40.6 years would be derived in the sediment ages. In practice, other important uncertainty sources associated to sediment dating (like the misapplication of the mathematical model) must be considered in the uncertainty budget.

The real implications that the obtained relative biases would have in an IAEA proficiency test were also analysed. It was shown that the same three laboratories (1, 2, and 4) would have obtained “Not Acceptable” scores in the determination of ^{210}Pb and ^{241}Am using anyone of the HPGe detectors considered.

References

- Appleby, P.G., 1998. Dating Recent Sediments by ^{210}Pb : Problems and Solutions. In: Proceedings of STUK Symposium, Helsinki, STUK-A145, pp. 7–24.
- Appleby, P.G., Oldfield, F., 1978. The calculation of ^{210}Pb dates assuming a constant rate of supply of unsupported ^{210}Pb to the sediment. *Catena* 5, 1–8.
- Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Coursey, J.S., Zucker, D.S., 1999. XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.2). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: an improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 586, 204–210.
- Horowitz, A.J., Elrick, K.A., 1985. Multielement analysis of rocks and sediments by wet digestion and atomic absorption spectroscopy: U.S. Geological Survey, Open-File Report 85–78, iv, p. 17.
- IAEA, 2007. Report on the IAEA-CU-2006-04 ALMERA Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides IAEA/AL/170.
- Jackson, D.F., Hawkes, D.J., 1981. X-ray attenuation coefficients of elements and mixtures. *Phys. Rep.* 70 (3), 169–233.
- Jurado Vargas, M., Fernández Timón, A., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2002. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 57, 893–898.
- Jurado Vargas, M., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2003. Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HpGe detector using the Monte Carlo method. *Appl. Radiat. Isot.* 58, 707–712.
- Salazar, A., Lizano, O.G., Alfaro, E.J., 2004. Composición de sedimentos en las zonas costeras de Costa Rica utilizando fluorescencia de rayos-X (FRX). *Rev. Biol. Trop.* 52 (Suppl. 2), ISSN 0034–7744.
- Shkhashiro, A., Fajgelj, A., Sansone, U., 2007. Comparison of different approaches to evaluate proficiency test data. In: Fajgelj, A., Belli, M., Sansone, U. (Eds.), *Combining and Reporting Analytical Results*. RSC Publishing, Cambridge.
- Vidmar, T., Celik, N., Cornejo Díaz, N., Dlabac, A., Ewa, I.O.B., Carrazana González, J. A., Hult, M., Jovanović, S., Lépy, M.-C., Mihaljević, N., Sima, O., Tzika, F., Jurado Vargas, M., Vasilopoulou, T., Vidmar, G., 2010. Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Appl. Radiat. Isot.* 68, 355–359.

Capítulo 5

Transferencia de eficiencias entre diferentes geometrías de medida

5.1 Introducción

La transferencia de eficiencias es un método alternativo que puede emplearse para calcular la eficiencia absoluta en el pico de absorción total en las medidas que se desarrollan por espectrometría gamma. Este método, en su aplicación tradicional, se basa en el teorema de Moens [Moens et al., 1981], el cual establece que la relación entre la eficiencia absoluta en el pico de absorción total (ε_{FEP}) y la eficiencia absoluta total (η), es una propiedad intrínseca del detector para una energía determinada de los fotones, y resulta independiente de la geometría y la composición química de la muestra. Las eficiencias a las cuales se hace referencia aquí son las llamadas eficiencias virtuales, o sea, aquellas eficiencias que no consideran ninguna dispersión en la muestra, ni en el material inactivo del detector. La siguiente expresión refleja lo planteado en el teorema de Moens.

$$\frac{\varepsilon_{FEPm}(E)}{\eta_m} = \frac{\varepsilon_{FEPp}(E)}{\eta_p} \quad (5-1),$$

donde los subíndices m y p se refieren a la muestra y al patrón, respectivamente.

De la anterior expresión se deriva que, para un mismo detector, la eficiencia de pico en la muestra de interés (correspondiente a una energía específica de los fotones) puede calcularse como el producto de la eficiencia absoluta en el pico de absorción total en el patrón de calibración (determinada experimentalmente), y la relación de las eficiencias absolutas totales (para la muestra y el patrón) obtenida empleando un programa de cálculo. En el método de transferencia de eficiencias, el patrón de calibración puede tener características diferentes a las de la muestra, en cuanto a geometría, densidad y composición química elemental. Algunos autores han probado la consistencia del teorema de Moens, de forma experimental [Erten et al., 1988] y empleando simulación Monte Carlo [Vidmar y Likar, 2004]. El trabajo de Vidmar y Likar [2004],

específicamente, demostró que con la aplicación del método de transferencia de eficiencias se obtiene una exactitud adecuada para su uso rutinario en la medida de muestras ambientales, empleando detectores planares gruesos, y detectores HPGe coaxiales.

En la implementación original del método de transferencia de eficiencias [Moens et al., 1981], así como en algunos de sus desarrollos ulteriores, se utilizó la integración Gaussiana para el cálculo de las eficiencias absolutas totales [Aaltonen et al., 1994; Herrera et al., 1995; Jovanovic et al., 1997; Wang et al., 1997; Piton et al., 2000]. Las primeras aplicaciones de este método consideraron el caso de fuentes puntuales ubicadas en el eje del detector, y se usó un modelo analítico simple de un detector virtual de geometría puntual [Notea, 1971]. La idea básica de este modelo era que la dependencia de la eficiencia con la posición de la fuente puntual, era prácticamente la misma que si se considerara que todas las interacciones de los fotones en el detector hubiesen tenido lugar en un punto. Este modelo fue posteriormente extendido a otras geometrías de medida, empleando varios detectores [Presler et al., 2004; Alfassi et al., 2006; Mahling, 2006; Presler et al., 2006; Alfassi et al., 2007; Hoover, 2007].

Más tarde, se utilizó un modelo más detallado que consideraba las dimensiones del detector y de la muestra. La integración por simulación Monte Carlo fue empleada para el análisis de sistemas multidimensionales, como suele ser el caso en la integración que tiene que ser realizada en los volúmenes de la muestra y el detector. Algunos autores han estudiado la transferencia de eficiencias, basada en la integración por simulación Monte Carlo, en detectores de NaI [Green et al., 1975], y HPGe [Haase et al., 1993; Vidmar, 2005].

A pesar de que la aplicación original del método de transferencia de eficiencias, como fue establecido por Moens [Moens et al., 1981], involucra el cálculo de eficiencias absolutas totales, la transferencia de eficiencias puede ser también desarrollada con eficiencias absolutas determinadas en el pico de absorción total [Jurado Vargas et al., 2003]. En este caso, no se requiere usar las eficiencias absolutas totales, pudiendo emplearse para el cálculo de los factores de transferencia de eficiencias, cualquier programa que se utilice para la determinación de las eficiencias absolutas en el pico de absorción total en varias geometrías de medida.

Una gran ventaja del método de transferencia de eficiencias, como fue planteado anteriormente, es que puede ser aplicado utilizando las dimensiones no optimizadas del detector suministradas por el fabricante. En este sentido, la exactitud del factor de transferencia de eficiencias es mayor que la de las propias eficiencias simuladas. Esto

es posible porque el factor de transferencia de eficiencia se determina a partir de la relación de eficiencias calculadas en las mismas condiciones (para la muestra y el patrón). En esta relación, las inexactitudes asociadas a las características del detector se cancelan. También se cancelan las diferencias en las secciones eficaces de interacción, y las asociadas a los diferentes modelos físicos para la interacción y seguimiento de las partículas, utilizados en las distintas implementaciones de este método.

Algunos autores [Vidmar et al., 2010], sin embargo, han demostrado que los mejores resultados en la transferencia de eficiencias se obtienen si el patrón de calibración y la muestra de interés tienen geometrías similares. Cuando la transferencia ocurre entre una fuente puntual (tomada como referencia) y una fuente volumétrica, se aprecian desviaciones relativas significativas entre las eficiencias calculadas y las experimentales [Radu et al., 2009, Vidmar et al., 2010]. En este caso, la influencia de las imprecisiones relacionadas con los parámetros del detector, en las diferencias relativas, es mayor. En la transferencia de eficiencias entre geometrías cercanas, por el contrario, las desviaciones relativas suelen ser muy pequeñas [Sima y Arnold, 2002; Radu et al., 2009; Vidmar et al., 2010]. Por esta razón, un trabajo previo [Vidmar et al., 2010] recomienda que los laboratorios analíticos dedicados a las medidas por espectrometría gamma, deben tener calibraciones experimentales en diferentes geometrías de medida, con el objetivo de que la transferencia de eficiencias (para la geometría de interés) sea realizada tomando como referencia el patrón de calibración que más próximo esté (en cuanto a sus dimensiones) a la muestra medida.

En un estudio previo realizado por el proyecto EUROMET 428 [Lépy et al., 2000; Lépy et al., 2001] se confrontaron diferentes códigos de transferencia de eficiencias. Este ejercicio comparó la aplicación de varios métodos de transferencia de eficiencias (basados en simulación Monte Carlo, y en cálculos semiempíricos) a casos experimentales específicos. El objetivo fue analizar las desviaciones relativas, entre las eficiencias calculadas y las experimentales, asociadas al empleo de cada método. La primera parte del estudio consideró el caso más simple de transferencia de eficiencias (de fuente puntual a fuente puntual), mientras que la segunda etapa incluyó la transferencia de fuente puntual a fuente volumétrica (de geometría cilíndrica) con diferentes matrices.

La comparación entre las eficiencias calculadas y las experimentales fue favorable para la transferencia de eficiencias entre fuentes puntuales, con diferencias relativas muy pequeñas. Por el contrario, en la transferencia entre fuente puntual y fuente

cilíndrica, se observó una gran variabilidad entre los resultados de los participantes, llegando a obtenerse grandes desviaciones relativas [Lépy et al., 2001]. Este estudio concluyó que la mayoría de los programas comparados no deben ser utilizados directamente para el cálculo de eficiencias con fines metrológicos, resultando inevitable el desarrollo de calibraciones experimentales para este propósito. Sin embargo, se constató que estos códigos pueden ser usados (empleando el método de transferencia de eficiencias) para las medidas de rutina de muestras ambientales, en las cuales son aceptables incertidumbres de la eficiencia del orden de 5-10%.

No había sido realizado, no obstante, ningún estudio para investigar la compatibilidad entre sí de diferentes códigos de transferencia de eficiencias, con el objetivo de analizar su equivalencia y cuantificar la diferencia entre ellos en condiciones ideales. Por el interés de este tema para la comunidad internacional dedicada a las medidas por espectrometría gamma, en el marco de un Proyecto de Investigación Coordinado [IAEA CRP 1471, 2008] de la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA) se decidió realizar un ejercicio de intercomparación entre los códigos de transferencia de eficiencias más ampliamente utilizados en espectrometría gamma, para tratar de identificar el origen de las posibles diferencias entre ellos, y para caracterizar la parte de la incertidumbre del método de transferencia de eficiencias atribuible a sus distintas implementaciones.

Fruto de este ejercicio de intercomparación es el trabajo presentado en esta tesis doctoral, titulado “Testing efficiency transfer codes for equivalence”, publicado en la revista “*Applied Radiation and Isotopes*”, en la que hemos participado empleando el programa DETEFF, y que se presenta detalladamente en el siguiente apartado 5.2 de esta memoria.

En este ejercicio de intercomparación fueron confrontados diferentes códigos (específicos y generales) sin hacer ninguna referencia a datos experimentales (condiciones ideales), y sin la intención de favorecer ningún código con relación a otro. Los programas específicos participantes en el estudio fueron GESPECOR [Sima y Arnold, 2002], ETNA [Piton et al., 2000], DETEFF [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008], ANGLE [Jovanovic et al., 1997] y EFFTRAN [Vidmar, 2005]. Los códigos generales incluidos en el ejercicio fueron GEANT 3.21 [Brun et al., 1987], MCNP [Briesmeister, 2000; X-5 Monte Carlo Team, 2003], PENELOPE [Salvat et al., 2003; Salvat et al., 2008] y EGS4 [Nelson et al., 1985]. Para efectuar la transferencia de eficiencias, algunos de estos códigos utilizan eficiencias absolutas totales, mientras que otros lo hacen en base a las eficiencias absolutas en el pico de absorción total.

A los usuarios de los diferentes códigos se les solicitó calcular los coeficientes de transferencia de eficiencias para un conjunto de parámetros bien definidos de la muestra y el detector, y para energías de los fotones típicas de las medidas de radiactividad ambiental, manteniendo la incertidumbre estadística relativa por debajo de 1% en todos los resultados. En el estudio, se consideraron dos modelos de detectores HPGe (tipo n y tipo p) y se asumió que la muestra era medida colocándola directamente sobre la ventana del detector (excepto la fuente puntual). La geometría de referencia fue, en todos los casos, una muestra de matriz acuosa en un contenedor plástico cilíndrico de características específicas. La transferencia de eficiencias se realizó para muestras en contenedores plásticos cilíndricos de otras dimensiones (excepto la fuente puntual) con diferentes tipos de matrices (celulosa y cuarzo). El caso particular de la transferencia hacia la geometría de suelo (cuarzo) y filtro (celulosa) es una situación que se puede presentar comúnmente en los laboratorios dedicados a las medidas de radiactividad ambiental, aunque las diferencias de geometría entre la fuente de referencia y el filtro son bastante marcadas. La transferencia hacia la geometría de fuente puntual, sin embargo, no es usual (ni recomendable de realizar en la práctica) y solamente fue incluida como un caso más para la confrontación entre sí de los diferentes códigos.

Los resultados de este estudio mostraron que los diferentes códigos comparados pueden ser considerados equivalentes para la medida de muestras ambientales, cuando los mismos son usados en la calibración en eficiencias (en base al método de transferencia de eficiencias) para energías de los fotones por encima de 45 keV. La equivalencia de los códigos para estas energías indica una similitud en los mecanismos de seguimiento de las partículas (cálculos basados en la ε_{FEP}), y de integración (para la determinación de las eficiencias absolutas totales), que los mismos utilizan.

La mayor desviación relativa encontrada en la comparación entre los códigos fue del 8%, y la misma correspondió a la menor energía de los fotones considerada en esta investigación (20 keV), cuando se emplea el detector HPGe tipo n. La causa más probable de esta desviación la constituye las diferencias en los coeficientes de absorción que utilizan los distintos códigos en este rango de energía. Este efecto ya había sido observado en un trabajo anterior sobre la comparación de varios códigos en el cálculo directo de eficiencias usando simulación Monte Carlo [Vidmar et al., 2008], identificándose que su origen estaba asociado al empleo de diferentes secciones

eficaces de interacción [Sima y Arnold, 2009]. La energía de 20 keV, sin embargo, no es común en las medidas de muestras ambientales.

En los materiales analizados en esta investigación, no se incluyó ninguno con alto número atómico, quedando por investigar el efecto de este tipo de materiales en la transferencia de eficiencias realizada con los distintos códigos ya empleados.

Las particularidades asociadas al uso de DETEFF en este ejercicio de intercomparación aparecen en el Apéndice A. La presentación de estos resultados en eventos científicos se muestra en los puntos B2 y B3 del Apéndice B.

5.2 Publicación No. 3

“Testing efficiency transfer codes for equivalence”.

5.2.1 Presentación de la publicación

Título: Testing efficiency transfer codes for equivalence.

Autores: T. Vidmar^a, N. Çelik^{a,b}, N. Cornejo Díaz^c, A. Dlabac^d, I. O. B. Ewa^e, J. A. Carrazana González^c, M. Hult^a, S. Jovanović^d, M-C. Lépy^f, N. Mihaljević^d, O. Sima^g, F. Tzika^h, M. Jurado Vargasⁱ, T. Vasilopoulou^{h,j}, G. Vidmar^k

Filiación: ^a European Commission, JRC, IRMM, Geel, Belgium.

^b Karadeniz Technical University, Trabzon, Turkey.

^c Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones, La Habana, Cuba.

^d University of Montenegro, Podgorica, Montenegro.

^e Ahmadu Bello University, Zaria, Nigeria.

^f Commissariat à l'Énergie Atomique, Gif sur Yvette Cedex, France.

^g Bucharest University, Bucharest, Romania.

^h National Centre for Scientific Research 'Demokritos', Athens, Greece.

ⁱ University of Extremadura, Badajoz, Spain.

^j National Technical University of Athens, Athens, Greece.

^k University Rehabilitation Institute, Ljubljana, Slovenia.

Revista: Applied Radiation and Isotopes.

Volumen: 68. Página inicial: 355 Página final: 359

Año de publicación: 2010

5.2.2 Informe

El artículo “Testing efficiency transfer codes for equivalence” fue publicado en la revista *Applied Radiation and Isotopes* en el año 2010. Ese año el factor de impacto de esta revista fue de 0,999, correspondiendo al puesto 15 (de un total de 35) dentro de la categoría “Nuclear Science and Technology”.

La participación del doctorando en este artículo ha sido muy elevada, al contribuir a demostrar la equivalencia de los diferentes códigos estudiados para efectuar calibraciones en eficiencia (mediante el uso del método de transferencia de eficiencias) en las medidas de muestras ambientales por espectrometría gamma. El doctorando estuvo vinculado al diseño del ejercicio de intercomparación, planificado en el marco de un Proyecto de Investigación Coordinado (CRP) de la IAEA en el cual el doctorando participó. Particularmente, el doctorando comprobó la equivalencia de DETEFF, comparado con códigos de uso general (GEANT 3.21, MCNP, PENELOPE y EGS4) y otros códigos específicos (GESPECOR, ETNA, ANGLE y EFFTRAN), para efectuar calibraciones en la determinación de radionucleidos con energías de emisión superiores a 45 keV en muestras ambientales. De este modo, se demostró la correcta utilización en DETEFF de los mecanismos de seguimiento de las partículas para los cálculos basados en la eficiencia absoluta en el pico de absorción total.

Todas las tareas desarrolladas por el doctorando han sido desarrolladas bajo mi dirección y supervisión, pudiendo dar fe de que todo lo aquí expuesto es verídico.

Fdo. El Director de la Tesis



Dr. D. Miguel Jurado Vargas

Todos los coautores de esta publicación son investigadores seniors que ya poseen el título de Doctor en sus respectivos países. Por esta razón, este trabajo no será empleado como parte de su Tesis Doctoral.

5.2.3 Copia de la publicación



Contents lists available at ScienceDirect

Applied Radiation and Isotopes

journal homepage: www.elsevier.com/locate/apradiso

Testing efficiency transfer codes for equivalence

T. Vidmar^{a,*}, N. Çelik^{a,b}, N. Cornejo Díaz^c, A. Dlabac^d, I.O.B. Ewa^e, J.A. Carrazana González^c, M. Hult^a, S. Jovanović^d, M.-C. Lépy^f, N. Mihaljević^d, O. Sima^g, F. Tzika^h, M. Jurado Vargasⁱ, T. Vasilopoulou^{h,j}, G. Vidmar^k

^a European Commission, JRC, IRMM, Geel, Belgium^b Karadeniz Technical University, Trabzon, Turkey^c Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones, La Habana, Cuba^d University of Montenegro, Podgorica, Montenegro^e Ahmadu Bello University, Zaria, Nigeria^f Commissariat à l'Énergie Atomique, Gif sur Yvette Cedex, France^g Bucharest University, Bucharest, Romania^h National Centre for Scientific Research 'Demokritos', Athens, Greeceⁱ University of Extremadura, Badajoz, Spain^j National Technical University of Athens, Athens, Greece^k University Rehabilitation Institute, Ljubljana, Slovenia

ARTICLE INFO

Article history:

Received 15 June 2009

Received in revised form

28 September 2009

Accepted 12 October 2009

PACS:

29.30.Kv

07.05.Tp

Keywords:

Gamma-ray spectrometry

High purity germanium detectors

Efficiency transfer method

Environmental radioactivity measurements

Intercomparison of different codes

ABSTRACT

Four general Monte Carlo codes (GEANT3, PENELOPE, MCNP and EGS4) and five dedicated packages for efficiency determination in gamma-ray spectrometry (ANGLE, DETEFF, GESPECOR, ETNA and EFFTRAN) were checked for equivalence by applying them to the calculation of efficiency transfer (ET) factors for a set of well-defined sample parameters, detector parameters and energies typically encountered in environmental radioactivity measurements. The differences between the results of the different codes never exceeded a few percent and were lower than 2% in the majority of cases.

© 2009 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Ever since its introduction by Moens et al. (1981), efficiency transfer (ET) has been a popular method of calculating full-energy-peak efficiencies (FEPE) of a sample of interest on the basis of an experimental efficiency curve measured on the same detector, but with a calibrated sample of different size, geometry, density or composition. The procedure saves time and resources, since sample-specific experimental calibration is avoided. It has proven especially useful in environmental measurements (Gilmore, 2008), where on the one hand ultimate precision in calibration necessary in metrological applications is usually not required and on the other

a variety of different sources might be measured by a laboratory carrying out a monitoring programme around a nuclear power plant, for example.

The method works by calculating a ratio of the efficiencies for the sample of interest and for the calibration sample and by multiplying it with the measured FEPE of the latter. A great advantage of the method, as pointed out and verified by its founders, is that in the calculated ratio many inaccuracies in the detector model can be expected to cancel out to a large degree, making it possible to work directly with non-optimized detector data supplied by the manufacturer. The cancellation of differences also applies to the interaction cross-section data that different implementations of the ET method may use and to their physical models of particle interaction and tracking.

The ET approach as described above can be carried out either by calculating the so-called virtual total efficiency ratios or the full-energy ones. In the former case, the method is based on the

* Corresponding author.

E-mail address: Tim.Vidmar@ec.europa.eu (T. Vidmar).¹ On leave from the Jožef Stefan Institute, Ljubljana, Slovenia.

assumption of the independence of the virtual total-to-peak ratio on the position, size, density and composition of the sample. The term virtual refers to efficiencies obtained without considering any scattering on the sample itself or the inactive parts of the detector. As such, the virtual FEPE efficiency is the same in value as its real counterpart (except for the effects of Rayleigh scattering), whereas the total virtual efficiency (sometimes called the effective solid angle) can only be calculated, not measured.

The constancy of the virtual peak-to-total ratio cannot be proven rigorously, but it was found experimentally to hold well (Erten et al., 1988). In addition, Vidmar and Likar (2004) demonstrated its validity for coaxial and thick planar detectors by means of Monte Carlo simulations with sufficient accuracy for its application to environmental measurements. In some ET codes preference is given to using calculated full energy peak efficiencies instead of total ones. This, however, requires full tracking of the primary and possibly secondary particles, making such a code much more involved than one based on Moens's original principle.

Although the ET method featured prominently and did well in an intercomparison of various calculation approaches to the efficiency determination in gamma-ray spectrometry, organized by Lépy et al. (2001), no study had ever been done into how compatible the different ET codes were with each other. In December 2008, the first Research Coordination Meeting of the International Atomic Energy Agency (IAEA) Coordinated Research Project "Benchmarking calibration for low-level gamma spectrometric measurements of environmental samples" was held at the IAEA Marine Environment Laboratories in Monaco. One of the conclusions of that meeting was that an intercomparison exercise on efficiency transfer (ET) codes was warranted, with the aim of establishing their equivalence and/or quantifying the differences between them. The users of different codes were thus asked to perform calculations of the ET factor for a set of well-defined sample and detector parameters. The exercise was supposed to bring to light the sources of potential differences between the codes and help establish general guidelines for stating the part of the uncertainty attributable to this sort of calculation method stemming from the inherent differences between its various implementations.

2. Method

The different ET codes considered were confronted with each other without any reference to experimental data and without any intention of eventually favouring one over the other. Rather, the potential differences between them were simply supposed to shed light on the problems in the field that may not have been apparent until now and give a "feeling" of how reliable such calculations are in ideal circumstances. For the performance of the ET method with respect to experimental data the reader is thus referred to the study of Lépy et al. (2001).

The intercomparison was partially spurred by a similar study on the use of Monte Carlo codes in gamma-ray spectrometry for direct calculation of the FEPE and total efficiencies (Vidmar et al., 2008). The crucial difference, though, is that the ET method, as explained above, uses ratios of calculated efficiencies, not their directly computed values.

The codes featuring in the intercomparison fell into two categories: specialised codes written specifically for efficiency calculations in gamma-ray spectrometry and general Monte Carlo simulation tools adapted to the task at hand. From the first group, the codes GESPECOR (Sima and Arnold, 2002), ETNA (Piton et al., 2000), DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008), ANGLE (Jovanović et al., 1997) and EFFTRAN (Vidmar, 2005) were tested. The representatives of the second group were GEANT 3.21 (Brun

Table 1
Detector parameters.

Parameter	Detector A	Detector B
Crystal type	p	N
Crystal material	Ge	Ge
Crystal diameter (including the side dead layer)	60	60
Crystal length (including the top dead layer)	60	60
Dead layer thickness (top and side)	1	0.0003
Hole diameter	10	10
Hole depth	40	40
Window diameter	80	80
Window thickness	1	0.5
Window material	Al	Be
Crystal-to-window distance	5	5
Housing length	80	80
Housing thickness	1	1
Housing material	Al	Al

All dimensions are given in millimetres (mm). The housing diameter is in all cases the same as the window diameter.

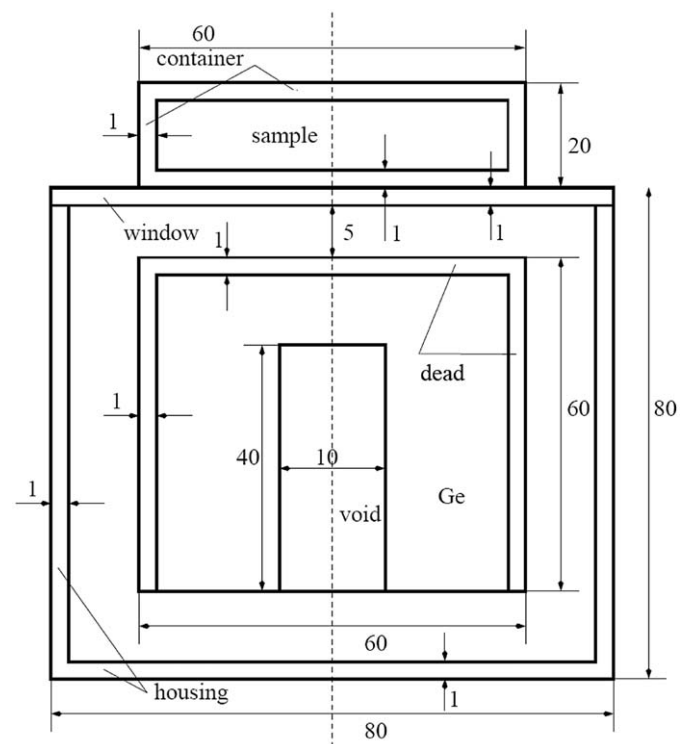


Fig. 1. A schematic presentation of the set-up for the case of the reference sample and the p-type detector model. All dimensions are given in millimetres (mm).

et al., 1987), MCNP (Briesmeister, 2000; X-5 Monte Carlo Team, 2003), PENELOPE (Salvat et al., 2003, 2008) and EGS4 (Nelson et al., 1985).

A p-type and an n-type detector model were considered, along with a set of well-defined sample geometries. In all the cases, a complete cylindrical symmetry of the sample-detector geometry was presumed. The parameters of the two HPGe detectors used in the study are given in Table 1 and a sketch of the p-type detector is also provided (Fig. 1). The two detectors are identical, except for the thickness of the dead layer and the material and thickness of the front window. The sources are described in Table 2 and the characteristics of various materials used in the constructions of the detector and sample models are given in Table 3. Each source

Table 2
Sample parameters.

Parameter	Reference	Point	Soil	Filter
Sample diameter (including the container)	60	0.0	90	80
Sample height (including the container)	20	0.0	40	3
Sample material	Water	–	Quartz	Cellulose
Container-to-detector-window distance	0.0	1.0	0.0	0.0

All dimensions are given in millimetres (mm). The container is in all cases, except for the point source, a plastic vessel of 1 mm thickness, tightly encasing the sample on all sides. The point source has no container. The filter geometry refers to a single air filter.

Table 3
Characteristics of various detector and sample materials.

Material	Density	Chemical formula
Ge	5.323	Ge
Al	2.700	Al
Be	1.848	Be
Water	1.000	H ₂ O
Quartz	1.400	SiO ₂
Cellulose	0.200	C ₆ H ₁₂ O ₆
Plastics (polystyrene)	1.050	C ₈ H ₉

All densities are given in g/cm³.

was embedded in a tightly fitting container and in the calculations the sources were all placed directly onto the detector window, except for the point source. For each of the possible detector–sample combinations, ET factors were computed for the following set of energies: 20, 45, 60, 80, 120, 200, 500, 1000 and 2000 keV. The lowest energy was only considered with the n-type detector. The participants were asked to keep the relative statistical uncertainty of all the reported results below 1%.

The ET factor was defined as the ratio of the calculated efficiencies for the sample geometry and the reference geometry. The reference geometry was in all cases that of a water solution in a plastic cylindrical container with a diameter of 60 mm and a height of 20 mm. The transfer from this reference source to the soil and filter geometries can quite realistically be expected to be carried out in practice, although the deviation of the latter geometries from the reference source is rather pronounced. On the other hand, the ET to the point configuration was only included as a demanding test of the codes and would not be recommended in practice.

The efficiencies calculated by the codes to arrive at the ET factors could be either full-energy ones or total efficiencies, depending on the way a given code works. In the latter case, the validity of the theorem on the independence of the virtual total-to-peak ratio was invoked, as explained above. Table 4 shows the codes, their basic characteristics and the ways in which they were applied.

3. Results and discussion

Sixteen sets of data were gathered from the participants and their main characteristics are presented in Table 4. Some participants submitted more than one data set. By a set of data, a complete table of the ET factors for all the required detector models, samples and energies is meant.

Table 4
The various combinations of the codes, their types and the ET implementations considered in the study.

Computer code	ET implementation		Code type	
	FEPE	TE	Specialized	General
ANGLE		x	x	
DETEFF 4.2	x	x	x	
EFFTRAN		x	x	
ETNA		x	x	
EGS4	x			x
GEANT 3.21	x	x		x
GESPECOR 4.2	x		x	
MCNP4C	x			x
MCNP5	x			x
MCNPX	x			x
PENELOPE 2003	x			x
PENELOPE 2008	x			x
PENELOPE PENCYL	x			x

Table 5
The mean value of the ET factors for each energy, detector model and sample type calculated by averaging over all the data sets submitted by the participants.

Energy	Point sample, detector A	Point sample, detector B	Soil sample, detector A	Soil sample, detector B	Filter sample, detector A	Filter sample, detector B
20		3.674		0.087		2.070
45	1.719	2.336	0.283	0.313	0.925	1.370
60	1.897	2.286	0.354	0.379	1.014	1.337
80	2.088	2.279	0.398	0.417	1.110	1.324
120	2.254	2.302	0.438	0.447	1.205	1.317
200	2.265	2.281	0.476	0.478	1.256	1.313
500	2.149	2.164	0.519	0.519	1.256	1.290
1000	2.063	2.082	0.545	0.544	1.247	1.271
2000	1.998	2.009	0.568	0.564	1.237	1.256

Tables 5–7 in which each cell corresponds to an entry in the data sets, summarize the results of the exercise. For each detector–sample configuration and energy the mean of the ET factors was first calculated over all the 16 data sets (Table 5), and then the standard deviation of this population was determined. The ratio of the standard deviation to the mean ET value is presented in Table 6. Only one value of this ratio higher than 2% was observed and only three others were higher than 1%. The minimum value of the ratio is 0.29%, while its mean value across energies and samples is 0.75%. In Table 7 the absolute value of the maximum deviation of the population (in either positive or negative direction, whichever is larger) of the ET factors from its mean is shown as percent of the mean. These values provide an estimate of the total spread of the results within a population. Again, only a few reach above 2% and all are associated with low energies.

It can therefore be claimed that the results of the different codes agree with each other within their respective statistical uncertainties. It is true that for the lowest energy considered, especially with the n-type detector model, the mean difference reaches 2% and the maximum deviation 8%. However, on the one hand, one can safely argue that the ET factor for the energy of 20 keV is rarely required in environmental measurements. On the other hand, the agreement between the codes at higher energies points to proper and equivalent treatments of the mechanisms of

Table 6
Standard deviation of the population of the ET factors, as percent of its mean.

Energy	Point sample, detector A	Point sample, detector B	Soil sample, detector A	Soil sample, detector B	Filter sample, Detector A	Filter sample, detector B
20		1.4		2.5		1.2
45	0.5	0.9	0.9	0.5	0.9	0.8
60	0.6	0.5	0.9	0.9	1.0	0.5
80	0.6	0.4	0.9	0.7	0.8	0.5
120	0.5	0.4	0.7	0.5	0.6	0.6
200	0.7	0.7	0.6	0.6	0.6	0.8
500	0.8	0.9	0.8	0.3	0.6	0.9
1000	0.7	1.1	0.5	0.5	0.8	0.9
2000	0.7	1.0	0.7	0.6	0.8	0.8

The value exceeding 2% is marked in bold. The averaging and the standard deviation calculation were done over all the data sets (see text).

Table 7
The maximum deviation of the population of the ET factors from its mean, as percent of the mean.

Energy	Point sample, detector A	Point sample, detector B	Soil sample, detector A	Soil sample, detector B	Filter sample, detector A	Filter sample, detector B
20	–	–3.1	–	–7.6	–	–3.4
45	1.2	–1.7	3.1	1.3	2.2	1.4
60	1.2	–1.1	1.9	–2.3	2.5	–1.0
80	–1.1	–1.0	–2.0	–1.6	2.0	–1.1
120	0.9	–0.8	–1.8	–1.6	1.2	1.1
200	–1.1	–1.4	–1.2	–1.6	1.1	1.4
500	–1.3	–1.9	1.7	0.5	1.1	1.5
1000	–1.6	–2.0	–0.8	1.2	–1.4	1.5
2000	–1.9	–1.9	–1.5	0.8	–1.4	–1.3

Values exceeding 2% in absolute value are marked in bold.

particle tracking (FEPE calculations) and integration (virtual TE computations). The most likely cause for the discrepancies at the very low energies are differences in the interaction data (absorption coefficients) used in the individual codes. When it comes to direct computations of efficiencies with the Monte Carlo method, the same effect has been observed (Vidmar et al., 2008) and its origins traced to the use of different interaction cross sections (Sima and Arnold, 2009). The differences could also be caused by variations in the handling of the data near an absorption edge. The materials that we tested (Table 3) lack any high-Z component so the issue remains to be investigated. This includes the possibility for increased differences between the codes for special materials like industrial waste, or for soil samples, if high-Z compounds are part of their composition.

For all but the lowest energies the results are very favourable and the maximum deviations low, which signals the absence of any significant outliers. It should also be borne in mind that some sample geometries considered differ quite significantly from the reference geometry, perhaps more so than is usually the practice. The study therefore testifies to the equivalence of all the different computer codes employed when it comes to the application of the ET method to environmental measurements. This gives confidence in its results and limits the extent of the systematic uncertainty stemming from the various implementations of the method that can be ascribed to its results to a couple of percent, which is perfectly satisfactory for this sort of applications.

The execution times of the different codes were also reported by the participants and they varied greatly—from a few seconds to

several hours—when computing the ET factors for all the energies and a given sample geometry. This result is due to many causes, above all the fact that several participants exceeded the required relative statistical accuracy of 1% in their calculations. In addition, the execution time depends on such factors as the processor type and clock frequency, the amount of the installed memory and the settings of the particular software. In spite of all these caveats, a general observation is warranted that the dedicated software packages did the job on average much faster than the general purpose Monte Carlo codes. This is because the dedicated codes by default employ various variance reduction techniques, starting with the cylindrical symmetry of the set-up, and because they only transport photons and electrons. General purpose packages are in this regard disadvantaged by their more complex physics and particle tracking. They can of course also be used in modes which optimize the execution time with various variance reduction techniques, but this requires advanced knowledge of their use and was in any case not applied in our study.

4. Conclusion

It has been demonstrated that for the purpose of environmental measurements, the most widely used general MC packages and the specialized software for efficiency calculations can all be considered equivalent when used to realise the ET method with gamma-ray energies higher than 45 keV. It remains to be investigated whether this also applies to high-Z materials, such as industrial waste, when measuring gamma rays with energies lower than 100 keV. Within the statistical uncertainties of the results (1%), no systematic difference was found between the codes that base the ET calculation on FEPE and those that utilize (virtual) total efficiencies. These findings can give the user confidence in the method itself and in its different implementations.

Acknowledgements

The authors are indebted to Iolanda Osvath, Paul Martin, Stefaan Pommé and Uwe Wätjen, for careful reading of the manuscript and fruitful discussion of the topics considered. The work was carried out as part of and with the financial support of the IAEA Coordinated Research Project no. 1471 (K41011) “Benchmarking calibration for low-level gamma spectrometric measurements of environmental samples”.

References

- Briesmeister, J.F., 2000. MCNP—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code. Version 4C, CCC-700, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico.
- Brun, R., Bruyant, F., Maire, M., McPherson, A.C., Zanarini, P., 1987. GEANT3. CERN Data Handling Division, Geneva.
- Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: an improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods A* 586, 204–210.
- Erten, H.N., Aksoyoglu, S., Göktürk, H., 1988. Efficiency calibration and summation effects in gamma-ray spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 125, 3–10.
- Gilmore, G.R., 2008. *Practical Gamma-ray Spectrometry*, second ed Wiley, New York.
- Jovanović, S., Dlabac, S., Mihaljević, N., Vukotić, P., 1997. ANGLE—a PC-code for semiconductor detector efficiency calculations. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218, 13–20.
- Lépy, M.-C., et al., 2001. Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 55, 493–503.
- Moens, L., De Donder, J., Xi-lei, L., De Corte, F., De Wispelaere, A., Simonits, A., Hoste, J., 1981. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 187, 451–472.
- Nelson, W.R., Hirayama, H., Rogers, D.W.O., 1985. SLAC Report 265.

- Piton, F., Lépy, M.-C., Bé, M.-M., Plagnard, J., 2000. Efficiency transfer and coincidence summing corrections for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 52, 791–795.
- Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J., 2003. PENELOPE-2003: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.
- Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J., 2008. PENELOPE-2008: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.
- Sima, O., Arnold, D., 2002. Transfer of the efficiency calibration of germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. *Applied Radiation and Isotopes* 56, 71–75.
- Sima, O., Arnold, D., 2009. On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. *Applied Radiation and Isotopes* 67, 701–705.
- Vidmar, T., 2005. EFFTRAN—a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods A* 550, 603–608.
- Vidmar, T., Likar, A., 2004. On the invariability of the total-to-peak ratio in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 60, 191–195.
- Vidmar, T., et al., 2008. An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 66, 764–768.
- X-5 Monte Carlo Team, 2003. MCNP—a general Monte Carlo N-particle transport code, version 5, LA-UR-03-1987, April 2003.

Capítulo 6

Calibración en eficiencia para la determinación de radionucleidos depositados en el terreno (“in situ”)

6.1 Introducción

La determinación de radionucleidos depositados en el terreno puede ser desarrollada a través del análisis en el laboratorio de muestras tomadas en el sitio de interés, y mediante medidas por espectrometría gamma realizadas directamente en el lugar objeto de investigación (“in situ”). La caracterización en base a la toma de muestras, aunque permite conocer la distribución horizontal y vertical del radionucleido de interés en el terreno, tiene asociada varios inconvenientes. Uno de los principales problemas de este método está relacionado con la representatividad de las muestras. Al comparar los resultados de las medidas “in situ” con el de muestras colectadas y analizadas en el laboratorio, algunos autores [Hummel et al., 1996] encontraron grandes diferencias entre ellos, atribuyendo la causa a la no homogeneidad de la distribución espacial de actividad en el terreno. En este sentido, un trabajo previo [Ferguson, 1995] estimó el número de muestras necesarias para determinar una contaminación en el terreno con un determinado nivel de confianza. Según lo planteado en ese trabajo, a modo de ejemplo, se requerirían aproximadamente 200 muestras para encontrar una contaminación de forma circular (con un diámetro de 35 cm) en un área de 10 m² con un nivel de confianza de 95%. El análisis de tantas muestras lleva consigo, además, largos tiempos de medida para la obtención de los valores medios de actividad depositada en el terreno.

La espectrometría gamma “in situ” con detectores HPGe es una técnica bien establecida, rápida y fiable, que permite la detección, identificación y determinación cuantitativa de radionucleidos en el medioambiente. Esta técnica se utiliza en muchos campos de investigación, entre los cuales están la exploración geofísica, la evaluación de la dosis que recibe la población debida a la precipitación radiactiva (“fallout”), y la determinación de tasas de erosión en suelos [Tyler et al., 1996; Álvarez et al., 2000; Gutiérrez-Villanueva et al., 2008]. Una descripción completa de la técnica de

espectrometría gamma “in situ” aparece en los trabajos de Beck et al. [1972], Finck [1992] y en el Reporte 53 de la Comisión Internacional de Unidades y Medidas Radiológicas [ICRU, 1994].

Las medidas “in situ” son particularmente útiles en la determinación de actividad específica, o deposición de actividad, en el terreno. En esta aplicación, el detector (no colimado) se ubica generalmente a una altura de un metro (con la ventana hacia abajo) sobre la superficie del terreno, y registra los fotones emitidos por una muestra de suelo de gran tamaño (con un área de varios cientos de metros cuadrados). La integración del flujo de fotones en toda el área medida permite que se obtengan valores medios de deposición de actividad más fiables. Con esta geometría de medida es posible detectar los radionucleidos depositados en la superficie del suelo (deposición fresca), y aquellos (principalmente los que emiten fotones de alta energía) que han penetrado cierta profundidad en el mismo.

Una de las principales dificultades para la aplicación de la espectrometría gamma “in situ” la constituye la calibración en eficiencia. En la práctica no es factible preparar patrones de calibración con las mismas dimensiones y características del terreno, que se ajusten a cada situación específica de las medidas “in situ”. Por esta razón se estableció un método de calibración [Beck et al., 1972], en condiciones de laboratorio, basado fundamentalmente en la determinación de la eficiencia intrínseca del detector, y de los factores de corrección que toman en consideración su respuesta angular, y la distribución espacial de la fuente.

Al efectuar este tipo de calibración, denominada semiempírica [Beck et al., 1972; ICRU, 1994], la distribución de radionucleidos en el terreno puede ser asumida, o también estimada a través de la medida en el laboratorio de algunas muestras colectadas en el lugar de interés. La fluencia de fotones en el detector, para una distribución de radionucleidos determinada, se calcula de forma analítica. La eficiencia intrínseca y la respuesta angular del detector, se obtienen usando fuentes puntuales (con diferentes energías de los fotones), las cuales son medidas a una distancia fija del detector (usualmente a 1m), y a diferentes ángulos azimutales de incidencia (cero grados para la eficiencia intrínseca), con respecto al eje de simetría del detector [Nir-El y Sima, 2005]. Algunos autores [Boson et al., 2006] han propuesto un método de calibración semiempírico diferente, en el cual la eficiencia intrínseca del detector, y la dependencia angular de su respuesta, se integran en un solo término denominado eficiencia del detector. Este método, además, considera que la distribución de radionucleidos en el terreno se describe por un modelo de capas, cada una de las

cuales tiene un espesor y una densidad específicos, así como una fracción de la actividad total del radionucleido distribuida de forma homogénea.

El desarrollo de las calibraciones semiempíricas se puede ver limitado, muchas veces, porque los laboratorios analíticos dedicados a las medidas por espectrometría gamma “in situ”, no cuentan con un conjunto de fuentes puntuales de elevada actividad que cubran el rango energético de interés. En general, el procedimiento de calibración experimental suele ser largo y tedioso, siendo necesaria la realización de numerosas medidas.

La simulación Monte Carlo constituye la opción más efectiva y de menor coste para desarrollar las calibraciones en eficiencia en las medidas “in situ” [Gering, et al., 1998; Likar, et al., 2004; Boson, et al., 2009; Hurtado y Villa, 2010]. Esto es debido a la posibilidad de realizar (en cortos períodos de tiempo) calibraciones con diferentes distribuciones de radionucleidos en el terreno, en diversas condiciones de medida, incluyendo geometrías no simétricas, las cuales son difíciles de evaluar de forma analítica [Boson et al., 2009].

La mayoría de los trabajos relacionados con la aplicación de la simulación Monte Carlo para la calibración en eficiencias en la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma “in situ”, han usado códigos generales para ese fin [Likar, et al., 2004; Gutiérrez-Villanueva et al., 2008; Boson et al., 2009, Tzika et al., 2010; Hurtado y Villa, 2010]. Son pocas, sin embargo, las referencias sobre el empleo de códigos específicos para la calibración en eficiencias, o para el estudio de algún factor vinculado a esta, en las medidas “in situ”. El trabajo de Hurtado y Villa [2010] muestra una comparación entre el programa comercial LabSOCS [Canberra, 2002] y el código general GEANT4 [Agostinelli et al., 2003; Hurtado et al., 2004] en la determinación de los radionucleidos presentes en un plano de concreto de dimensiones específicas. Este trabajo destaca, como uno de los principales inconvenientes asociados al uso de LabSOCS, la necesidad de que el detector sea caracterizado por Canberra, lo cual lleva consigo un alto coste, e impide que el usuario pueda ajustar determinados parámetros del mismo. Nir-El y Sima [2005], por otra parte, estudiaron la respuesta angular de un detector HPGe, ubicado a diferentes alturas del terreno, utilizando la versión extendida del programa GESPECOR [Sima, 2002].

Según nuestro conocimiento actual, aún no se ha aplicado ningún código específico para realizar calibraciones en eficiencia asociadas a la determinación de deposición de radionucleidos en el terreno. La utilización de códigos específicos para ese fin, ofrece la ventaja de que los mismos son de fácil uso, y tienen asociados menores tiempos de

simulación, con precisiones semejantes a las alcanzadas empleando códigos generales. Sin embargo, para obtener calibraciones en eficiencia fiables, se requiere la validación del código específico utilizado en este tipo de aplicación.

El código específico de simulación Monte Carlo DETEFF ha sido ampliamente validado para las geometrías de medida usadas en los laboratorios analíticos dedicados a la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma [Jurado Vargas, et al., 2002; Jurado Vargas, et al., 2003; Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008; Cornejo Díaz et al., 2010; Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2010; Vidmar et al., 2010]. Sin embargo, este código no ha sido validado para geometrías menos eficientes como las encontradas en las determinaciones “in situ”, en las cuales se suelen medir muestras de gran tamaño ubicadas a grandes distancias del detector.

El trabajo presentado en este capítulo estudia la aplicabilidad del código DETEFF [Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008] para la calibración en eficiencia asociada a la determinación “in situ” de niveles de actividad depositada en el terreno. Con ese objetivo, DETEFF se utilizó en un ejercicio consistente en la evaluación de los niveles de actividad de ^{137}Cs depositados en cuatro sitios diferentes, comparando luego los resultados obtenidos con los publicados [Boson et al., 2009]. Los datos publicados están basados en la medida en el laboratorio de muestras de suelo tomadas en cada uno de los sitios, y en determinaciones realizadas por espectrometría gamma “in situ” utilizando diferentes métodos de calibración en eficiencia: semiempírico y por simulación Monte Carlo empleando el código general MCNP5 v. 1.40 (Los Alamos National Laboratory, USA). Las calibraciones en eficiencia, con ambos métodos, se desarrollaron asumiendo el modelo de tres capas [Boson et al., 2006] para describir las características del suelo y la distribución de actividad del radionucleido en el mismo.

Para las simulaciones con DETEFF se reprodujeron las condiciones del ejercicio de Boson et al. [2009], considerando que el detector estaba ubicado a 1m de la superficie del suelo, y utilizando también el modelo de tres capas [Boson et al., 2006]. Esto fue posible porque este código asume una distribución homogénea del material radiactivo en el volumen de la fuente. Se consideró una geometría cilíndrica para la fuente (con un radio de 30 metros), estando conformado nuestro modelo por tres secciones cilíndricas superpuestas, teniendo cada una de ellas un espesor específico, una densidad uniforme, y una fracción de la actividad total distribuida homogéneamente. En cada uno de los sitios estudiados, el factor de calibración para la medida “in situ” de deposición de actividad, se calculó en base a las eficiencias (en el pico de absorción

total) correspondientes a cada sección, determinadas tomando en consideración (según fuese el caso) la atenuación de los fotones en las otras secciones y en el aire.

Los resultados de este ejercicio, publicados en la revista “*Applied Radiation and Isotopes*”, y presentados en un evento internacional (Ver punto B2 del Apéndice B), mostraron que los valores de deposición de actividad calculados empleando el código específico DETEFF son equivalentes a los obtenidos en base a la medida de muestras en el laboratorio, y a las determinaciones “in situ” empleando diferentes métodos de calibración en eficiencia (semiempírico y por simulación Monte Carlo usando MCNP5). Las diferencias encontradas están dentro del rango de incertidumbres de las medidas. En correspondencia con estos resultados, es posible asumir que DETEFF puede ser usado para la calibración en eficiencias asociada a la determinación de deposición de actividad en el terreno usando el modelo de capas. Este modelo considera una distribución homogénea de actividad en las muestras, preferentemente en casos en que el terreno no presente muchas irregularidades, y cuando no exista abundante presencia de árboles en el mismo (siendo esto particularmente importante en la detección de radionucleidos de baja energía).

La posibilidad de efectuar calibraciones en eficiencia con DETEFF, en cortos períodos de tiempo, para la determinación de la actividad depositada en el terreno, tiene una gran importancia en la respuesta a situaciones de emergencia radiológica. En esos casos se justifica el hecho de realizar determinadas suposiciones, principalmente la relacionada con la distribución de los radionucleidos en el terreno, con el fin de obtener resultados con la mayor brevedad.

6.2 Publicación No. 4

“Application of the Monte Carlo code DETEFF to efficiency calibrations for in situ gamma-ray spectrometry”.

6.2.1 Presentación de la publicación

Título: Application of the Monte Carlo code DETEFF to efficiency calibrations for in situ gamma-ray spectrometry.

Autores: 1. Jorge A. Carrazana González^a

2. Néstor Cornejo Díaz^a

3. Miguel Jurado Vargas^b

Filiación: ^a Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR), La Habana, Cuba.

^b Departamento de Física, Universidad de Extremadura, Badajoz, España.

Revista: Applied Radiation and Isotopes.

Volumen: 70. Página inicial: 868 Página final: 871

Año de publicación: 2012

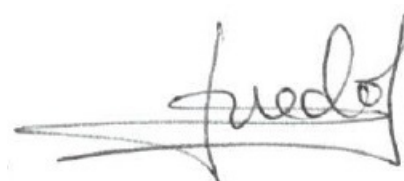
6.2.2 Informe

El artículo “Application of the Monte Carlo code DETEFF to efficiency calibrations for in situ gamma-ray spectrometry” fue publicado en la revista *Applied Radiation and Isotopes* en el año 2012. Ese año el factor de impacto de esta revista fue de 1,179, correspondiendo al puesto 10 (de un total de 34) dentro de la categoría “Nuclear Science and Technology”.

La participación del doctorando en este artículo ha sido muy importante con el objetivo de demostrar la aplicabilidad del código DETEFF, usando el modelo de capas, para efectuar calibraciones en eficiencia asociadas a la determinación de actividad depositada en el terreno por espectrometría gamma “in situ”. En este sentido, el doctorando seleccionó el ejercicio a realizar para validar el empleo de DETEFF en esta aplicación, consistente en la determinación de los niveles de actividad de ^{137}Cs depositados en cuatro localizaciones con características diferentes, comparando luego los resultados obtenidos con los publicados. Junto con los otros autores, el doctorando comprobó que los niveles de deposición de actividad calculados usando DETEFF eran semejantes (dentro del rango de incertidumbre de las medidas) a los obtenidos en base al análisis de muestras en el laboratorio, y a las determinaciones “in situ” empleando diferentes métodos de calibración en eficiencia (semiempírico y por simulación Monte Carlo usando MCNP5). El doctorando demostró la aplicabilidad de DETEFF para desarrollar calibraciones en eficiencia rápidas en la respuesta a situaciones de emergencia radiológica que involucren la deposición de radionucleidos en el terreno. En este tipo de situaciones se justifica realizar determinadas suposiciones (como la relacionada con la distribución de radionucleidos en el terreno) con el fin de disponer de resultados con la mayor brevedad posible.

Todas las tareas desarrolladas por el doctorando han sido desarrolladas bajo mi dirección y supervisión, pudiendo dar fe de que todo lo aquí expuesto es verídico.

Fdo. El Director de la Tesis



Dr. D. Miguel Jurado Vargas

Los coautores de esta publicación ya poseen el título de Doctor. Por esta razón, este trabajo no será utilizado en su Tesis Doctoral.

6.2.3 Copia de la publicación



Application of the Monte Carlo code DETEFF to efficiency calibrations for in situ gamma-ray spectrometry

J. Carrazana González^a, N. Cornejo Díaz^a, M. Jurado Vargas^{b,*}

^a Centre for Radiological Protection and Hygiene, P.O. Box 6195, Habana, Cuba

^b Departamento de Física, Universidad de Extremadura, 06071 Badajoz, Spain

ARTICLE INFO

Article history:

Received 3 June 2011

Received in revised form

10 January 2012

Accepted 20 January 2012

Available online 1 February 2012

Keywords:

In situ gamma-ray spectrometry

Efficiency calibration

DETEFF

HPGe detectors

Monte Carlo methods

ABSTRACT

We studied the applicability of the Monte Carlo code DETEFF for the efficiency calibration of detectors for in situ gamma-ray spectrometry determinations of ground deposition activity levels. For this purpose, the code DETEFF was applied to a study case, and the calculated ¹³⁷Cs activity deposition levels at four sites were compared with published values obtained both by soil sampling and by in situ measurements. The ¹³⁷Cs ground deposition levels obtained with DETEFF were found to be equivalent to the results of the study case within the uncertainties involved. The code DETEFF could thus be used for the efficiency calibration of in situ gamma-ray spectrometry for the determination of ground deposition activity using the uniform slab model. It has the advantage of requiring far less simulation time than general Monte Carlo codes adapted for efficiency computation, which is essential for in situ gamma-ray spectrometry where the measurement configuration yields low detection efficiency.

© 2012 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

There are two recognized methods for the determination of radionuclide ground deposition levels in the environment: soil sampling and in situ gamma ray spectrometry using high-purity germanium (HPGe) detectors.

Soil sampling can provide information about the horizontal and vertical distributions of the radionuclide of interest. However, this approach is time consuming and numerous samples are usually required in order to obtain consistent mean values for the ground deposition levels over large areas.

In situ gamma-ray spectrometry, on the other hand, is considered a quick and reliable method for the determination of radionuclides in the environment. In the case of ground-level gamma-ray spectrometry, the detector is usually located at a height of 1 m above ground and the spectrum of the ambient gamma radiation is collected. The power of such measurements lies in the fact that the detector, positioned above the ground surface, measures the gamma radiation originating from an area of several hundred square meters. This integration of the photon flux over the entire measured area permits more reliable mean values of ground depositions to be obtained.

In order to obtain a value for the ground deposition level in a specific area, efficiency calibration of the detector is necessary.

To perform this task, knowledge or assumptions about both the radionuclide depth distribution and the soil density are required. These data are obtained by soil sampling, with the number of samples being a trade-off between the uncertainty and the costs of the sampling and the sampling evaluation processes.

Experimental efficiency calibration of detectors for in situ gamma-ray spectrometry is a difficult and time consuming task, because a large number of standards and measurements are required to cover the range of experimental settings encountered in the field. In order to overcome these difficulties, several semi-empirical methods (e.g., ICRU, 1994; Boson et al., 2006) and Monte Carlo procedures (e.g., Gering et al., 1998; Likar et al., 2004; Boson et al., 2009) have been suggested for calculating in situ measurement calibration factors. In this sense, the Monte Carlo method seems to be the more cost-effective and flexible option, facilitating the estimation of calibration factors for a much wider variety of source distributions and measurement geometries. However, no reliable results can be obtained without comprehensive validation of the Monte Carlo model.

The Monte Carlo code DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008, 2010a) was designed for the calculation of the full-energy peak (FEP) efficiency in typical coaxial gamma-ray detectors: NaI, CsI, Ge(Li), HPGe, and Si(Li). Although the program has been thoroughly validated for relatively small sources, measured close to the detector, i.e., in the “efficient” counting geometries used in analytical laboratories (Jurado Vargas et al., 2002, 2003; Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2010a; Vidmar et al., 2010), no validation exercise has been carried out so far for in situ measurements, where large area radiation sources situated far away from the detectors

* Corresponding author. Tel.: +34 924289537; fax: +34 924289651.
E-mail address: mjv@unex.es (M. Jurado Vargas).

need to be simulated. In these conditions, the code DETEFF can be a suitable tool because of its reduced simulation time compared with other general Monte Carlo codes applied to efficiency calculations.

In this work we studied the applicability of the Monte Carlo code DETEFF for the efficiency calibration of detectors for in situ determinations of ground deposition activity levels by gamma-ray spectrometry. The code was used to replicate the calculations of a study case and the obtained activity deposition levels were compared with the published values.

2. Use of DETEFF for in situ gamma-ray spectrometry

DETEFF assumes a homogeneous distribution of the radioactive material inside the source volume. For this reason, the uniform slab model proposed by Boson et al. (2006) was adopted to describe the activity depth distribution used for the calculation of the in situ measurement calibration factors. In our model, the source consists of cylindrical slabs, in which each slab has a defined individual thickness, homogeneous density, and fraction of the total homogeneously distributed activity. The schematic description of the model is presented in Fig. 1.

The FEP efficiency calculations must then be carried out for each slab at a given site. According to Fig. 1, the slabs can be simulated as cylindrical sources and the corresponding calibration factor for the in situ measurement of the ground deposition activity is given by the right-hand side in the expression:

$$\frac{A_S}{C_r} = \left(\gamma S \sum_{k=1}^N \varepsilon_k a_k \right)^{-1} \quad (1)$$

with A_S being the ground deposition activity per unit area (Bq m^{-2}), C_r the FEP count rate (s^{-1}), γ the photon emission probability (yield) for a particular energy, S the surface of the measured area, i.e., the area of the front side of the cylindrical slabs (m^2), ε_k the FEP efficiency corresponding to slab k for a particular energy, and a_k the fraction of the total radionuclide inventory contained in slab k . The summation occurs over the N layers or slabs of the model.

The program DETEFF allows the possibility of considering the photon attenuation caused by any material placed between

the source and detector. Therefore, during the simulations for slab $k=n$ ($1 < n \leq N$), the attenuation caused by the slabs above (from $k=1$ to $n-1$) and the air can be considered by defining a hypothetical filter, with an effective linear attenuation coefficient given by the following expression:

$$\mu_{\text{Filter for slab } n} = \frac{\mu_{\text{air}}^m \rho_{\text{air}} d_{\text{air}} + \sum_{k=1}^{n-1} \mu_k^m \rho_k d_k}{d_{\text{air}} + \sum_{k=1}^{n-1} d_k} \quad (2)$$

where μ_{air}^m , ρ_{air} , and d_{air} denote the mass attenuation coefficient (without coherent scattering), the density, and the thickness of the layer of air between the bottom of the detector and the ground surface, respectively. μ_k^m , ρ_k , and d_k denote the same parameters for the k -th soil slab. The thickness of this hypothetical filter is $d_{\text{air}} + \sum_{k=1}^{n-1} d_k$.

This uniform slab model to be used with the code DETEFF does not consider the effects caused by the ground curvature and the presence of trees at the sites evaluated. The effects of ground curvature and the attenuation of photons caused by trees in the field of view of the detector were studied by Boson (2008) for 661.7 keV. The authors found that these effects were comparable with the combined uncertainty of in situ measurements on a plane surface. Similar results were obtained by Laedermann et al. (1998) for the attenuation in vegetation, the reported value being about 5% for 660 keV. It must be noted that the proposed uniform slab model is not intended for fresh fallout, in which case the activity deposition on tree crowns could be significant.

A previous work (Cornejo Díaz et al., 2010b) showed that the Mersenne Twister random number generator, incorporated in the code DETEFF, seems to be adequate for the simulations of the “less efficient” measurement setups encountered during in situ gamma-ray spectrometry.

3. Study case chosen for validation

The study case selected for this validation of the DETEFF code was the work published by Boson et al. (2009), which evaluated the ^{137}Cs ground deposition activity levels corresponding to 20-year-old fallout at five sites in Sweden. The determinations were carried out by the authors by soil sample measurements and by in situ measurements using both semi-empirical and Monte Carlo calibrations. In both calibration methods the authors used the three-layer model (Boson et al., 2006), previously proposed for the description of soil density and activity depth distribution. For the Monte Carlo simulations, the code MCNP5 v. 1.40 (Los Alamos National Laboratory, USA) was used.

Two different p-type HPGe detectors were used for the in situ measurements at the five sites. Nevertheless, only the characteristics of one of these detectors, used at four of the sites, were provided by the authors (see Table 1). We therefore used the results of these four

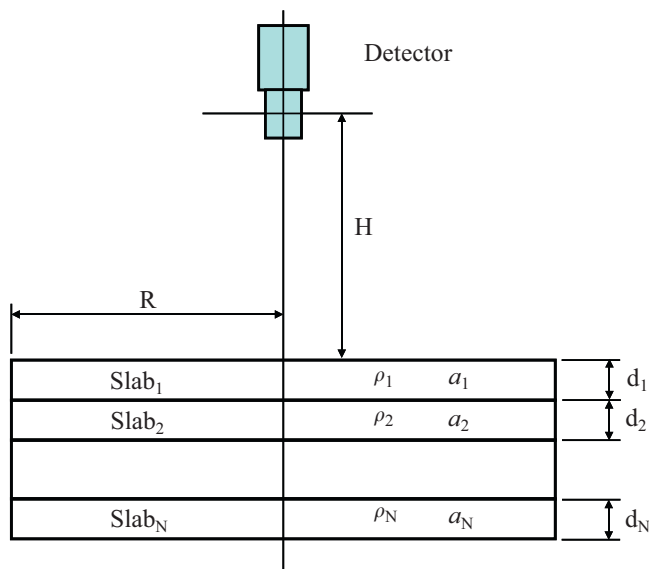


Fig. 1. Model used with the code DETEFF for the calculation of calibration factors for in situ measurements, where d_k , a_k , and ρ_k denote the thickness, the activity fraction, and the density of the slab k , respectively. H denotes the height of the center of the active detector volume above the ground and R the radius of the cylindrical slabs.

Table 1
Dimensions of the HPGe detector used for in situ measurements (Boson et al., 2008).

Characteristic	Value (mm)
Ge crystal diameter	58.3
Ge crystal length	65.4
Ge dead layer (front and lateral)	0.7
Core diameter	10.5
Core depth	53.4
Radius of the upper edge rounding	8.0
Distance from crystal to Al cover	4.0
Al cover diameter	69.6
Al cover thickness (front and lateral)	1.27
Al holder thickness (front)	0.025
Al holder thickness (lateral)	0.5

sites, for which the measurement setup had been completely described.

The Monte Carlo simulations of the detectors were made using the data supplied by the manufacturer, although the efficiency values were finally adjusted with a detector-specific correction factor of 1.180 ± 0.032 to correct the overestimates attributed to the inaccuracies in the manufacturer's data.

The main characteristics of the studied sites, relevant for the calculation of the calibration factors for the in situ measurements, are presented in Boson et al. (2009) and are summarized in Table 2. The activity fractions and the corresponding uncertainties were calculated by us from the activity sampling data published. It should be noted that some uncertainties of the slab thicknesses were not provided by the authors.

During the in situ measurements, the detector was placed on a tripod so that the geometric center of the germanium crystal was positioned 1 m above ground. A 30 m cut-off radius of the source was used in all in situ simulations, corresponding to a simulated source area of about 2800 m².

4. Results of ¹³⁷Cs ground deposition obtained with DETEFF

In this work, the ¹³⁷Cs ground depositions (A_s) at the sites of the study case were estimated using Eqs. (1) and (2). Three FEP efficiency values were then calculated for each site using the Monte Carlo code DETEFF.

For the simulations we adopted the same parameters of the study case. Consequently, the input data for the simulations of detector and source matrix were taken from Tables 1 and 2, respectively, and the FEP efficiency values were finally corrected dividing the calculated efficiencies by the corresponding detector-specific correction factor. The value adopted for the photon emission probability (γ) of the ¹³⁷Cs gamma energy (661.7 keV) was 0.850 ± 0.002 (Bé, 2011), and for the mass attenuation coefficients (without coherent scattering) of soil and air we used the values $7.754 \times 10^{-2} \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1}$ and $7.703 \times 10^{-2} \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1}$, respectively, with a standard uncertainty less than 2% according to Berger et al. (1999).

The FEP count rates (C_r) required to calculate the ground deposition activity at each site, using Eq. (1), were taken from Boson (2010) and are summarized in Table 3. The combined standard uncertainty of the ground deposition activity was estimated in accordance with GUM (ISO, 1995), propagating the standard uncertainties of the parameters in expression (1). The uncertainty in ε_k due to the uncertainties in soil slab thicknesses and attenuation coefficients was estimated with DETEFF by investigating the sensitivity of ε_k with respect to changes in these parameters. The same random number seeds, i.e., the same random number sequences, were used to obtain correlated statistical uncertainties, and consequently a direct dependence of the differences in the observed efficiency results regarding the variation of the studied parameters. In order to obtain the

combined standard uncertainty of ε_k , the statistical uncertainty of the simulation and the uncertainty of the detector-specific correction factor were added. The effect of soil slab thickness variation was not evaluated for sites A and D, for which the corresponding standard deviations were not provided (see Table 2).

According to Boson et al. (2009), the uncertainty introduced by the description of the source matrix as three discrete homogeneous layers is about 8.7% for this case. In order to derive more realistic results, this uncertainty value was propagated with the uncertainty of the ground deposition activity obtained from expression (1).

The FEP efficiency values obtained with the Monte Carlo code DETEFF are summarized in Table 4. The number of photons generated was large enough ($\approx 10^9$) to achieve statistical uncertainties below 5% in the FEP efficiencies. The simulation times were between 14 and 72 min with a 3.06 GHz Celeron CPU.

The results for ¹³⁷Cs ground deposition activity levels calculated with the code DETEFF for the four sites studied and the corresponding values obtained by Boson et al. (2009) using different approaches are summarized in Table 5. The combined standard uncertainties of the calculated ground deposition levels were found to be between 13% and 21%. These values are similar to those reported by Boson et al. (2009), as one would expect because the same sources of uncertainty were considered.

The values obtained with DETEFF are equivalent to the results of the study case, the differences being well below the corresponding uncertainties. The absolute relative deviations with respect to the results of MCNP5 are less than 3%, this value being below the relative statistical uncertainties of the efficiency calculations carried out with the two codes. The underestimate of between 5% and 9% of the ground depositions at sites C and D could be explained by the attenuation caused by the existing vegetation i.e. spruce forest and alder forest, respectively.

5. Conclusions

The ¹³⁷Cs ground deposition levels calculated by using DETEFF were found to be in good agreement, within the measurement uncertainties, with the results obtained by soil sampling and in situ measurements. According to the present results, it is reasonable to assume that the code DETEFF could be used for efficiency calibration of in situ gamma-ray spectrometry for the

Table 3
Full-energy peak count rates (in s⁻¹) corresponding to the study case. The standard uncertainties are given for a coverage factor $k=1$.

Site A	Site B	Site C	Site D
3.23 ± 0.06	3.35 ± 0.07	33.3 ± 0.7	111.0 ± 2.2

Table 2
Soil sample results. The uncertainties are presented as one standard deviation and correspond to the mean of the 17 values obtained for each parameter. Soil composition (in mass %) adopted for the four sites: H (1.1%), C (1.3%), O (55.8%), Al (7.1%), Si (31.5%), and Fe (3.2%).

Slabs	d_k (cm)	ρ_k (10^3 kg m^{-3})	a_k	d_k (cm)	ρ_k (10^3 kg m^{-3})	a_k
Site A (open lawn)			Site B (open lawn)			
1	2	1.21 ± 0.05	0.80 ± 0.16	1.38 ± 0.19	0.74 ± 0.06	0.13 ± 0.04
2	5	1.46 ± 0.06	0.16 ± 0.05	9.7 ± 0.3	1.02 ± 0.04	0.80 ± 0.11
3	9.4 ± 0.7	1.72 ± 0.04	0.04 ± 0.01	4.4 ± 0.6	1.39 ± 0.08	0.07 ± 0.01
Site C (spruce forest)			Site D (alder forest)			
1	2.50 ± 0.18	0.32 ± 0.03	0.09 ± 0.01	3	0.76 ± 0.04	0.18 ± 0.03
2	5.4 ± 0.3	1.04 ± 0.03	0.59 ± 0.07	10	1.00 ± 0.03	0.80 ± 0.17
3	11.1 ± 0.6	1.297 ± 0.022	0.32 ± 0.04	12.2 ± 0.8	1.05 ± 0.08	0.02 ± 0.01

Table 4

Full-energy peak efficiencies obtained with the code DETEFF. The values in parentheses represent the corresponding standard deviations in % (for $k=1$).

Slabs	Site A	Site B	Site C	Site D
1	2.55×10^{-7} (5.7)	3.21×10^{-7} (6.4)	3.56×10^{-7} (6.5)	2.40×10^{-7} (5.4)
2	8.90×10^{-8} (5.6)	9.81×10^{-8} (6.2)	1.44×10^{-7} (6.4)	6.95×10^{-8} (5.5)
3	1.79×10^{-8} (4.8)	2.69×10^{-8} (5.8)	1.43×10^{-8} (5.7)	1.70×10^{-8} (5.5)

Table 5

Ground deposition levels obtained using different efficiency calibration methods. Standard uncertainties are presented with a coverage factor of $k=1$. The relative differences between the values calculated with DETEFF and the published results are added in parentheses for clarification.

Method	Ground deposition levels (kBq m ⁻²)			
	Site A	Site B	Site C	Site D
In situ—Monte Carlo (DETEFF)	6.18 ± 1.29	11.5 ± 1.9	115.5 ± 15.4	471 ± 80
Soil samples ^a	6.37 ± 0.85 (−3.0%)	11.39 ± 0.95 (1%)	121.3 ± 8.9 (−4.8%)	519 ± 76 (−9.4%)
In situ—semi emp ^a	5.76 ± 0.97 (7.3%)	11.1 ± 1.7 (3.6%)	109 ± 22 (6.0%)	420 ± 80 (11.9%)
In situ—Monte Carlo ^a	6.05 ± 0.95 (2.1%)	11.8 ± 1.7 (−2.5%)	112 ± 21 (3.0%)	464 ± 85 (1.3%)

^a Boson et al. (2009).

determination of ground deposition activity using the uniform slab model.

The uniform slab model should be applied with caution in cases of significant ground roughness or the presence of trees in the detector's field of view, particularly in situations involving lower energy gamma emitters. The activity deposition on tree crowns could also require further consideration in cases of fresh fallout.

The possibility of rapid efficiency calibrations with DETEFF may be of considerable importance in emergency responses, in which urgency will imply making certain simplifying assumptions.

Acknowledgments

We would like to thank J. Boson for providing us a copy of his doctoral thesis and the full energy peak count rates at the studied sites, which were required to calculate the ground deposition activity.

References

- Berger, M.J., Hubbell, J.H., Seltzer, S.M., Coursey, J.S., Zucker, D.S., 1999. XCOM: Photon Cross-section Database (version 1.2). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- Bé, M.M., 2011. Table of Radionuclides. CEA/LIST—LNE/LNHB. Available from: <http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm>.
- Boson, J., Lidström, K., Nylén, T., Ågren, G., Johansson, L., 2006. In situ gamma-ray spectrometry for environmental monitoring: a semi empirical calibration method. *Radiat. Prot. Dosim.* 121, 310–316.
- Boson, J., Ågren, G., Johansson, L., 2008. A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations. *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* 587, 304–314.

- Boson, J., 2008. Improving accuracy of in situ gamma-ray spectrometry. Department of Radiation Sciences, Radiation Physics. Umeå University, Sweden. Medical dissertation No. 1201. ISBN 978-91-7264-621-6.
- Boson, J., Plamboeck, A.H., Ramebäck, H., Ågren, G., Johansson, L., 2009. Evaluation of Monte Carlo-based calibrations of HPGe detectors for in situ gamma-ray spectrometry. *J. Environ. Radioact.* 100, 935–940.
- Boson, J., 2010. Personal Communication.
- Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: an improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nucl. Instrum. Meth. A* 586, 204–210.
- Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2010a. Improving the trade-off between simulation time and accuracy in efficiency calibrations with the code DETEFF. *Appl. Radiat. Isotopes* 68, 1413–1417.
- Cornejo Díaz, N., Vergara Gil, A., Jurado Vargas, M., 2010b. Assessment of the suitability of different random number generators for Monte Carlo simulations in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isotopes* 68, 469–473.
- Gering, F., Hillmann, U., Jacob, P., Fehrenbacher, G., 1998. In situ gamma-spectrometry several years after deposition of radiocaesium. II. Peak-to-valley method. *Radiat. Environ. Biophys.* 37, 283–291.
- ICRU, 1994. International Commission on Radiation Units and Measurements, Gamma-Ray Spectrometry in the Environment. ICRU Report 53, Bethesda, MD, USA.
- International Organisation for Standardisation, ISO, 1995. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. Geneva, Switzerland. ISBN 92-67-10188-9.
- Jurado Vargas, M., Fernández Timón, A., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2002. Influence of the geometrical characteristics of an HPGe detector on its efficiency. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 253 (3), 439–443.
- Jurado Vargas, M., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2003. Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HpGe detector using the Monte Carlo method. *Appl. Radiat. Isotopes* 58, 707–712.
- Laedermann, J.P., Byrde, F., Murith, C., 1998. In-situ gamma-ray spectrometry: the influence of topography on the accuracy of activity determination. *J. Environ. Radioact.* 38, 1–16.
- Likar, A., Vidmar, T., Lipoglavšek, M., Omahen, G., 2004. Monte Carlo calculation of entire in situ gamma-ray spectra. *J. Environ. Radioact.* 72, 163–168.
- Vidmar, T., Čelik, N., Cornejo Díaz, N., Dlabac, A., Ewa, I.O.B., Carrazana González, J., Hult, M., Jovanović, S., Lépy, M.-C., Mihaljević, N., Sima, O., Tzika, F., Jurado-Vargas, M., Vasilopoulou, T., Vidmar, G., 2010. Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Appl. Radiat. Isotopes* 68, 355–359.

Capítulo 7

Conclusiones

En este capítulo se exponen de forma resumida las principales conclusiones de los trabajos presentados en esta tesis doctoral, todos desarrollados con el objetivo de contribuir a la mejora de la determinación de radionucleidos por espectrometría gamma. Estas contribuciones se han desarrollado mediante el uso de la simulación Monte Carlo, aplicándola a diferentes factores asociados a las calibraciones en eficiencia para distintos tipos de matrices y también en aplicaciones “in situ”. Las mejoras propuestas y las contribuciones realizadas constituyen aportaciones en temas de interés de la comunidad científica internacional dedicada a la detección mediante espectrometría de radiación gamma.

De los estudios realizados se pueden destacar las siguientes conclusiones:

1. Se ha demostrado, a través de las simulaciones realizadas con el código DETEFF, que cuando la composición química elemental de una muestra de suelo varía (respecto a la considerada como referencia), se pueden presentar desviaciones significativas (de hasta un 70% según nuestro estudio) en los valores de actividad determinados para radionucleidos de baja energía (< 60 keV). Este hecho tiene una marcada influencia en la exactitud de los resultados obtenidos por los laboratorios analíticos, quedando este aspecto evidenciado en ejercicios de intercomparación y ensayos de aptitud organizados por la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA), al obtenerse en muchos casos valores de actividad con una veracidad evaluada como “No aceptable” (más del 50% en el ejercicio hipotético que realizamos).
2. Se ha estudiado el impacto de las correcciones por autoabsorción en la determinación de la edad de sedimentos, cuando ésta se obtiene a través de la medida de ^{210}Pb y ^{241}Am , utilizando detectores HPGe de diferentes tipos (n y p). En nuestra investigación se observó que el uso de diferentes factores de corrección por autoabsorción en el análisis de una muestra de sedimento, conlleva a importantes desviaciones relativas en las actividades de ^{210}Pb y ^{241}Am calculadas (siendo las máximas de 89.5% y 49.1%, respectivamente). Particularmente, si las actividades integradas de ^{210}Pb “no soportado” (usando el modelo de datación CRS) hubiesen

sido determinadas con la desviación relativa expresada anteriormente, esto habría tenido un severo impacto en la edad estimada del sedimento, con una desviación de 40.6 años. En la práctica, esta desviación puede ser aún mayor si se consideran otras fuentes de incertidumbre, como las asociadas al modelo de datación empleado.

3. Se ha demostrado que la simulación Monte Carlo ofrece la posibilidad de realizar de forma detallada las correcciones por autoabsorción a la eficiencia, aunque para ello es imprescindible tener un conocimiento preciso de la composición química elemental de la muestra de interés. En este sentido, se ha expresado la conveniencia de que esta información sea incluida en los ejercicios de intercomparación y ensayos de aptitud organizados por la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA), para que sea utilizada por los laboratorios al efectuar este tipo de correcciones.
4. Se ha comprobado la equivalencia de DETEFF, comparado con códigos de uso general (GEANT 3.21, MCNP, PENELOPE y EGS4) y otros códigos específicos (GESPECOR, ETNA, ANGLE y EFFTRAN), para efectuar calibraciones asociadas a la determinación de radionucleidos con energías de emisión superiores a 45 keV en muestras ambientales, empleando el método de transferencia de eficiencias. Esto ha quedado demostrado en los resultados de un ejercicio de intercomparación, desarrollado en el marco de un Proyecto de Investigación Coordinado (CRP) de la Agencia Internacional de Energía Atómica (IAEA), que evaluó la equivalencia de los códigos de simulación Monte Carlo (generales y específicos) más utilizados para calibraciones en eficiencia en las medidas por espectrometría gamma. En general, en este ejercicio se apreció la equivalencia entre todos los códigos comparados aplicados a este tipo de medidas, indicando esto una similitud en los mecanismos de seguimiento de las partículas (en aquellos basados en la eficiencia en el pico de absorción total) y de integración (para los que determinan las eficiencias absolutas totales) en el rango energético considerado.
5. La mayor desviación relativa encontrada en la comparación entre códigos fue del 8%, correspondiendo la misma a la menor energía de los fotones considerada en el estudio (20 keV). No obstante, esta energía no es común en la determinación de radionucleidos en muestras ambientales por espectrometría gamma. La causa de esta diferencia es atribuible a los diferentes coeficientes de absorción que utilizan

los distintos códigos en este rango energético. Aún queda por ser evaluada la equivalencia entre los diferentes códigos en el análisis de matrices con elevado número atómico, como en el caso de los desechos industriales, pues este caso no fue incluido en el ejercicio de intercomparación.

6. Se ha validado la aplicabilidad del código DETEFF, usando el modelo de capas, para la calibración en eficiencia asociada a la determinación “in situ” de niveles de actividad depositada en el terreno. Al respecto, se realizó un ejercicio consistente en la determinación de los niveles de actividad de ^{137}Cs depositados en cuatro localizaciones con características diferentes, comparando luego los resultados obtenidos con los publicados. Se comprobó que los niveles de deposición de actividad calculados usando DETEFF eran semejantes (dentro del rango de incertidumbre de las medidas) a los obtenidos en base al análisis de muestras en el laboratorio, y a las determinaciones “in situ” empleando diferentes métodos de calibración en eficiencia (semiempírico y por simulación Monte Carlo usando MCNP5).

7. Se ha establecido que, en la calibración en eficiencias con DETEFF para la medida “in situ” de niveles de deposición de actividad, el modelo de capas debe ser usado con precaución en aquellos casos donde el terreno evaluado presente muchas irregularidades, y cuando exista abundante presencia de árboles que dificulte la detección de radionucleidos, principalmente los que emiten fotones de baja energía. También debe considerarse de manera especial el aporte de la actividad depositada en la copa de los árboles, en el caso de una deposición fresca.

8. La posibilidad de efectuar calibraciones en eficiencia rápidas con DETEFF para la determinación de la actividad depositada en el terreno, debido a su corto tiempo de ejecución comparado con el de los códigos generales utilizados para este fin, tiene una gran importancia en la respuesta a situaciones de emergencia radiológica. En este tipo de situaciones es posible realizar determinadas suposiciones, como la relacionada con la distribución de los radionucleidos en el terreno, con el fin de obtener con la mayor brevedad una estimación de la actividad depositada en el lugar de interés.

BIBLIOGRAFÍA

[Aaltonen et al., 1994] H. Aaltonen, S. Klemola, F. Ugleveit (1994): Validation of a method for computer calculation of germanium detector efficiencies. *Nuclear Instruments and Methods A* 339, 87-91.

[Agostinelli et al., 2003] S. Agostinelli et al. (2003): GEANT4-a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods A* 506, 250-303.

[Appleby, 1998] P.G. Appleby (1998): Dating Recent Sediments by ^{210}Pb : Problems and Solutions. In: Proceedings of STUK Symposium, Helsinki, STUK-A145, pp. 7-24.

[Appleby y Oldfield, 1978] P.G. Appleby, F. Oldfield (1978): The calculation of ^{210}Pb dates assuming a constant rate of supply of unsupported ^{210}Pb to the sediment. *Catena* 5, 1-8.

[Alfassi et al., 2006] Z.B. Alfassi, O. Pelled, U. German (2006): The virtual point detector concept for HPGe planar and semi-planar detectors. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 574–578.

[Alfassi et al., 2007] Z.B. Alfassi et al. (2007): HPGe virtual point detector for radioactive disk sources. *Applied Radiation and Isotopes* 65, 253–258.

[Alvarez et al., 2000] A. Alvarez, E. Correa, N. Navarro, C. Sancho (2000): Uranium determination in samples from decommissioning of nuclear facilities related to the first stage of the nuclear fuel cycle. *Applied Radiation and Isotopes* 53, 355-359.

[Bé, 2011] M. M. Bé (2011): Table of Radionuclides. CEA/LIST—LNE/LNHB. Available from: http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm.

[Beck et al., 1972] L. H. Beck, J. DeCampo, C. Gogolak (1972): In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry. Report HASL-258, USAEC, New York, NY: Health and Safety Laboratory.

[Berger y Doggett, 1956] M.J. Berger, J. Doggett (1956): Response Functions of NaI(Tl) Scintillation Counters. *Rev. Sci. Instruments* 27, 269–270.

[Berger y Hubbell, 1987] M. J. Berger and J. H. Hubbell (1987): XCOM: Photon Cross Sections Database. Web Version 1.2, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, Md, USA. <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/>.

[Berger et al., 1999] M. J. Berger, J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. S. Coursey, D. S. Zucker (1999): XCOM: Photon Cross Section Database (Version 1.2). *National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.*

<http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/>.

[Bolívar et al., 1996] J.P. Bolívar, R. García-Tenorio, M. García-León (1996): A method for the determination of counting efficiencies in γ -spectrometric measurements with HPGe detectors. *Nuclear Instruments and Methods A* 382, 495-502.

[Boson et al., 2006] J. Boson, K. Lidström, T. Nylén, G. Ågren, L. Johansson (2006): In situ gamma-ray spectrometry for environmental monitoring: a semiempirical calibration method. *Radiation Protection Dosimetry* 121, 310–316.

[Boson, 2008] J. Boson (2008): Improving accuracy of in situ gamma-ray spectrometry. Department of Radiation Sciences, Radiation Physics. Umeå University, Sweden. Medical dissertation No. 1201. ISBN 978-91-7264-621-6.

[Boson, 2010] J. Boson (2010): Personal Communication.

[Boson et al., 2008] J. Boson, G. Ågren, L. Johansson (2008): A detailed investigation of HPGe detector response for improved Monte Carlo efficiency calculations. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* 587, 304-314.

[Boson et al., 2009] J. Boson, A.H. Plamboeck, H. Ramebäck, G. Ågren, L. Johansson (2009): Evaluation of Monte Carlo-based calibrations of HPGe detectors for in situ gamma-ray spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 935–940.

[Briesmeister, 2000] J. F. Briesmeister (2000): MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C, CCC-700, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico.

[Britton, 2014] R. Britton (2014): Development of a Compton Suppressed Gamma Spectrometer using Monte Carlo Techniques. Doctoral Thesis. Department of Physics, Faculty of Engineering and Physical Sciences, University of Surrey, UK. http://epubs.surrey.ac.uk/807185/1/RBritton_Thesis_V1.2.pdf.

[Brun et al., 1987] R. Brun, F. Bruyant, M. Maire, A. C. McPherson, P. Zancarini (1987): GEANT3. CERN Data Handling Division, Geneva.

[Canberra, 2002] Canberra (2002): Canberra Product Description, Model S574, Version 4.0, LabSOCS Calibration Software.

[Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2008] N. Cornejo Díaz, M. Jurado Vargas (2008): DETEFF: an improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods A586*, 204–210.

[Cornejo Díaz, 2009] N. Cornejo Díaz (2009): Desarrollo de un código de simulación por Monte Carlo para la calibración de sistemas de detección en espectrometría de radiación gamma. Tesis Doctoral. Universidad de Extremadura, Badajoz, España. ISBN 978-84-7723-89-1.

[Cornejo Díaz et al., 2010] N. Cornejo Díaz, A. Vergara Gil, M. Jurado Vargas (2010): Assessment of the suitability of different random number generators for Monte Carlo simulations in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 469–473.

[Cornejo Díaz y Jurado Vargas, 2010] N. Cornejo Díaz, M. Jurado Vargas (2010): Improving the trade-off between simulation time and accuracy in efficiency calibrations with the code DETEFF. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1413–1417.

[Cutshall et al., 1983] N.H. Cutshall, I.L. Larsen, C.R. Olsen (1983): Direct analysis of Pb-210 in sediment samples: a self-absorption correction. *Nuclear Instruments and Methods* 206, 309–312.

[Debertin y Helmer, 1988] K. Debertin and R. G. Helmer (1988): Gamma and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. North Holland. Amsterdam.

[De Castro Faria y Levesque, 1967] N.V. De Castro Faria, R.J.A. Levesque (1967): Photopeak and double-escape peak efficiencies of germanium lithium drift detectors. *Nuclear Instruments and Methods* 46, 325–332.

[Dryak y Kova, 2006] P. Dryak, P. Kova (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, 1346-1349.

[El-Daoushy y García-Tenorio, 1995] F. El-Daoushy, R. García-Tenorio (1995): Photon (20-60 keV) self-absorption in small aquatic deposits. *Nuclear Instruments and Methods A359*, 622-624.

[Euler y Kaplan, 1970] B. A. Euler and S. N. Kaplan (1970): *IEEE Transactions in Nuclear Sciences*, NS-17(1), 81.

[Erten et al., 1988] H. N. Erten, Ş. Aksoyoğlu, H. Göktürk (1988): Efficiency calibration and summation effects in gamma-ray spectrometry. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 125, 3-10.

[Finck, 1992] R. R. Finck (1992): High resolution field gamma spectrometry and its applications to problems in environmental radiology, Ph.D. dissertation, Lund University, Malmo, Sweden.

[Ferguson, 1995] C. Ferguson (1995): Designing sampling strategies with the aid of an expert system. 4th International Conference on Site Investigations for Contaminated Sites, October 1995. IBC Technical Services, London.

[Freeman y Jenkin, 1966] J. M. Freeman, J. G. Jenkin (1966): The accurate measurement of the relative efficiency of Ge(Li) gamma-ray detectors in the energy range 500 to 1500 keV. *Nuclear Instruments and Methods* 43: 269.

[Galloway, 1991] R.B. Galloway (1991): Correction for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods A300*, 2, 367-373.

[Gering et al., 1998] F. Gering, U. Hillmann, P. Jacob, G. Fehrenbache (1998): In situ gamma-ray spectrometry several years after deposition of radiocaesium. II. Peak- to-valley method. *Radiation and Environmental Biophysics* 37, 283–291.

[Gilmore y Hemingway, 1995] G. Gilmore, J. Hemingway (1995): Practical Gamma-Ray Spectrometry. Wiley, New York.

[Gilmore, 2008] G. R. Gilmore (2008): Practical Gamma-ray spectrometry, 2nd Edition. John Wiley & Sons, New York.

[Green et al., 1975] M. V. Green, R. L. Aamodt, G. S. Johnston (1975): Monte Carlo calculation of the absolute maximum detector efficiency of a cylindrical gamma radiation detector. *Health Physics* 28, 624-628.

[Gutiérrez-Villanueva et al., 2008] J. L. Gutierrez-Villanueva, A. Martin-Martin, V. Pena, M. P. Iniguez, B. de Celis (2008): Calibration of a portable HPGe detector using MCNP code for the determination of ¹³⁷Cs in soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 1520-1524.

[Haase et al., 1993] G., D. Tait, A. 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* A329, 483-492.

[Haase et al., 1993] G. Haase, D. Tait, A. Wiechen (1993): Application of a new Monte Carlo method for determination of summation and self-attenuation corrections in gamma spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods* A336, 206-214.

[Haase et al., 1995] G. Haase, D. Tait., A. Wiechen (1995): Determination of full energy peak efficiency for cylindrical volume sources by the use of a point source standard in gamma-spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods* A361, 240-244.

[Hall y Soltys, 1971] R.N. Hall, T.J. Soltys (1971): *IEEE Transactions in Nuclear Sciences*, NS-18, 160–165.

[Hansen, 1971] W.L. Hansen (1971): High-purity germanium crystal growing. *Nuclear Instruments and Methods* 94, 2, 377–380.

[Harvey, 1970] J. R. Harvey (1970): A formula for predicting the sensitivity of Ge(Li) spectrometers to gamma rays in the range 0.4–1.5 MeV. *Nuclear Instruments and Methods* 86, 189-197.

[Helfer y Miller, 1988] I.K. Helfer, K.M. Miller (1988): Calibration Factors for Ge Detectors Used for Field Spectrometry. *Health Physics* 55, 15-29.

[Herrera et al., 1995] E.F. Herrera, A. Perdome, C. Garcia, M.E. Montero, L. Soto (1995): Geometric correction of the efficiency to total absorption peak in semiconductor detectors using numerical integration, Regional Workshop on the K0 method and other parametric methods in NAA, Lima, Peru, 1995.

[Hoover, 2007] A.S. Hoover (2007): Characterization of the virtual point detector effect for coaxial HPGe detectors using Monte Carlo simulation. *Nuclear Instruments and Methods* A572, 839–843.

[Horowitz y Elrick, 1985] A.J. Horowitz, K.A. Elrick (1985): Multielement analysis of rocks and sediments by wet digestion and atomic absorption spectroscopy: U.S. Geological Survey, Open-File Report 85-78, iv, 17 p.

[Hummel et al., 1996] L. Hummel; P. Guglhoer, K.H. Lehmann (1996): Collimated in-situ gamma spectrometry: A new method for fast clearance measurements of large areas or building structures of nuclear facilities under decommissioning. International Congress on Radiation Protection IRPA9. Proceedings. Volume 3.

[Hurtado et al., 2004] S. Hurtado, M. García-León, R. García-Tenorio (2004): GEANT4 code for simulation of a germanium gamma-ray detector and its application to efficiency calibration. *Nuclear Instruments and Methods A* 518, 764-774.

[Hurtado et al., 2006] S. Hurtado, M. García-León and R. García-Tenorio (2006): Optimized background reduction in low-level gamma-ray spectrometry at a surface laboratory. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 1006–1012.

[Hurtado y Villa, 2010] S. Hurtado, M. Villa (2010): An intercomparison of Monte Carlo codes used for in-situ gamma-ray spectrometry', *Radiation Measurements* 45, 923–927.

[Hussain et al., 1996] N. Hussain, G. Kim, T.M. Church, W. Carey (1996): A simplified technique for gamma-spectrometric analysis of ^{210}Pb in sediment samples. *Applied Radiation and Isotopes* 47, 473-477.

[IAEA, 2007] IAEA/AL/170 (2007): Report on the IAEA-CU-2006-04 ALMERA Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides.

[IAEA CRP 1471, 2008] IAEA CRP 1471 (2008): Coordinated Research Project on Benchmarking Calibration for Low-level Gamma Spectrometric Measurements of Environmental Samples.

[ICRU, 1994] ICRU Report 53 (1994): International Commission on Radiation Units and Measurements, Gamma-Ray Spectrometry in the Environment. Bethesda, Maryland, USA: ICRUM.

[ISO, 1995] International Organisation for Standardisation (1995): Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement. Geneva, Switzerland. ISBN 92-67-10188-9.

[Jackson y Hawkes, 1981] D. F. Jackson, D. J. Hawkes (1981): X-ray attenuation coefficients of elements and mixtures. *Physics Reports* 70, 169–233.

[Jodlowski, 2006] P. Jodlowski (2006): Self-absorption correction in gamma-ray spectrometry of environmental samples – an overview of methods and correction values obtained for the selected geometries. *Nukleonika* 51(Suppl.2), S21–S25.

[Jodlovski et al., 2014] P. Jodlowski, P. Wachniew, C. N. Dinh (2014): Monte Carlo validation of the self-attenuation correction determination with the Cutshall transmission method in ^{210}Pb measurements by gamma-spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 87, 387–389.

[Joshi, 1987] S.R. Joshi (1987): Nondestructive determination of selected U- and Th-series radionuclides in biological samples. *Health Physics* 53, 417-420.

[Jovanovic et al., 1997] S. Jovanovic, A. Dlabac, N. Mihaljevic, P. Vukotic (1997): ANGLE: A PC-code for semiconductor detector efficiency calculations. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218, 13–20.

[Jurado Vargas et al., 2002] M. Jurado Vargas, A. Fernández Timón, N. Cornejo Díaz, D. Pérez Sánchez (2002): Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 57, 893–898.

[Jurado Vargas et al., 2003] M. Jurado Vargas, N. Cornejo Díaz, D. Pérez Sánchez (2003): Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HpGe detector using the Monte Carlo method. *Applied Radiation and Isotopes* 58, 707–712.

[Jurado Vargas y Guerra, 2006] M. Jurado Vargas, A.L. Guerra (2006): Application of PENELOPE code to the efficiency calibration of coaxial germanium detectors. *Applied Radiation and Isotopes* 64, 1319–1322.

[Kitto, 1991] M.E. Kitto (1991): Determination of photon self-absorption corrections for soil samples. *Applied Radiation and Isotopes* 42, 835-839.

[Klein y Nishina, 1929] O. Klein, Y. Nishina (1929): Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac. *Z. Physik*, 52: 853.

[Knoll, 1989] G. F. Knoll (1989): *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley and Sons, Inc. ISBN 0-471-49544-X.

[Kunzendorf, 1996] H. Kunzendorf (1996): A practical approach for self-absorption correction in ^{210}Pb gamma-spectrometric dating. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 204, 23–31.

[Laedermann et al., 1998] J. P. Laedermann, F. Byrde, C. Murith (1998): In-situ gamma-ray spectrometry: the influence of topography on the accuracy of activity determination. *Journal of Environmental Radioactivity* 38, 1-16.

[Lépy, et. al., 2000] M.C. Lépy, et al. (2000): EUROMET action 428: Transfer of Ge detectors efficiency calibration from point source geometry to other geometries. Rapport CEA R-5894.

[Lépy et al., 2001] M. C. Lépy, et al. (2001): Intercomparison of efficiency transfer softwares for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 55: 493-503.

[Likar et al., 2004] A. Likar, T. Vidmar, M. Lipoglavšek, G. Omahen (2004): Monte Carlo calculation of entire in situ gamma-ray spectra. *Journal of Environmental Radioactivity* 72, 163–168.

[Mahling et al., 2006] S. Mahling, I. Orion, Z.B. Alfassi (2006): The dependence of the virtual point-detector on the HPGe detector dimensions. *Nuclear Instruments and Methods A* 557, 544–553.

[Moens et al., 1981] L. Moens, J. De Donder, X. Lin, F. De Corte, A. De Wispelaere, A. Simonits, J. Hoste (1981): Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. *Nuclear Instruments and Methods* 187: 451-472.

[Mowatt, 1969] R. S. Mowatt (1969): A semi-empirical efficiency curve for a Ge(Li) detector in the energy range 50 to 1400 keV. *Nuclear Instruments and Methods* 70: 237.

[Nakamura y Suzuki, 1983] T. Nakamura, T. Suzuki (1983): Monte Carlo calculation of peak efficiencies of Ge(Li) and pure Ge detectors to voluminal sources and comparison with environmental radioactivity measurement. *Nuclear Instruments and Methods* 205, 211–218).

[Nelson et al., 1985] W. R. Nelson, H. Hirayama, D. W. O. Rogers (1985): SLAC Report 265.

[Nir-EI y Sima, 2005] Y. Nir-EI, O. Sima (2005): Angular response of a HPGe detector to gamma-rays in in situ measurements. *Applied Radiation and Isotopes* 55, 1–7.

[Novotny y To, 2015] S. J. Novotny, D. To (2015): Characterization of a high-purity germanium (HPGe) detector through Monte Carlo simulation and nonlinear least squares estimation. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 304:751–761. DOI 10.1007/s10967-014-3902-7.

[Notea, 1971] A. Notea (1971): The Ge(Li) spectrometer as a point detector. *Nuclear Instruments and Methods* 91, 513-515.

- [Overwater et al., 1993] R.M.W. Overwater, P. Bode, J.J.M. de Goeij (1993): Gamma-ray spectroscopy of voluminous sources. Corrections for source geometry and self-attenuation. *Nuclear Instruments and Methods A324*, 209–218.
- [Piton et al., 2000] F. Piton, M. C. Lépy, M. M. Bé, J. Plagnard (2000): Efficiency transfer and coincidence summing corrections for γ -ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes 52*, 791-795.
- [Presler et al., 2004] O. Presler et al. (2004): The validity of the virtual point detector concept for absorbing media. *Applied Radiation and Isotopes 60*, 213–216.
- [Presler et al., 2006] O. Presler et al. (2006): Virtual point detector: On the interpolation and extrapolation of scintillation detectors counting efficiencies. *Nuclear Instruments and Methods A565*, 704–710.
- [Radu et al., 2009] D. Radu, D. Stanga, O. Sima (2009): ETNA software used for efficiency transfer from a point source to other geometries. *Applied Radiation and Isotopes 67*, 1686–1690.
- [Ramos-Lerate et al., 1998] I. Ramos-Lerate, M. Barrera, R.A. Ligeró, M. Casas-Ruiz (1998): A new method for gamma-efficiency calibration of voluminal samples in cylindrical geometry. *Journal of Environmental Radioactivity 38*, 47-57.
- [Reguigui, 2006] N. Reguigui (2006): Gamma Ray Spectrometry. Practical Information. <http://www.cnstn.nrnt.tn/afra-ict/NAT/gamma/html/Gamma%20Spec%20V1.pdf>.
- [Reilly et al., 1991] D. Reilly, N. Ensslin, H. Smith Jr., S. Krelner (1991): Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials. ISBN 0-16-032724-5.
- [Robu y Giovani, 2009] E. Robu, C. Giovani (2009): Gamma-ray self-attenuation corrections in environmental samples. *Romanian Reports in Physics 61*, 2, 295-300.
- [Salazar et al., 2004] A. Salazar, O. G. Lizano, E. J. Alfaro (2004): Composición de sedimentos en las zonas costeras de Costa Rica utilizando Fluorescencia de Rayos-X (FRX). *Revista de Biología Tropical 52*, suppl.2, ISSN 0034-7744
- [Salvat et al., 2003] F. Salvat, J.M. Fernández-Varea, J. Sempau (2003): PENELOPE–2003: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.

[Salvat et al., 2008] F. Salvat, J.M. Fernández-Varea, J. Sempau (2008): PENELOPE–2008: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.

[San Miguel et al., 2002] E.G. San Miguel, J.P. Pérez-Moreno, J.P. Bolívar, R. García-Tenorio, J.E. Martín (2002): ^{210}Pb determination by gamma spectrometry in voluminal samples (cylindrical geometry). *Nuclear Instruments and Methods A493*, 111-120.

[Sánchez et al., 1991] F. Sánchez et al. (1991): A Monte Carlo based method of including gamma self-absorption for the analysis of environmental samples. *Nuclear Instruments and Methods B61*, 535–540.

[Shakhashiro et al., 2007] A. Shakhashiro, A. Fajgelj, U. Sansone (2007): Comparison of different approaches to evaluate proficiency test data. In: *Combining and reporting analytical results* (eds. A. Fajgelj, M. Belli, U. Sansone), RSC Publishing, Cambridge.

[Sima, 1990] O. Sima (1990): Monte Carlo simulation versus semiempirical calculation of autoabsorption factors for semiconductor detector calibration in complex geometries. *Prog. Nucl. Energy* 24, 327.

[Sima, 2000] O. Sima (2000): Software for the computation of detection efficiency and of coincidence summing effects including neutron self-shielding. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 244, 669-673.

[Sima y Arnold, 2002] O. Sima, D. Arnold (2002): Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. *Applied Radiation and Isotopes* 56, 71–75.

[Sima y Arnold, 2009] O. Sima, D. Arnold (2009): On the Monte Carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. *Applied Radiation and Isotopes* 67, 701-705.

[Sima y Dovlete, 1997] O. Sima, C. Dovlete (1997): Matrix effects in the activity measurement of environmental samples – Implementation of specific corrections in a gamma-ray spectrometry analysis program. *Applied Radiation and Isotopes* 48, 59–69.

[Sima, 2012] O. Sima (2012): Efficiency Calculation of Gamma Detectors by Monte Carlo Methods. *Encyclopedia of Analytical Chemistry. Nuclear Methods*: 1-30. DOI: 10.1002/9780470027318.a9142

[Sinkko y Aaltonen, 1985] K. Sinkko and H. Aaltonen (1985): Calculation of the true coincidence summing correction for different sample geometries in gamma-ray spectrometry. Report STUK-B-VALO 40, Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety, Helsinki, Finland.

[Tavendale y Ewan, 1963] A.J. Tavendale, G.T. Ewan (1963): A high resolution lithium-drift germanium gamma-ray spectrometer. *Nuclear Instruments and Methods* 25, 185–187.

[Tyler et al., 1996] A.N. Tyler, D.C.W. Sanderson, E.M. Scott (1996): Estimating and accounting for ^{137}Cs source burial through in situ gamma spectrometry in salt marsh environments. *Journal of Environmental Radioactivity* 33, 195-212.

[Tzika et al., 2010] F. Tzika, D. Kontogeorgakos, T. Vasilopoulou, I. E. Stamatelatos (2010): Application of the Monte Carlo method for the calibration of an in situ gamma spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1441–1444.

[Vargas et al., 2002] M.J. Vargas, A.F. Timón, N.C. Díaz, D.P. Sánchez (2002): Influence of the geometrical characteristics of an HpGe on its efficiency. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 253, 439-443.

[Venturini y Vanin, 1993] L. Venturini, V.R. Vanin (1993): HPGe detector efficiency calibration for extended sources in the 50–1400 keV energy range. *Applied Radiation and Isotopes* 44, 999-1002.

[Vidmar y Likar, 2004] T. Vidmar, A. Likar (2004): On the invariability of the total-to-peak ratio in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 60, 191-195.

[Vidmar, 2005] T. Vidmar (2005): EFFTRAN – A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods* A550, 603-608.

[Vidmar et. al. 2008] T. Vidmar, et. al. (2008): An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 66: 764–768.

[Vidmar et al., 2010] T. Vidmar, N. Çelik, N. Cornejo Díaz, A. Dlabac, I.O.B. Ewa, J. Carrazana González, M. Hult, S. Jovanović, M-C. Lépy, N. Mihaljević, O. Sima, F. Tzika, M. Jurado Vargas, T. Vasilopoulou, G. Vidmar (2010): Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Applied Radiation and Isotopes* 68 355–359.

[Vidmar et al., 2010] T. Vidmar, B. Vodenik, N. Nečemer (2010): Efficiency transfer between extended sources. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 2352-2354.

[Wainio y Knoll, 1966] K.M.Wainio, G.F. Knoll (1966): Calculated gamma-ray response characteristics of semiconductor detectors. *Nuclear Instruments and Methods* 44, 213–223.

[Wang et al., 1997] T. K. Wang, W. Y. Mar, T. H. Ying, C. L. Tseng, C. H. Liao, M. Y. Wang (1997): HPGe detector efficiency calibration for extended cylinder and marinelli-beaker sources using the ESOLAN program. *Applied Radiation and Isotopes* 48, 83-95.

[X-5 Monte Carlo Team, 2003] X-5 Monte Carlo Team (2003): MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, LA-UR-03-1987.

APÉNDICE A

USO DE DETEFF EN EL EJERCICIO DE INTERCOMPARACIÓN DE CÓDIGOS DE TRANSFERENCIA DE EFICIENCIAS

Instrucciones recibidas para la participación en el ejercicio

Intercomparison exercise on efficiency transfer codes - Instructions

Efficiency transfer Working Group of the CRP

One of the conclusions of the First research coordination meeting of the IAEA CRP on low-level gamma spectroscopic measurements of environmental samples, held at the IAEA Marine Environment Laboratory in Monaco between December 2 and December 5, 2008, was that an intercomparison exercise on efficiency transfer (ET) codes was warranted, with the aim of establishing their equivalence and/or quantify the differences between them by asking the users of different codes to perform calculations of the ET factor for a set of well-defined sample and detector parameters. The exercise should bring to light the sources of potential differences between the codes and help establish general guidelines for stating the part of the uncertainty attributable to this sort of calculation method due to inherent differences between its various implementations.

The different ET codes are thus supposed to be confronted with each other without any reference to experimental data and without any intention of eventually favouring one over the other. Rather, the differences between them should simply shed light on the problems in the field that may not have been apparent until now and give a "feeling" for how reliable such calculations are in ideal circumstances.

The codes selected for the intercomparison fall into two categories: specialised codes written specifically for ET in gamma-ray spectrometry and general Monte Carlo

simulation tools adapted to the task at hand. From the first group, the codes GESPECOR, ETNA, DETEFF and EFFTRAN are expected to be applied. The expected representatives of the second group are GEANT 3.21, MCNP and EGS4.

A set of well-defined detector and sample geometries will be considered. In all the cases, a complete cylindrical symmetry of the sample-detector geometry is presumed. The parameters of the two HPGe detectors are given in Table 1 and a sketch of the p-type detector is also provided (Figure 1). The two detectors are identical, except for the thickness of the dead layer and the material and thickness of the front window. The sources are described in Table 2. Each source is to be embedded in a tightly fitting container. In the calculations, the sources should all be placed directly onto the detector window. For each of the possible detector-sample combinations, ET factors should be computed for the following set of energies (in keV): 20- 45 – 60 – 80 – 120- 200- 500 – 1000 and 2000. The lowest energy should only be considered with the n-type detector.

The ET factor is defined as the ratio of the calculated efficiencies for the sample geometry and the reference geometry. The reference geometry should in all cases be the one of the 60x20 mm water solution. The efficiencies can be either full-energy ones or total efficiencies, depending on the way a given code works. In the latter case the validity of the theorem on the independence of the virtual total-to-peak ratio is invoked.

The characteristics of various materials used in the constructions of the detector and sample models are given in Table 3.

Parameter	Detector A	Detector B
Crystal material	Ge	Ge
Crystal diameter (including the side dead slayer)	60	60
Crystal length (including the top dead layer)	60	60
Dead layer thickness (top and side)	1	3E-4
Hole diameter	10	10
Hole length	40	40
Window diameter	80	80
Window thickness	1	0.5
Window material	Al	Be
Crystal-to-window distance	5	5
Housing thickness	1	1
Housing material	Al	Al

Table 1: Detector parameters. All dimensions and given in millimetres (mm). The housing diameter is in all cases the same as the window diameter.

Parameter	Reference	Point	Soil	Filter
Sample diameter (including the container)	60	-	90	80
Sample height (including the container)	20	-	40	3
Sample material	Water	-	Dirt	Cellulose

Table 2: Sample parameters. All dimensions and given in millimetres (mm). The container is in all cases (except for the point source) a plastic vessel of 1 mm thickness, tightly encasing the sample on all sides.

Material	Density	Chemical formula
Ge	5.323	Ge
Al	2.70	Al
Be	1.848	Be
Water	1.0	H ₂ O
Dirt	1.4	SiO ₂
Cellulose	0.2	C ₆ H ₁₂ O ₆
Plastics (polystyrene)	1.05	C ₈ H ₉

Table 3: Materials characteristics. All densities are given in g/cm³.

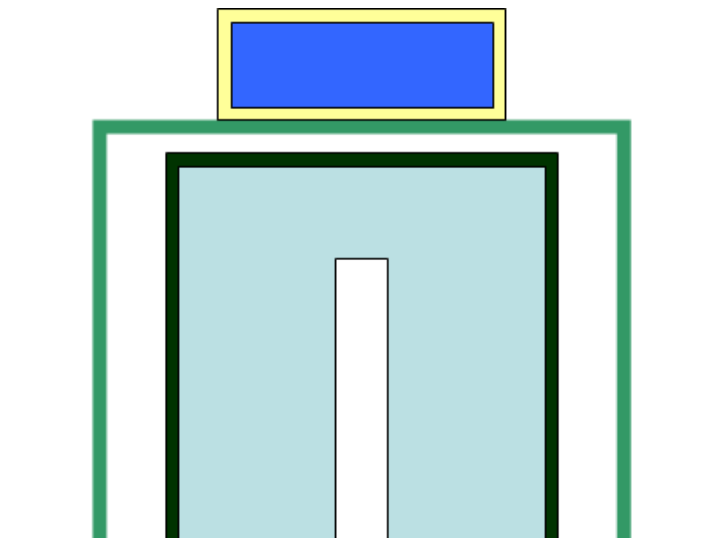


Figure 1: A schematic presentation of the parts of the setup:

light blue – germanium crystal; black – dead layer; white – central hole;
 green – detector housing; red – window; yellow – sample container; deep blue – sample.

Forma para el reporte de resultados

Intercomparison exercise on efficiency transfer codes – Report Form

Efficiency transfer Working Group of the CRP

In the report form, the ET factors, along with their respective statistical uncertainties, are to be given for the six detector-sample configuration. The relative uncertainties should be kept below 1%. The capital A or B in each configuration refers to the detector model. It is preceded by the sample name (see Tables 1 and 2 of the Instructions). All energies are given in keV.

Energy	Point A	Point B	Soil A	Soil B	Filter A	Filter B
20						
40						
60						
80						
120						
200						
500						
1000						
2000						
Run time [s] (per configuration)						

Principal investigator: _____

Computer code used: _____

Resultados obtenidos con DETEFF

Intercomparison exercise on efficiency transfer codes – Results Report

Energy (keV)	Point A	Unc. Point A	Point B	Unc. Point B	Soil A	Unc. Soil A	Soil B	Unc. Soil B	Filter A	Unc. Filter A	Filter B	Unc. Filter B
20			3,697	0,006			0,088	0,000			2,080	0,004
45	1,713	0,003	2,337	0,004	0,282	0,001	0,312	0,001	0,917	0,003	1,367	0,002
60	1,891	0,004	2,287	0,003	0,351	0,001	0,378	0,001	1,003	0,002	1,338	0,002
80	2,091	0,004	2,282	0,004	0,399	0,001	0,417	0,001	1,109	0,002	1,326	0,002
120	2,263	0,005	2,309	0,003	0,438	0,001	0,447	0,001	1,200	0,003	1,317	0,002
200	2,267	0,005	2,293	0,003	0,473	0,002	0,477	0,002	1,246	0,003	1,310	0,003
500	2,156	0,007	2,181	0,008	0,520	0,003	0,520	0,003	1,249	0,004	1,286	0,006
1000	2,076	0,012	2,094	0,010	0,545	0,005	0,544	0,003	1,243	0,006	1,263	0,007
2000	2,012	0,017	2,026	0,013	0,569	0,004	0,567	0,004	1,231	0,011	1,254	0,008
Mean Run time (s):	15,9		16,8		7,6		7,8		12,3		14,5	
Total Run time (s):	127,3		151,5		61,0		70,6		98,0		115,9	

Note: ET values were calculated based on fep efficiency values.
Run times (mean and total) correspond to a CPU Intel Celeron 3,07 GHz.

Principal investigator: Jorge Antonio Carrazana González

Computer code used: DETEFF Version 4.2

Desviaciones relativas de los resultados obtenidos con DETEFF, respecto a los valores de referencia

Desviaciones relativas de DETEFF [%]						
Energía (keV)	Puntual A	Puntual B	Suelo A	Suelo B	Filtro A	Filtro B
20	--	0.62	--	0.98	--	0.50
45	-0.31	0.03	-0.48	-0.19	-0.88	-0.19
60	-0.28	0.06	-0.86	-0.07	-1.13	0.06
80	0.16	0.14	0.25	0.17	-0.14	0.12
120	0.40	0.32	-0.06	-0.10	-0.45	-0.01
200	0.08	0.52	-0.66	-0.09	-0.73	-0.27
500	0.34	0.77	0.25	0.29	-0.60	-0.38
1000	0.62	0.59	0.00	0.16	-0.34	-0.62
2000	0.71	0.87	0.28	0.46	-0.44	-0.17

APÉNDICE B

PARTICIPACIÓN EN EVENTOS

B.1 Conferencia Internacional sobre Metrología de Radionucleidos y sus Aplicaciones (ICRM 2009)



026

INFLUENCE OF CHEMICAL COMPOSITION OF SOIL SAMPLES IN ENVIRONMENTAL GAMMA-RAY SPECTROMETRYJ. Carrazana González¹, N. Cornejo Díaz¹, M. Jurado Vargas², E. Capote Ferrera¹¹Centre for Radiological Protection and Hygiene, Havana, Cuba²Physics Department, University of Extremadura, Badajoz, Spain**ABSTRACT**

For quantification of low energy radionuclides in soil samples by gamma-ray spectrometry it is necessary to estimate the pertinent self-attenuation corrections. There are two main possibilities of performing such estimations: using an experimental design based on collimated point sources, or simulating the absolute full energy peak efficiency by a Monte Carlo method. In the later case, the accuracy is strongly dependent on adequate knowledge of the elementary chemical composition of the source matrix.

In intercomparison exercises and proficiency tests as organized by the IAEA and other recognized international institutions, information on the elementary chemical composition of the soil samples analyzed is often not provided. As a consequence, participating laboratories using Monte Carlo codes for efficiency calibration and considering different elementary chemical compositions of soil samples might have different performances, particularly for energies below 60 keV.

We here consider the influence of the soil's chemical composition on estimating the activity concentration of low-energy radionuclides by gamma spectrometry. We used the validated Monte Carlo code DUTEFF, and five different elementary chemical compositions of soils published by the ICRU. A theoretical exercise was thus carried out supposing that five different analytical laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but the five different chemical compositions. The performance evaluation of these laboratories was carried out using the IAEA approach, according to the IAEA-CU-2006-04 ALMERA proficiency test on the determination of gamma emitting radionuclides.

The work demonstrates that just using an inadequate chemical composition during Monte Carlo calculations of self-absorption corrections can lead to unacceptable results for the activity quantification in soil samples for low energy photons for which the relative differences in activity values could be about 50% or more. Because of the growing use of Monte Carlo methods in efficiency calibrations, and considering that the elemental composition of measured samples can not be determined in most analytical laboratories, providing the elemental chemical composition of the samples is an issue that needs to be considered by the organizers of intercomparison exercises and proficiency tests.

Corresponding author's email address: carrazana@cphr.edu.cu

Influence of chemical composition of soil samples in environmental gamma-ray spectrometry

J. Carrazana González, N. Cornejo Díaz, M. Jurado Vargas, E. Capote Ferrera

- For quantification of low energy radionuclides in soil samples by gamma spectrometry it is necessary to estimate the pertinent self-attenuation corrections. This can be performed by using Montecarlo calculations
- Here, we study the influence of the soil's chemical composition on estimating the activity concentration of low-energy radionuclides by gamma spectrometry
- A theoretical exercise was carried out with the MC code DETEFF, supposing that 5 different laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but five different chemical compositions (published by the ICRU)
- The work demonstrates that using an inadequate chemical composition during MC calculations of self-absorption corrections can lead to unacceptable results for the activity quantification in soil samples for low energy photons. The relative differences in activity values could be about 50% or more

Poster 026



M. Jurado Vargas



Session: Gamma Spectrometry



J. Carrazana González^a, N. Cornejo Díaz^a, M. Jurado Vargas^b, E. Capote Ferrera^a

^aCentre for Radiological Protection and Hygiene P.O. Box 6195, Habana, Cuba

^bPhysics Department, University of Extremadura 06071 Badajoz, Spain



JUNTA DE EXTREMADURA

INTRODUCTION

To quantify low energy radionuclides in environmental samples by gamma-ray spectrometry it is necessary to estimate the relevant self-attenuation corrections. In intercomparison exercises and proficiency tests, information on the elementary chemical composition of samples is often not provided. As a consequence, participating laboratories using Monte Carlo codes for efficiency calibration and considering different elementary chemical compositions of samples might show different performances, particularly for energies below 60 keV. To study the influence of the source's chemical composition on the self-attenuation corrections during the activity quantification of low-energy gamma-ray emitters in soil samples, we conducted a Monte Carlo-based hypothetical proficiency test in which different analytical laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but a different chemical composition.

HYPOTHETICAL PROFICIENCY TEST

The task for each laboratory was to estimate the activity concentration of ¹⁰⁹Cd (24.9 keV), ²¹⁰Pb (46.5 keV), and ²⁴¹Am (59.5 keV) in a soil sample. Each laboratory adopted one of the soil compositions given in Table 1. It was assumed that the only difference between laboratories was the soil composition used for the aforementioned correction.

Soil compositions from ICRU [1]

Element	Ref. soil	Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
H	2.2	2.2	1.1	10.0	---
C	---	---	1.2	11.4	---
O	57.5	58.2	55.8	78.0	45.2
N	---	---	---	0.4	---
Mg	---	---	---	---	2.5
Al	8.5	10.6	7.2	---	8.3
Si	26.2	26.2	31.6	---	25.0
S	---	---	---	0.2	---
K	---	---	---	---	1.8
Ca	---	---	---	---	4.1
Ti	---	---	---	---	0.7
Mn	---	---	---	---	0.2
Fe	5.6	2.8	3.1	---	12.2

Mass attenuation coefficients from [5]

Radionuclide	Energy (keV)	Ref. soil	(μ/p) [cm ² ·g ⁻¹]			
			Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
¹⁰⁹ Cd	24.9	1.755	1.423	1.507	0.434	3.039
²¹⁰ Pb	46.5	0.396	0.343	0.354	0.212	0.591
²⁴¹ Am	59.5	0.288	0.243	0.247	0.190	0.357

Soil density = 1.6 g·cm⁻³

Performance evaluation according to IAEA [2, 3]

Trueness

$$A_1 \leq A_2 \left\{ \begin{array}{l} A_1 = |V_{ref} - V_{lab}| \\ A_2 = 2.58 \cdot \sqrt{U_{ref}^2 + U_{lab}^2} \end{array} \right.$$

V_{ref} : Reference value for activity concentration
 V_{lab} : Activity concentration reported by the lab
 U : Standard combined uncertainty

Precision

$$P \leq LAP \left\{ P = \sqrt{\frac{U_{ref}^2}{V_{ref}^2} + \frac{U_{lab}^2}{V_{lab}^2}} \times 100\% \right.$$

LAP: limit of acceptable precision

Evaluation criteria

Trueness	Precision	$A_1/V_{ref} \leq MAB$	Final Score
✓	✓	-	Acceptable
✓	X	-	Warning
X	✓	✓	Warning
✓	X	X	Not Acceptable
X	X	X	Not Acceptable
X	X	-	Not Acceptable

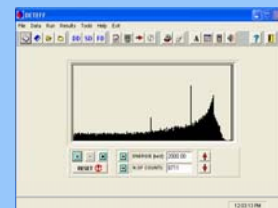
MAP: maximum acceptable bias

Adopted values

Radionuclide	LAP (%)	MAB	U_{ref}/V_{ref} (%)	U_{lab}/V_{lab} (%)
¹⁰⁹ Cd	25	0.25	5	5
²¹⁰ Pb	30	0.30	5	5
²⁴¹ Am	25	0.25	2.5	2.5

Efficiency calculations with Monte Carlo code DETEFF [4]

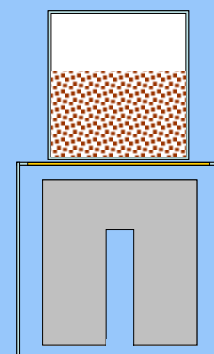
$$\frac{V_{lab}}{V_{ref}} = \frac{\epsilon_{ref}}{\epsilon_{lab}}$$



Simulated HPGe detector

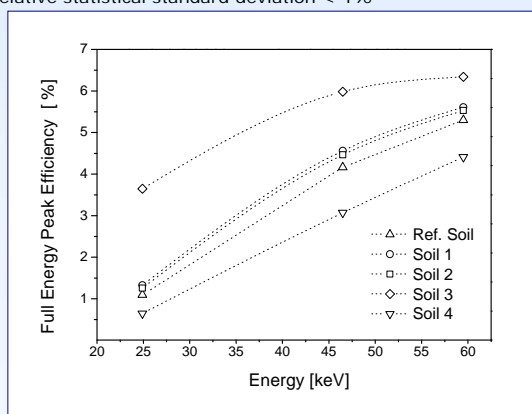
Characteristic	Value [mm]
Crystal diameter	56
Crystal length	60
Core diameter	10
Core height	42
Frontal dead layer thickness	5E-04
Lateral dead layer thickness	5E-04
Be window to crystal distance	5
Entrance Be window diameter	66
Entrance Be window thickness	1
External diameter of Al cover	74
Frontal Al cover thickness	1
Lateral Al cover thickness	1

Simulated Sample
Cylindrical (110mL)
Diameter = 51cm, Height = 5.4cm
(Polyethylene walls)



RESULTS

Efficiency values as a function of energy for different laboratories
Relative statistical standard deviation < 1%



Results of the hypothetical proficiency test

Laboratory	Radionuclide	V_{lab}/V_{ref}	U_{lab}/V_{ref}	A_1/V_{ref}	A_2/V_{ref}	Trueness ¹	Final ² Score
Soil 1	¹⁰⁹ Cd	0.824	0.041	0.176	0.167	N	W
	²¹⁰ Pb	0.913	0.046	0.087	0.175	A	A
	²⁴¹ Am	0.945	0.024	0.055	0.089	A	A
Soil 2	¹⁰⁹ Cd	0.871	0.044	0.129	0.172	A	A
	²¹⁰ Pb	0.933	0.046	0.067	0.175	A	A
	²⁴¹ Am	0.958	0.024	0.042	0.089	A	A
Soil 3	¹⁰⁹ Cd	0.300	0.015	0.700	0.135	N	N
	²¹⁰ Pb	0.696	0.035	0.304	0.157	N	N
	²⁴¹ Am	0.836	0.021	0.164	0.084	N	W
Soil 4	¹⁰⁹ Cd	1.691	0.085	0.691	0.254	N	N
	²¹⁰ Pb	1.357	0.068	0.357	0.218	N	N
	²⁴¹ Am	1.201	0.030	0.201	0.101	N	W

¹ N means Not Acceptable, and A means Acceptable.
² The Final Score assumes that the test of precision was Acceptable for all laboratories. W means "warning".

CONCLUSIONS

- The use of Monte Carlo simulation for the efficiency calibration in gamma-ray spectrometry is becoming ever more common. Monte Carlo simulation offers the possibility of precise self-absorption corrections whenever the elementary chemical composition of the analyzed samples is well known.
- Providing the elemental chemical composition of samples is an issue that needs to be considered by the organizers of intercomparison exercises and proficiency tests. The present work has shown that "Not Acceptable" trueness can be obtained by participant laboratories just from the fact of considering different types of soils for self-absorption corrections. In this sense, it would be very difficult to identify the origin of the deviations of participant laboratories if they randomly selected the type of soil for self-attenuation corrections.
- The production of new reference materials for low-energy gamma emitting radionuclides, could be of considerable help for analytical laboratories using gamma-ray spectrometry if these materials are accompanied by precise information on their chemical composition.

REFERENCES

- ICRU, 1994. Gamma-Ray Spectrometry in the Environment. REPORT 53, 17
- IAEA, 2007. Report on the IAEA-CU-2006-04 ALMERA Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides IAEA/AL/170.
- Shkhashiro, A., Fajgelj, A., Sansone, U., 2007. Comparison of different approaches to evaluate proficiency test data. In: Combining and reporting analytical results (eds. A. Fajgelj, M. Belli, U. Sansone), RSC Publishing, Cambridge.
- Cornejo Diaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: An improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 586, 204–210.
- Berger, M.J., Hubbell, J. H., Seltzer, S.M., Coursey, J.S., Zucker, D.S., 1999. XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.2). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD

B.2 Reunión Técnica de la IAEA sobre “Intercambio de experiencias, estado actual y guías para la utilización efectiva de la instrumentación nuclear para aplicaciones medioambientales en los Estados Miembros en desarrollo”



Form A
F1-TM-40772

Participation Form

International Atomic Energy Agency Technical Meeting on Sharing Experience, Current Status and Guidelines for Effective Utilization of Nuclear Instrumentation for Environmental Applications in Developing Member States

**17 – 21 October 2011
IAEA Headquarters, Vienna, Austria**

To be sent to the competent official authority (Ministry of Foreign Affairs, national atomic energy authority) for transmission to the International Atomic Energy Agency, Vienna International Centre, Wagramer Strasse 5, P.O. Box 100, A-1400 Vienna, Austria (Telefax No. +43 1 26007)

Family name: CARRAZANA GONZALEZ		Given name(s): JORGE ANTONIO	Mr/Ms Mr
Institution: Centre of Radiation Protection and Hygiene (CPHR)	Full address: Calle 20 No. 4113 e/ 41 y 47. Playa. C.P. 11300. La Habana. Cuba AP. 6195, C.P. 10600. La Habana. Cuba.		
Nationality: Cuban	Designating government or organization: AGENCIA DE ENERGIA NUCLEAR Y TECNOLOGIAS DE AVANZADA		
Mailing address (if different from address indicated above):			
Title of paper: Use of Monte Carlo simulation for effective utilization of gamma spectrometric systems			



Atoms for Peace

الوكالة الدولية للطاقة الذرية

國際原子能机构

International Atomic Energy Agency

Agence Internationale de l'énergie atomique

Международное агентство по атомной энергии

Organismo Internacional de Energía Atómica

Mr Jorge Antonio Carrazana Gonzalez

Centre of Radiation Protection and Hygiene
(CPHR)

Calle 20 No. 4113 e/41 y 47 Playa

C.P. 11300

LA HABANA

CUBA

Vienna International Centre, PO Box 100, 1400 Vienna, Austria

Phone: (+43 1) 2600 • Fax: (+43 1) 26007

Email: Official.Mail@iaea.org • Internet: <http://www.iaea.org>

In reply please refer to: F1-TM-40772/11ME09539

Dial directly to extension: (+431) 2600-28236

2011-08-05

Dear Mr Carrazana Gonzalez,

The Secretariat is pleased to learn that you have been designated by your Government as a participant in the International Atomic Energy Agency's (IAEA's) Technical Meeting on *Sharing Experience, Current Status and Guidelines for Effective Utilization of Nuclear Instrumentation for Environmental Applications in Developing Member States* which will take place from 17 to 21 October 2011, at the IAEA's Headquarters in Vienna, Austria.

The purpose of the meeting is to highlight, review and discuss issues related to the current status of nuclear instrumentation for environmental applications including practical guidelines for the effective utilization in developing Member States. The objective is to review the relevant experience and current status of nuclear instrumentation for environmental applications and to prepare a report/guidelines for the effective utilization in developing Member States including technical and managerial requirements and possible role of the IAEA. The meeting will be held in English only.

The technical meeting will commence on 17 October 2011 at 09:30 in A0478 (building A, floor 04, room 78). Meeting participants are requested to arrive at the IAEA's Headquarters in Vienna one hour before the start of the meeting on the first day, in order to allow sufficient time for issuing of grounds passes, which are necessary for official visitors to the Vienna International Centre, where the IAEA's Headquarters are located.

Technical Meeting

On Sharing Experience, Current Status and Guidelines for Effective Utilization of Nuclear Instrumentation for Environmental Applications in Developing Member States

IAEA HQ, Vienna, Room A0478

17 – 21 October 2011

AGENDA

Wednesday, 19 October 2011

09:00 – 13:00 Session 2 (cont)

Individual presentations (45 minutes per participant)

Lebanon	<u><i>M.Roumie</i></u>	Study of Lebanese PM10 and PM2.5 aerosol samples using PIXE technique
Malaysia	<i>M.A.HJ Khalid</i>	Nuclear instrumentation and facilities – Malaysian experience in responding to reactor accident in Japan
Cuba	<u><i>J.A.Carrazana Gonzalez</i></u>	Use of Monte Carlo simulation for effective utilization of gamma spectrometric systems

Use of Monte Carlo simulation for effective utilization of gamma-spectrometry systems in environmental applications

Jorge A. Carrazana González; Isis M. Fernández Gómez; Eduardo A. Capote Ferrera

Centre for Radiological Protection and Hygiene, P.O. Box 6195, Habana, Cuba

1. Introduction

High-resolution gamma-ray spectrometry with germanium detectors is one of the most widely used procedures to determine the concentrations of radionuclides in environmental samples and in the environment (“in situ” application). Gamma-ray spectrometry is a non-destructive technique which has the advantage of not requiring laborious sample preparation. However, in order to obtain activity concentration values in the analyzed samples or the environment, prior knowledge of the full-energy peak efficiency (at each photon energy) for given measurement conditions is required.

Usually the efficiency calibration of the gamma-ray spectrometric systems is based on the use of standard radioactive sources of very similar geometrical dimensions, density, and chemical composition to the sample under study. Actually, it is not difficult to reproduce a given sample geometry, so that this aspect is not a significant problem. On the contrary, photon attenuation within the sample itself can be very different for the sample of interest and for the calibration source.

To have a calibration source similar to the sample implies conditions that cannot be fulfilled in many cases. In addition, standard radioactive sources, even if available, are costly and would need to be renewed, especially when the radionuclides have short half-lives. The permanent availability of standard radioactivity sources can be a problem, mainly in developing countries where limited resources exist.

One effective procedure to overcome these above mentioned difficulties is the use of Monte Carlo simulation, which allows the peak efficiencies to be calculated taking into account the detailed characteristics of the detector and sample. A clear advantage of Monte Carlo codes is that they allow one to quickly calculate new efficiency values for changes in the measurement conditions (geometry, chemical composition and density). The simulation procedures must however be precisely checked in order to guarantee accurate values for the simulated efficiencies.

When Monte Carlo simulation is applied for efficiency calibration of gamma-ray spectrometric systems, it is important to realize that significant discrepancies between calculated and experimental efficiency values can be found when a direct computation is made using the geometrical data for the detector given by the manufacturer. However, these deviations are greatly reduced when a relative computation is performed using the efficiency transfer method.

Since 1997 the Environmental Radiological Surveillance Laboratory (LVRA) from the Centre of Radiation Protection and Hygiene (CPHR) has been accredited (by the National Accreditation Body in Cuba) for the determination of radionuclides in environmental test items by gamma-ray spectrometry. At the beginning, the

accreditation was according to the ISO/IEC 25, later we have been accredited in correspondence to the ISO/IEC 17025.

In 2010 the LVRA from CPHR was accredited (by the National Accreditation Body in Cuba) for the application of Monte Carlo simulation (through the use of the code DETEFF, designed and created at CPHR) to the determination of radionuclides in environmental samples. In this sense, it was recognized that Monte Carlo simulation (DETEFF) is a feasible, reliable and traceable method for efficiency calibration of gamma-ray spectrometric systems.

This work shows the methodology for carrying out traceable efficiency calibrations of gamma-ray spectrometric systems using the code DETEFF and the efficiency transfer method. As a demonstration of the reliability of Monte Carlo simulation for the determination of radionuclides in environmental samples, the results of a recent IAEA intercomparison exercise, where the efficiency calibration was completely carried out with DETEFF, are presented. In order to prove the effectiveness of the efficiency transfer methodology carried out using DETEFF, the results of an IAEA intercomparison of efficiency transfer codes (evaluating the performance of DETEFF and the most important Monte Carlo codes used for this purpose) are analyzed. Two different examples on how Monte Carlo simulation (DETEFF) can contribute to the effective utilization of gamma-ray spectrometric systems are presented. The first example is related to self absorption corrections in the measurement of environmental samples (laboratory application). The second example is a work still in progress linked to the applicability of the Monte Carlo code DETEFF for efficiency calibration of detectors for “in situ” determination of activity ground deposition levels by gamma-ray spectrometry. With this purpose, it was designed a methodology for using DETEFF to this specific application. Preliminary results indicate that the use of DETEFF has the potential advantage of requiring a much more reduced simulation time than other Monte Carlo codes, which is essential for in situ gamma-ray spectrometry, where the detector arrangement results in very low detection efficiency. In the same way, the possibility of rapid efficiency calibrations with DETEFF may be of considerable importance in emergency response, where one might simply make some assumption about the source distribution.

2. Monte Carlo simulation (DETEFF) helping to the effective use of gamma-ray spectrometric systems in environmental applications

2.1. Main features of the code DETEFF

DETEFF is a Monte Carlo code programmed in Object Pascal for detector-efficiency calculations in gamma-ray spectrometric systems with coaxial detectors, which can be scintillators (NaI or CsI) or semiconductor detectors (Ge(Li), HpGe or Si(Li)). The code accepts gamma-ray energies from 10.0 keV to 2.0 MeV. The sample configurations are cylindrical, rectangular, and Marinelli beakers, thus including the cases of point and disk sources as degenerate cylindrical geometries. The samples are considered to be axially centred with respect to the detector, so that the source position is defined by the source-to-detector distance. DETEFF has a user-friendly Interface that facilitates de access to the code options. This software runs under Windows platform.

DETEFF uses the Mersenne Twister random number generator (Cornejo et al., 2010^b), which pass most of the empirical statistical tests and has a huge period of $(2^{19937} - 1)$. It should be noted that in almost all the situations modelled with DETEFF, 10^8 random numbers are enough to obtain standard deviations less than 0.2% for the efficiency.

The initial state of each photon is given by its starting point, direction vector, energy, and a statistical weight (initially equal to unity). The simulation begins with the sampling of the starting position for the emission of each photon inside the sample. This starting position is randomly sampled according to a uniform distribution throughout the interior of the source volume, i.e. assuming a homogeneous source-activity distribution. Once the starting point is determined, the direction vector is randomly sampled according to an isotropic distribution.

For Marinelli geometries, the direction vector is sampled in 4π sr, while for rectangular and cylindrical sources (located above the detector) it is sampled only towards the detector semi-space (i.e. within a solid angle of 2π sr).

In order to save computation time, DETEFF does not follow the secondary charged particles and assumes that their kinetic energy is totally deposited at the collision point. However, two procedures have been incorporated to correct the values of energy deposited by charged particles, considering the escape of electrons and bremsstrahlung radiation.

The energy cut-off for photons is 10 keV, thus photons bellow 10 keV are considered to be absorbed at the point where they originated. This assumption saves computation time and is considered to be acceptable in the context of the simulations performed, because the absorption probability for 10 keV photons is considerably higher than the scattering probability.

2.2. The efficiency transfer method in Monte Carlo simulation

One of the main factors that limit the accuracy of the Monte Carlo codes for efficiency calibration is the inaccuracy in the parameters associated with the detector's geometrical characteristics (Korun et al., 1997), because significant deviations in the efficiency can occur from only slight changes in some of these geometrical parameters. Therefore, the detector physical dimensions provided by the suppliers are usually insufficient for accurate efficiency computations, and it is necessary to compare computed with experimental efficiencies for different sample configurations to optimize the detector geometry parameters.

As expressed by Vidmar et al. (2010), even since its introduction by Moens et al. (1981), efficiency transfer (ET) has been a popular method of calculating full-energy peak efficiencies (FEPE) of a sample of interest on the basis of an experimental efficiency curve measured on the same detector, but with a calibrated sample of different size, geometry, density or composition. The procedure saves time and resources, since sample specific experimental calibration is avoided. It has proven especially useful in environmental measurements (Gilmore, 2008), where on the one hand ultimate precision in calibration necessary in metrological applications is usually not required and on the other a variety of different sources might be measured by a laboratory carrying out environmental measurements.

The method works by calculating a ratio of the efficiencies for the sample of interest and for the calibration sample and by multiplying it with the measured FEPE of the latter. A great advantage of the method, as pointed out and verified by its founders, is that in the calculated ratio many inaccuracies in the detector model can be expected to cancel out to a large degree, making it possible to work directly with non-optimized detector data supplied by the manufacturer. The cancellation of differences also applies to the interaction cross-section data that different implementations of the ET method may use and to their physical models of particle interaction and tracking.

In the ET method carried out by Monte Carlo simulation (DETEFF), the efficiency for a given energy in the geometry of interest ϵ_i is calculated from the following relationship.

$$\frac{\epsilon_i}{S_i} = \frac{\epsilon_r}{S_r} \quad (1)$$

where S_i and S_r denote the computed efficiencies for the geometry of interest and for the reference geometry, respectively, and ϵ_r is the known experimental efficiency for the reference geometry.

2.3. Traceability of efficiency calibrations when the ET method is used

The traceability of efficiency calibration, when the ET method is used in Monte Carlo simulation (DETEFF), is guaranteed through the use of certified calibration standards traceable to the International System of Units (SI) for obtaining the experimental efficiency of the reference geometry (ϵ_r). The efficiency for the geometry of interest (ϵ_i) is obtained by multiplying ϵ_r by constant factors (ratio of computed efficiencies), in this way the traceability chain does not break.

$$\epsilon_i = \frac{S_i}{S_r} \cdot \epsilon_r \quad (2)$$

2.4. Is DETEFF reliable for efficiency transfer? Intercomparison of efficiency transfer codes based on Monte Carlo simulation

As referred in our previous work (Vidmar et al., 2010), although the ET method featured prominently and did well in an intercomparison of various calculation approaches to the efficiency determination in gamma-ray spectrometry, organized by Lepy et al. (2001), no study had ever been done into how compatible the different ET codes were with each other. In this sense, an intercomparison exercise on efficiency transfer (ET) codes was carried out, with the aim of establishing their equivalence and/or quantifying the differences between them. The users of different codes were thus asked to perform calculations of the ET factor for a set of well-defined sample and detector parameters. The exercise was supposed to bring to light the sources of potential differences between the codes and help establish general guidelines for stating the part of the uncertainty attributable to this sort of calculation method stemming from the inherent differences between its various implementations.

2.4.1. Method

The different ET codes considered were confronted with each other without any reference to experimental data and without any intention of eventually favouring one over the other. Rather, the potential differences between them were simply supposed to shed light on the problems in the field that may not have been apparent until now and give a "feeling" of how reliable such calculations are in ideal circumstances.

The intercomparison was partially spurred by a similar study on the use of Monte Carlo codes in gamma-ray spectrometry for direct calculation of the FEPE and total efficiencies (Vidmar et al., 2008). The crucial difference, though, is that the ET method, as explained above, uses ratios of calculated efficiencies, not their directly computed values.

The codes featuring in the intercomparison fell into two categories: specialised codes written specifically for efficiency calculations in gamma-ray spectrometry and general Monte Carlo simulation tools adapted to the task at hand. From the first group, the codes GESPECOR (Sima and Arnold, 2002), ETNA (Piton et al., 2000), DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008), ANGLE (Jovanović et al., 1997) and EFFTRAN (Vidmar, 2005) were tested. The representatives of the second group were GEANT 3.21 (Brun et al., 1987), MCNP (Briesmeister, 2000; X-5 Monte Carlo Team, 2003), PENELOPE (Salvat et al., 2003; Salvat et al., 2008) and EGS4 (Nelson et al., 1985).

A p-type and an n-type detector model were considered, along with a set of well defined sample geometries. In all the cases, a complete cylindrical symmetry of the sample-detector geometry was presumed. The parameters of the two HPGe detectors used in the study are given in Table 1 and a sketch of the p-type detector is also provided (Figure 1). The two detectors are identical, except for the thickness of the dead layer and the material and thickness of the front window. The sources are described in Table 2 and the characteristics of various materials used in the constructions of the detector and sample models are given in Table 3. Each source was embedded in a tightly fitting container and in the calculations the sources were all placed directly onto the detector window, except for the point source. For each of the possible detector-sample combinations, ET factors were computed for the following set of energies: 20, 45, 60, 80, 120, 200, 500, 1000 and 2000 keV. The lowest energy was only considered with the n-type detector. The participants were asked to keep the relative statistical uncertainty of all the reported results below 1%.

The ET factor was defined as the ratio of the calculated efficiencies for the sample geometry and the reference geometry. The reference geometry was in all cases that of the $\Phi 60 \times 20$ mm water solution. The transfer from this Reference source to the Soil and Filter geometries can quite realistically be expected to be carried out in practice, although the deviation of the latter geometries from the reference source is rather pronounced. On the other hand, the ET to the Point configuration was only included as a demanding test of the codes and would not be recommended in practice.

The efficiencies calculated by the codes to arrive at the ET factors could be either full-energy ones or total efficiencies, depending on the way a given code works. In the latter case, the validity of the theorem on the independence of the virtual total-to-peak ratio

was invoked, as explained above. Table 4 shows the codes, their basic characteristics and the ways in which they were applied.

Table 1: Detector parameters. All dimensions are given in millimetres (mm). The housing diameter is in all cases the same as the window diameter.

Parameter	Detector A	Detector B
Crystal type	p	n
Crystal material	Ge	Ge
Crystal diameter (including the side dead layer)	60	60
Crystal length (including the top dead layer)	60	60
Dead layer thickness (top and side)	1	0.0003
Hole diameter	10	10
Hole depth	40	40
Window diameter	80	80
Window thickness	1	0.5
Window material	Al	Be
Crystal-to-window distance	5	5
Housing length	80	80
Housing thickness	1	1
Housing material	Al	Al

Table 2: Sample parameters. All dimensions are given in millimetres (mm). The container is in all cases, except for the point source, a plastic vessel of 1 mm thickness, tightly encasing the sample on all sides. The point source has no container.

Parameter	Reference	Point	Soil	Filter
Sample diameter (including the container)	60	0.0	90	80
Sample height (including the container)	20	0.0	40	3
Sample material	Water	-	Quartz	Cellulose
Container-to-detector-window distance	0.0	1.0	0.0	0.0

Table 3: Characteristics of various detector and sample materials. All densities are given in g/cm³.

Material	Density	Chemical formula
Ge	5.323	Ge
Al	2.700	Al
Be	1.848	Be
Water	1.000	H ₂ O
Quartz	1.400	SiO ₂
Cellulose	0.200	C ₆ H ₁₂ O ₆
Plastics (polystyrene)	1.050	C ₈ H ₉

Table 4: The various combinations of the codes, their types and the ET implementations considered in the study

Computer Code	ET Implementation		Code Type	
	FEPE	TE	Specialized	General
ANGLE		x	x	
DETEFF 4.2	x	x	x	
EFFTRAN		x	x	
ETNA		x	x	
EGS4	x			x
GEANT 3.21	x	x		x
GESPECOR 4.2	x		x	
MCNP4C	x			x
MCNP5	x			x
MCNPX	x			x
PENELOPE 2003	x			x
PENELOPE 2008	x			x
PENELOPE PENCYL	x			x

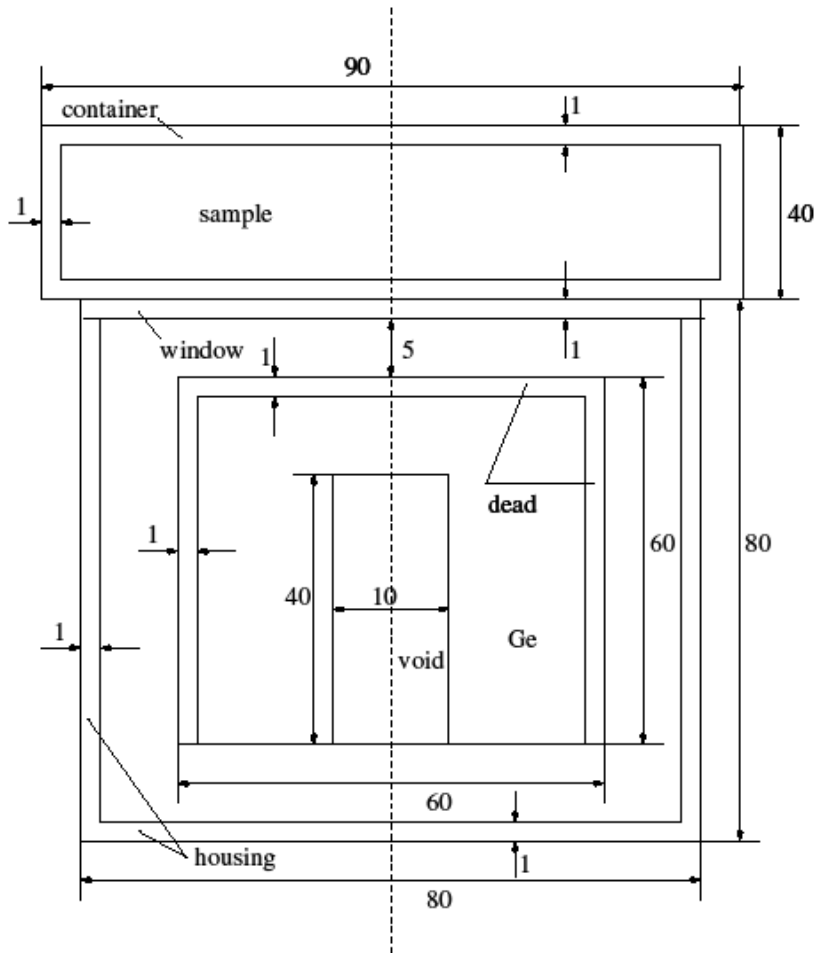


Figure 1: A schematic presentation of the setup for the case of the soil sample and the p-type detector model.

2.4.2. Results and discussion

For each detector-sample configuration and energy the mean of the ET factors was first calculated over all the sixteen data sets (Table 5).

Table 5: The mean value of the ET factors for each energy and sample type calculated by averaging over all the data sets submitted by the participants.

Energy	Point A	Point B	Soil A	Soil B	Filter A	Filter B
20		3.6744		0.0866		2.0699
45	1.7188	2.3361	0.2831	0.3129	0.9254	1.3695
60	1.8967	2.2857	0.3535	0.3787	1.0141	1.3373
80	2.0879	2.2789	0.3978	0.4166	1.1102	1.3242
120	2.2535	2.3018	0.4379	0.4473	1.2054	1.317
200	2.2647	2.2811	0.4756	0.4775	1.2556	1.3131
500	2.149	2.1642	0.5189	0.5187	1.2562	1.2904
1000	2.063	2.0818	0.5446	0.5435	1.2472	1.2712
2000	1.9979	2.0089	0.5675	0.5642	1.2368	1.2561

Table 6 shows the obtained results using DETEFF and Table 7 presents the relative differences of DETEFF respect to the mean values.

Table 6: ET factors calculated using DETEFF

DETEFF (FEP)						
Energy	Point A	Point B	Soil A	Soil B	Filter A	Filter B
20		3.6972		0.0875		2.0803
45	1.7134	2.3367	0.2817	0.3123	0.9172	1.3670
60	1.8913	2.2870	0.3505	0.3784	1.0027	1.3380
80	2.0913	2.2821	0.3988	0.4173	1.1087	1.3258
120	2.2625	2.3093	0.4376	0.4469	1.2000	1.3168
200	2.2665	2.2930	0.4725	0.4771	1.2464	1.3096
500	2.1563	2.1810	0.5202	0.5202	1.2486	1.2855
1000	2.0758	2.0940	0.5446	0.5444	1.2429	1.2634
2000	2.0121	2.0264	0.5691	0.5668	1.2313	1.2540

Table 7: Relative deviations of DETEFF respect to the mean values

Relative deviations of DETEFF [%] (FEP)						
Energy	Point A	Point B	Soil A	Soil B	Filter A	Filter B
20		0.62		0.98		0.50
45	-0.31	0.03	-0.48	-0.19	-0.88	-0.19
60	-0.28	0.06	-0.86	-0.07	-1.13	0.06
80	0.16	0.14	0.25	0.17	-0.14	0.12
120	0.40	0.32	-0.06	-0.10	-0.45	-0.01
200	0.08	0.52	-0.66	-0.09	-0.73	-0.27
500	0.34	0.77	0.25	0.29	-0.60	-0.38
1000	0.62	0.59	0.00	0.16	-0.34	-0.62
2000	0.71	0.87	0.28	0.46	-0.44	-0.17

As can be seen, in all the studied cases, the relative deviations of the ET factors calculated by DETEFF were below 1.2% respect to the mean values. This result is very satisfactory and indicates a very good performance of DETEFF in this intercomparison exercise. In this sense, DETEFF is a reliable Monte Carlo code for carrying out efficiency transfer in gamma-ray spectrometry.

Regarding the performance of the other Monte Carlo codes in this exercise, Table 8 shows the standard deviation of the population of the ET factors, as percent of its mean. The value exceeding 2% is marked in bold. The averaging and the standard deviation calculation were done over all the data sets.

The results of the different codes agree with each other within their respective statistical uncertainties. It is true that for the lowest energy considered, especially with the n-type detector model, the mean difference reaches 2.5%. However, on the one hand, one can safely argue that the ET factor for the energy of 20 keV is rarely required in environmental measurements. On the other hand, the agreement between the codes at higher energies points to proper and equivalent treatments of the mechanisms of particle tracking (FEPE calculations) and integration (virtual TE computations).

Table 8: Standard deviation of the population of the ET factors, as percent of its mean.

Energy	Point A	Point B	Soil A	Soil B	Filter A	Filter B
20		1.4		2.5		1.2
45	0.5	0.9	0.9	0.5	0.9	0.8
60	0.6	0.5	0.9	0.9	1.0	0.5
80	0.6	0.4	0.9	0.7	0.8	0.5
120	0.5	0.4	0.7	0.5	0.6	0.6
200	0.7	0.7	0.6	0.6	0.6	0.8
500	0.8	0.9	0.8	0.3	0.6	0.9
1000	0.7	1.1	0.5	0.5	0.8	0.9
2000	0.7	1.0	0.7	0.6	0.8	0.8

2.4.3. Conclusion

It has been demonstrated that for the purpose of environmental measurements, DETEFF and the most widely used general MC packages and the specialized software for efficiency calculations can all be considered equivalent when used to realise the ET method. Within the statistical uncertainties of the results (1%), no systematic difference was found between the codes that base the ET calculation on full-energy peak efficiency (FEPE) and those that utilize (virtual) total efficiencies. These findings can give the user confidence in the method itself and in its different implementations.

2.5. IAEA-CRP1471-01 Proficiency Test on Determination of Radionuclides in Sediment Sample

The Radiometrics Laboratory of the International Atomic Energy Agency's Marine Environment Laboratories has been providing quality products for the last 40 years which include the organization of intercomparison exercises, proficiency tests, production of Reference Materials and Certified Reference Materials, and training. More than 40 Reference Materials have been produced, which include a wide range of marine sample matrices and radionuclide concentrations.

The Radiometrics Laboratory of the International Atomic Energy Agency's Marine Environment Laboratories organised a PT for the Coordinated Research Programme (CRP1471) "Benchmarking Calibration for Low-Level Gamma Spectrometric Measurements of Environmental Samples" to test the analytical performance for radionuclides on a sediment sample of participating laboratories. Laboratories agreed that, after the completion of the exercise, an IAEA report describing the results of the proficiency test would be issued, including their identities.

2.5.1. Proficiency test objectives

In 2009-2010, on request from the Coordinated Research Programme (CRP1471) "Benchmarking Calibration for Low-Level Gamma Spectrometric Measurements of Environmental Samples", a PT on the determination of radionuclides in a marine sediment sample was organised by IAEA-MEL. The IAEA Certified Reference Material IAEA-385 "Radionuclides in Irish Sea sediment" was used in this exercise, the identity of this sample remaining undisclosed to the participants during the exercise. The results of this exercise are meant to allow the participating laboratories to evaluate their performance in the analysis of the radionuclides in this sample and the comparability of their corresponding monitoring data.

Participants

A total of 10 laboratories from 8 countries have participated in the exercise.

Material distribution and reporting requirements

Each participant received 100g of sediment sample, with massic activities known by the organiser (IAEA-MEL), but kept unknown to the participants throughout the exercise. The material composition and its characterisation were determined and described in Pham et al. (2005) and Pham et al. (2008). The participants were asked to determine as

many radionuclides as possible by gamma-ray spectrometry. For each radionuclide analysed, the following information was requested:

- Average weight of sample used.
- Number of analyses.
- Massic activity calculated as net values (i.e. corrected background) and expressed in Bq kg⁻¹ dry weight.
- Estimate of the combined uncertainty.
- Description of counting equipment.
- Reference standard solutions used.
- Counting time, half-life used.

2.5.2. Performance criteria

The methodology adopted for this PT is the one used in previous IAEA PTs organised by the Unit of the Physics, Chemistry and Instrumentation Laboratory in Seibersdorf and by the Radiometric Laboratory in Monaco, described in detail in Shakhashiro et al. (2006). The scoring system takes into account the trueness and the precision of the reported data and includes in the evaluation both the combined standard uncertainty of the target value and the combined standard uncertainty reported by the participating laboratories. A result must pass both criteria for accuracy and precision to be assigned the status “Acceptable”, otherwise it will acquire the status “Warning” or “Not Acceptable”.

A description of the criteria for evaluating trueness and precision is given in 2.6.1.2.

2.5.3. Results using DETEFF for efficiency calibration

In this Proficiency Test, we use the efficiency calibration generated by DETEFF. We applied the ET method employing, as reference sources, certified calibration standards of 110 mL volume (traceable to SI, Czech Metrology Institute).

Tables 9 to 15 presents the performance evaluation sorted by radionuclide. According to this Proficiency Test, the code assigned to our laboratory was 7.

Table 9: Evaluation results for ⁴⁰K in IAEA-385 (Target value: 607 ± 18 Bq kg⁻¹)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	516	18	3.6	15	-1.5	3.5	failed	passed	Warning
2	566	40	7.1	6.8	-0.7	0.9	passed	passed	Acceptable
3(P)	585	72	12.3	3.6	-0.4	0.3	passed	passed	Acceptable
3(M)	591	64	10.8	2.6	-0.3	0.2	passed	passed	Acceptable
4	460	15	3.3	24.2	-2.4	6.3	failed	passed	Not Acceptable
5	609	24	3.9	-0.3	0.03	-0.07	passed	passed	Acceptable
6	625	160	25.6	-3	0.3	-0.1	passed	failed	Warning
7	600	34	5.7	1.2	-0.1	0.2	passed	passed	Acceptable
8	620	100	16.1	-2.1	0.2	-0.1	passed	failed	Warning
9	545	22	4.0	10.2	-1.0	2.2	passed	passed	Acceptable
10	612	100	16.3	-0.8	0.1	0.0	passed	failed	Warning

Table 10: Evaluation results for ^{137}Cs in IAEA-385 (Target value: $25.0 \pm 1.7 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	23.1	1.0	4.3	7.6	-0.8	0.9	passed	passed	Acceptable
2	24.6	2	8.1	1.6	-0.2	0.2	passed	passed	Acceptable
3	25	2	8.0	0.04	0.0	0.0	passed	passed	Acceptable
4	14.4	1.6	11.1	43	-4.3	4.5	failed	passed	Not Acceptable
5	25.3	1.3	5.1	-1.2	0.1	-0.1	passed	passed	Acceptable
6	14	5.3	38	44	-4.4	2	passed	failed	Not Acceptable
7	25.1	1.4	5.6	-0.4	0.04	-0.04	passed	passed	Acceptable
8	27	4	14.8	-8	0.8	-0.5	passed	failed	Warning
9	23.1	0.9	4.0	7.5	-0.8	0.9	passed	passed	Acceptable
10	25	6	24	0.0	0.0	0.0	passed	failed	Warning

Table 11: Evaluation results for ^{214}Bi in IAEA-385 (Target value: $19.6 \pm 2.2 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	19	0.85	4.5	3.1	-0.3	0.3	passed	passed	Acceptable
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3(P)	22	1	4.5	-12.2	1.2	-0.99	passed	passed	Acceptable
3(M)	21	1	4.8	-7.1	0.7	-0.58	passed	passed	Acceptable
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	21.6	1.2	5.6	-10.2	1.02	-0.80	passed	passed	Acceptable
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-
9	18.6	1.5	8.1	5.1	-0.5	0.4	passed	passed	Acceptable

Table 12: Evaluation results for ^{214}Pb in IAEA-385 (Target value: $21.6 \pm 2.4 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	19	0.8	4.5	3.1	-0.3	0.3	passed	passed	Acceptable
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3(P&M)	20	1	5.0	7.4	-0.7	0.6	passed	passed	Acceptable
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	24	6.5	27.1	-11.1	1.1	-0.3	passed	failed	Warning
7	21.6	1.2	5.6	-10.2	1.0	-0.8	passed	passed	Acceptable
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-
9	21	1.7	8.1	2.8	-0.3	0.2	passed	passed	Acceptable

Table 13: Evaluation results for ^{226}Ra in IAEA-385 (Target value: $21.9 \pm 0.9 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2	21.4	1.8	8.4	2.3	-0.2	0.3	passed	passed	Acceptable
3	21	1	4.8	4.1	-0.4	0.7	passed	passed	Acceptable
4	22.5	2.3	10.2	-2.7	0.3	-0.24	passed	passed	Acceptable
5	21.9	1.2	5.5	0.0	0.0	0.0	passed	passed	Acceptable
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	21.6	1.2	5.6	1.4	-0.1	0.2	passed	passed	Acceptable
8	29	6	21	-32	3.2	-1.2	passed	failed	Not Acceptable
9	41	17	42	-87	8.7	-1.1	passed	failed	Not Acceptable
10	21	4	19	4.1	-0.4	0.2	passed	failed	Warning

Table 14: Evaluation results for ^{228}Ac in IAEA-385 (Target value: $34 \pm 3 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	34.3	4.6	13.4	-8.9	0.9	-0.5	passed	failed	Warning
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3	34	3	8.8	-7.9	0.8	-0.6	passed	passed	Acceptable
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	39	10	25.6	-23.8	2.4	-0.7	passed	failed	Not Acceptable
7	33.1	1.9	5.7	-5.1	0.5	-0.5	passed	passed	Acceptable
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-
9	32.4	1.6	4.9	-2.9	0.3	-0.3	passed	passed	Acceptable

Table 15: Evaluation results for ^{232}Th in IAEA-385 (Target value: $33.7 \pm 1.1 \text{ Bq kg}^{-1}$)

Lab Code	Lab Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Unc. (%)	Rel. Bias	Z-Score	U-Test	Trueness	Precision	Final Score
1	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3(P)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3(M)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	33.1	1.9	5.7	1.8	-0.2	0.3	passed	passed	Acceptable
8	-	-	-	-	-	-	-	-	-
9	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10	35	8	23	-3.9	0.4	-0.2	passed	failed	Warning

2.5.4. Performance evaluation table sorted by Laboratory code

Table 16 shows the performance evaluation table corresponding to our analytical laboratory.

Table 16: Performance of Laboratory No7, Centre of Radiation Protection and Hygiene (CPHR), La Habana, Cuba.

Analyte	IAEA Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	IAEA Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab. Value [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Lab. Unc. [Bq kg ⁻¹ d.w.]	Rel. Bias (%)	u- Test	Trueness	Precision	Final Score
⁴⁰ K	607	18	600	34	1.2	0.2	passed	passed	Acceptable
¹³⁷ Cs	25.0	1.7	25.1	1.4	-0.4	0.0	passed	passed	Acceptable
²¹⁴ Pb	21.6	2.4	21.6	1.2	0.0	0.0	passed	passed	Acceptable
²²⁶ Ra	21.9	0.9	21.6	1.2	1.4	0.2	passed	passed	Acceptable
²²⁸ Ac	31.5	2.8	33.1	1.9	-5.1	-0.5	passed	passed	Acceptable
²³² Th	33.7	1.1	33.1	1.9	1.8	0.3	passed	passed	Acceptable

2.6. Examples on how Monte Carlo simulation (DETEFF) can contribute to the effective utilization of gamma-ray spectrometric systems in environmental applications

2.6.1. Study on the effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in environmental samples

2.6.1.1 Introduction

As expressed in our previous work (Carrazana et al., 2010), to quantify low energy radionuclides in environmental samples by gamma-ray spectrometry it is necessary to estimate the relevant self-attenuation corrections. There are two main possibilities for performing these estimations: using an experimental design based on collimated point sources, or simulating the absolute full energy peak efficiency by Monte Carlo simulation. In the latter case, the accuracy is strongly dependent on adequate knowledge of the elementary chemical composition of the source matrix.

In intercomparison exercises and proficiency tests, information on the elementary chemical composition of samples is often not provided. As a consequence, participating laboratories using Monte Carlo codes for efficiency calibration and considering different elementary chemical compositions of samples might show different performances, particularly for energies below 60 keV. In this sense, it is known that for this energy range the assumption of sample mass attenuation coefficients similar to those of water (for self-absorption corrections in environmental samples) is not correct. A previous work by Jurado et al. (2002) found that, for photon energies greater than about 80 keV and materials with $Z < 20$, the mass attenuation coefficients are almost independent of the effective atomic number Z_{eff} of the material. Below about 60 keV, however, the photon attenuation correction for most environmental samples depends greatly on their elementary chemical composition.

To study the influence of the soil's chemical composition on the estimation of activity concentrations of low-energy radionuclides by gamma-ray spectrometry, we carried out a theoretical exercise evaluating the performance in a hypothetical proficiency test (or intercomparison exercise) in which four different analytical laboratories analyze a soil sample, assuming the same density but a different chemical composition during Monte

Carlo calculation of the self-attenuation corrections. In this exercise, it was supposed that all participant laboratories had good analytical capabilities.

2.6.1.2. Hypothetical proficiency test

The task for each laboratory was to estimate the activity concentration of ^{109}Cd (24.9 keV), ^{210}Pb (46.5 keV), and ^{241}Am (59.5 keV) in a soil sample. Five different compositions of soil, published by the International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU) ([ICRU, 1994], were considered (see Table 17). A given chemical composition was assumed for the reference soil, whereas other compositions from soil 1 to soil 4 were assigned to each of the four laboratories for Monte Carlo calculation of the absolute full energy peak (FEP) efficiency corresponding to each energy value. It should be stressed that the corrections for self-attenuation in the soil matrix are included in the calculated FEP efficiency values. It was assumed that the only difference between laboratories was the soil composition used for the aforementioned correction.

The performance evaluation of the participant laboratories was carried out following the approach used by the International Atomic Energy Agency (IAEA) in recent intercomparison exercises and proficiency tests (Shakhashiro et al., 2006). For the trueness evaluation, the results are considered “Acceptable” if:

$$A_1 \leq A_2 \quad (3)$$

where $A_1 = |V_{\text{ref}} - V_{\text{lab}}|$ (4)

and $A_2 = 2.58 \cdot \sqrt{U_{\text{ref}}^2 + U_{\text{lab}}^2}$ (5)

with V_{ref} being the reference value for activity concentration, V_{lab} the activity concentration result reported by the participant laboratory, and U_{ref} and U_{lab} the standard combined uncertainties associated with V_{ref} and V_{lab} , respectively.

For the precision evaluation, the estimator P needs to be calculated according to the formula:

$$P = \sqrt{\frac{U_{\text{ref}}^2}{V_{\text{ref}}^2} + \frac{U_{\text{lab}}^2}{V_{\text{lab}}^2}} \times 100\% \quad (6)$$

The participant’s results are considered “Acceptable” for precision if the following condition is satisfied:

$$P \leq \text{LAP} \quad (7)$$

where LAP denotes the limit of acceptable precision, which is set for each analyte as a function of its concentration level and the difficulty of determination.

A result must obtain an “Acceptable” score in both criteria (trueness and precision) to be assigned the final score “Acceptable”. In cases where either precision or trueness is

“Not Acceptable”, the relative deviation from the reference value ($Rd = A_1/V_{ref}$) must be compared with the maximum acceptable bias (MAB). When $Rd \leq MAB$ the result is considered as a “Warning”, otherwise when $Rd > MAB$ the result is evaluated as “Not Acceptable”.

In the framework of this theoretical exercise, the relative standard uncertainties U_{ref}/V_{ref} and U_{lab}/V_{lab} were considered as those established for the reference values during the ALMERA proficiency test (IAEA, 2007) for the determination of low energy radionuclides in soil samples, being 5% for ^{109}Cd and ^{210}Pb , and 2.5% for ^{241}Am . The LAP and MAB values established in (IAEA, 2007) were also adopted, and are listed in Table 18. One notes that the values of P calculated with equation (4) are lower than the corresponding LAP values, i.e., the test of precision is “Acceptable” for all laboratories and our exercise hence focuses on the test of trueness.

2.6.1.3. Efficiency calculations

Considering that the only different factor between laboratories is the soil composition assumed during the Monte Carlo calculation of the self-attenuation factor, the relationship between the reference value and the value reported by any laboratory can be calculated, for a given energy, as follows:

$$\frac{V_{lab}}{V_{ref}} = \frac{\epsilon_{ref}}{\epsilon_{lab}} \quad (8)$$

where ϵ_{ref} and ϵ_{lab} denote the FEP efficiencies calculated for the reference soil and for the soil composition adopted by the laboratory, respectively.

The values of the FEP efficiencies, for the selected gamma-ray energies in each type of soil, were determined using the Monte Carlo code DETEFF (Cornejo and Jurado, 2008). The information concerning the properties of the HpGe (n-type) detector used is summarized in Table 19. The measurement geometry (cylindrical of 110 mL, with diameter = 5.1cm and height = 5.4 cm) was selected considering 100 g of soil, which is usually the mass sent to participant laboratories during proficiency tests and intercomparison exercises organized by the IAEA. The source container (made of polyethylene with wall thickness = 0.1 cm) was placed at 1 mm from the surface of the detector entrance window. The assumed density of the soil was 1.6 g.cm^{-3} .

Mass attenuation coefficients corresponding to different soil compositions and energy values were calculated using the XCOM database (Berger et al., 1999). Table 20 shows significant differences between these coefficients, especially for the lowest energy value.

2.6.1.4. Results and discussion

Using the detector model and source geometry described previously, FEP efficiencies were obtained by Monte Carlo simulation for each type of soil. Figure 2 shows the plots of these efficiency values as a function of energy. The number of simulated photons was adjusted in each case to achieve relative statistical uncertainties (corresponding to one standard deviation) lower than 1%.

The results obtained by laboratories 1 to 4 during our hypothetical proficiency test, according to the IAEA performance evaluation criteria (Shakhashiro et al., 2006), are presented in Table 21. In order to facilitate the analysis, the results were normalized with the reference values V_{ref} . As was noted above, it was assumed that the laboratories reported the results with the same precision as the reference laboratory, i.e., the relative uncertainties reported by the participant laboratories were considered equal to the relative uncertainties associated with the reference values.

The results obtained by Laboratories 1 and 2 show similar scores (“Acceptable”) for all the analyzed radionuclides except ^{109}Cd , for which Laboratory 1 failed the test of trueness and got a “Warning” final score. This is because, for this determination, the trueness test failed and $R_d \leq \text{MAB}$. In general, the chemical composition of the reference soil and Soils 1 and 2 are quite similar, as can be noted from Table 1. However, it has been demonstrated that just slight differences in chemical composition can affect the activity concentration measurement of radionuclides with energies below 25 keV.

When the chemical composition of the soil differs significantly from that of the reference, marked relative deviations (about 70 % or more) can arise in the quantification of low-energy gamma-emitting radionuclides. Laboratories 3 and 4 obtained “Not Acceptable” and “Warning” final scores for all the analytical determinations. The most problematic nuclides were ^{109}Cd and ^{210}Pb with “Not Acceptable” final scores in the determinations carried out by both laboratories. In the analysis of these radionuclides, the trueness test failed and the condition $R_d \leq \text{MAB}$ was not satisfied. ^{241}Am , with higher gamma-ray energy, shared “Acceptable” and “Warning” final scores. As was expected, the self-absorption correction was more significant as the gamma-ray energy decreases.

Although Laboratories 1 and 2 obtained “Acceptable” and “Warning” results as final scores in all the analytical determinations, their assumed random selection of the type of soil indicates the fortuitous character of their results. The same is the case for Laboratories 3 and 4. Likewise, the final scores for the participant laboratories might be very different taking a different type of soil as reference. For example, if Soil 3 had been taken as the reference soil, all participant laboratories would have obtained “Not Acceptable” final scores for ^{109}Cd and ^{210}Pb . As in the former case, ^{241}Am would have shared “Acceptable” and “Warning” final scores.

Furthermore, in a real exercise, the distribution of results would have to be wider because of the influence of other factors on the overall uncertainty. The assumption considered in this work, that only the self-absorption correction is responsible for the observed bias, is very conservative and is just an indicator of the isolated contribution of this parameter and its significant weight during the performance evaluation of a laboratory in a proficiency test or intercomparison exercise.

Table 17

Elementary chemical composition (in % of mass) of soil types used for the test.

Element	Ref. soil	Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
H	2.2	2.2	1.1	10.0	---
C	---	---	1.2	11.4	---
O	57.5	58.2	55.8	78.0	45.2
N	---	---	---	0.4	---
Mg	---	---	---	---	2.5
Al	8.5	10.6	7.2	---	8.3
Si	26.2	26.2	31.6	---	25.0
S	---	---	---	0.2	---
K	---	---	---	---	1.8
Ca	---	---	---	---	4.1
Ti	---	---	---	---	0.7
Mn	---	---	---	---	0.2
Fe	5.6	2.8	3.1	---	12.2

Table 18

Acceptable limits for LAP and MAB corresponding to the soil sample.

Radionuclide	LAP (%)	MAB
¹⁰⁹ Cd	25	0.25
²¹⁰ Pb	30	0.30
²⁴¹ Am	25	0.25

Table 19

Characteristics of the n-type HpGe detector used for the proficiency test simulation.

Characteristic	Value [mm]
Crystal diameter	56
Crystal length	60
Core diameter	10
Core height	42
Frontal dead layer thickness	5E-04
Lateral dead layer thickness	5E-04
Be window to crystal distance	5
Entrance Be window diameter	66
Entrance Be window thickness	1
External diameter of Al cover	74
Frontal Al cover thickness	1
Lateral Al cover thickness	1

Table 20

Mass attenuation coefficients (μ/ρ) for soils defined by ICRU [2].

Radionuclide	Energy (keV)	(μ/ρ) [$\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$]				
		Ref. soil	Soil 1	Soil 2	Soil 3	Soil 4
^{109}Cd	24.9	1.755	1.423	1.507	0.434	3.039
^{210}Pb	46.5	0.396	0.343	0.354	0.212	0.591
^{241}Am	59.5	0.268	0.243	0.247	0.190	0.357

Table 21

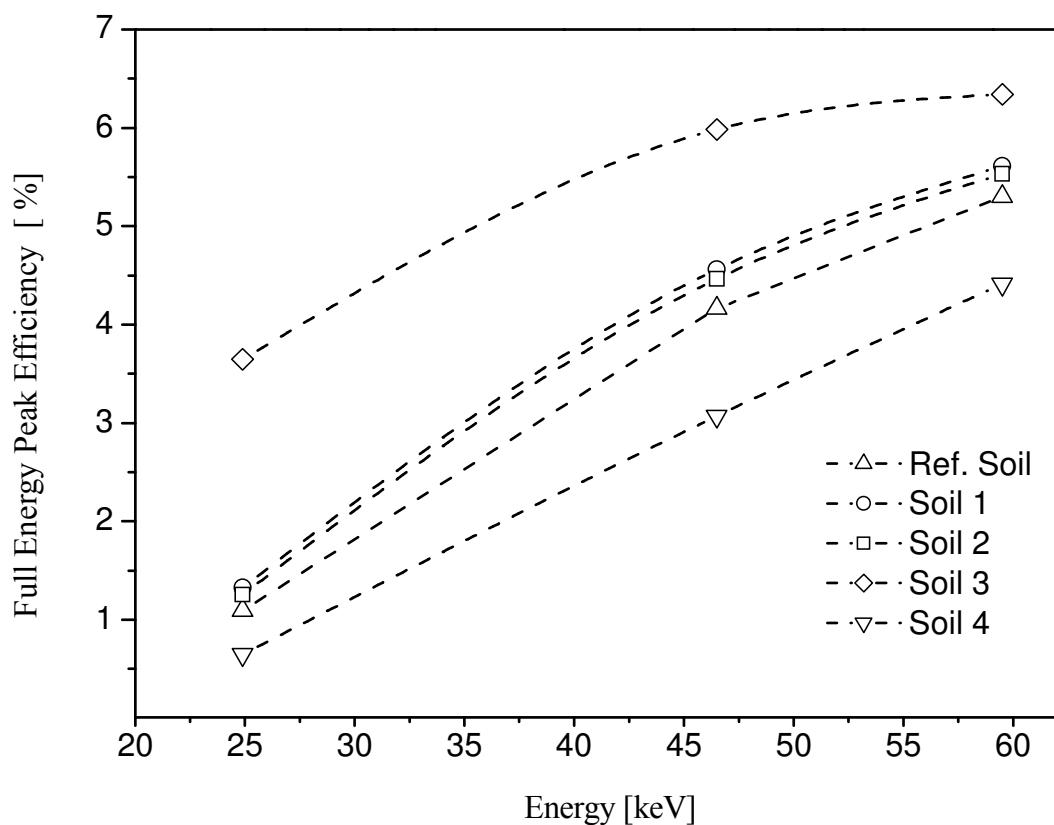
Normalized values for each laboratory and the corresponding proficiency test results.

Laboratory	Radionuclide	V_{lab}/V_{ref}	U_{lab}/V_{ref}	A_1/V_{ref}	A_2/V_{ref}	Trueness ¹	Final ² Score
1 (Soil 1)	¹⁰⁹ Cd	0.824	0.041	0.176	0.167	N	W
	²¹⁰ Pb	0.913	0.046	0.087	0.175	A	A
	²⁴¹ Am	0.945	0.024	0.055	0.089	A	A
2 (Soil 2)	¹⁰⁹ Cd	0.871	0.044	0.129	0.172	A	A
	²¹⁰ Pb	0.933	0.046	0.067	0.175	A	A
	²⁴¹ Am	0.958	0.024	0.042	0.089	A	A
3 (Soil 3)	¹⁰⁹ Cd	0.300	0.015	0.700	0.135	N	N
	²¹⁰ Pb	0.696	0.035	0.304	0.157	N	N
	²⁴¹ Am	0.836	0.021	0.164	0.084	N	W
4 (Soil 4)	¹⁰⁹ Cd	1.691	0.085	0.691	0.254	N	N
	²¹⁰ Pb	1.357	0.068	0.357	0.218	N	N
	²⁴¹ Am	1.201	0.030	0.201	0.101	N	W

¹ N means Not Acceptable, and A means Acceptable.

² The Final Score assumes that the test of precision was Acceptable for all laboratories. W means "warning".

Fig. 2: Values of FEP efficiencies calculated for the five types of soil used



2.6.1.5. Conclusions

The use of Monte Carlo simulation for the efficiency calibration in gamma-ray spectrometry is becoming ever more common, with increasing numbers of laboratories trusting this calibration method whose use is being promoted by recognized organizations such as the IAEA in the framework of international projects [IAEA CRP1471]. Monte Carlo simulation offers the possibility of precise self-absorption corrections whenever the elementary chemical composition of the analyzed samples is well known.

The present work has shown that “Not Acceptable” results can be obtained by laboratories just from the fact of considering different types of soils for self-absorption corrections. In order to limit the bias of laboratories in real analytical problems, the conclusion has to be that collecting the detailed chemical composition of the samples is essential issue to be considered by analytical laboratories that use the Monte Carlo method for the calculation of self-attenuation corrections.

2.6.2. Application of the Monte Carlo code DETEFF to the efficiency calibrations for “in situ” gamma-ray spectrometry

2.6.2.1. Introduction

There are two recognized methodologies for the determination of radionuclide ground deposition levels in the environment: the soil sampling and the in situ gamma ray spectrometry using high-purity germanium (HPGe) detectors.

The soil sampling can provide information about the horizontal and vertical distribution of the radionuclide of interest. However, this approach is time consuming and numerous samples are usually required in order to obtain consistent mean values for the ground deposition levels in large areas.

In situ gamma-ray spectrometry, on the other hand, is considered a quick and reliable method for the determination of radionuclides in the environment. In the case of ground-level gamma-ray spectrometry, the detector is usually located at a height of 1 m above ground and the spectrum of the ambient gamma radiation is collected. The power of such measurements lies in the fact that the detector, positioned over the ground surface, measures the gamma radiation originated in an area of several hundred square meters. This integration of the photon fluence over all the measured area permits that more reliable mean values of ground depositions are obtained.

In order to obtain a value for the ground deposition level in a specific area, an efficiency calibration of the detector is necessary. To perform this task, knowledge or assumptions about both the radionuclide depth distribution and soil density are required. These data are obtained by means of the soil sampling, being the number of samples a trade off between the required uncertainty and the costs of the sampling and of the sampling evaluation processes.

Experimental efficiency calibration of detectors for in situ gamma-ray spectrometry is a difficult and time consuming task, because a large number of standards and measurements would be required to cover the range of experimental settings

encountered in the field. In order to overcome these difficulties, several semi-empirical methods (e.g. ICRU, 1994; Boson et al, 2006) and Monte Carlo procedures (e.g. Gering, et al., 1998; Likar, et al., 2004; Boson, et al., 2009) have been suggested for calculating in situ measurement calibration factors. In this sense, the Monte Carlo method seems to be the more cost-effective and flexible option, facilitating the assessment of calibration factors for a much wider variety of source distributions and measurement geometries. However, no reliable results can be obtained without the comprehensive validation of the Monte Carlo model.

As referred previously in this work, the Monte Carlo code DETEFF (Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2008, 2010^a) was designed for the calculation of the full-energy peak (FEP) efficiency in typical coaxial gamma-ray detectors: NaI, CsI, Ge(Li), HPGe, and Si(Li). The sample configurations considered by the code DETEFF are cylindrical, rectangular, or Marinelli beakers, thus including the cases of point and disk sources as degenerate cylindrical geometries. The samples are considered to be axially centred with respect to the detector, so that the source position is defined by the source-to-detector distance. Although the program has been thoroughly validated for relatively small sources, measured close to detector, i.e. in “efficient” counting geometries used in analytical laboratories (Jurado Vargas, et al., 2002, 2003; Cornejo Díaz and Jurado Vargas, 2010^a; Vidmar et al., 2010), no validation exercise have been carried out so far for in situ measurements, where large area radiation sources situated far away from detectors need to be simulated. In these conditions, the code DETEFF can be a suitable tool, because of its reduced simulation time compared with other Monte Carlo programs.

In this work we analyze the applicability of the Monte Carlo code DETEFF for efficiency calibration of detectors for in situ determination of activity ground deposition levels by gamma-ray spectrometry. For this purpose we designed the methodology to be applied for the determination of ¹³⁷Cs activity ground deposition.

2.6.2.2. Use of DETEFF for in situ gamma-ray spectrometry

DETEFF assumes a homogeneous distribution of the radioactive material inside the source volume. For this reason, the uniform slab model proposed by Boson et al. (2006) has been adopted to describe the activity depth distribution used for the calculation of the in situ measurement calibration factors. In our model, the source consists of different cylindrical slabs, where each slab has a defined individual thickness, homogeneous density and a fraction of the total activity homogeneously distributed. The schematic description of the model is presented in Fig. 3.

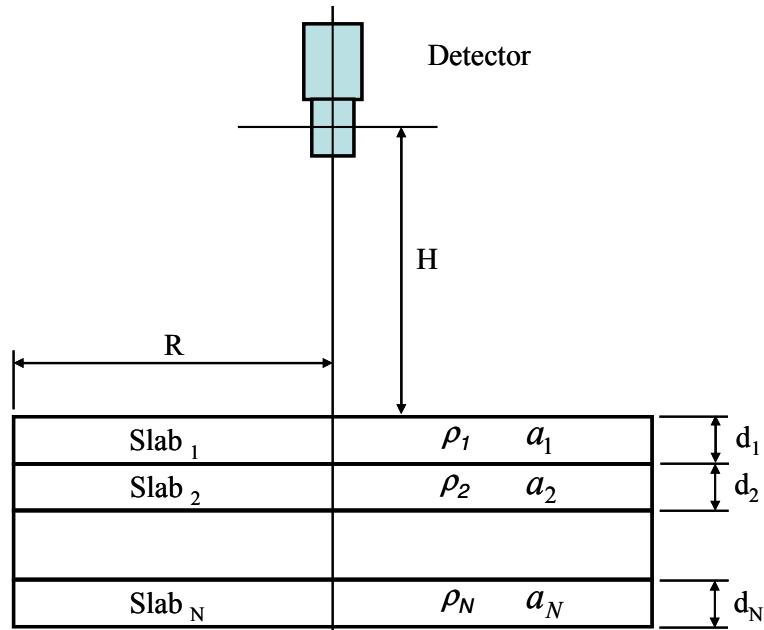


Fig.3. Model used with the code DETEFF for the calculation of calibration factors for in situ measurements, where d_k , a_k , ρ_k denote the thickness, the activity fraction and the density of the slab k , respectively. H denotes the height of the centre of the active detector volume above the ground and R the radius of the cylindrical slabs.

The FEP efficiency calculations must be carried out then for each slab in a given site. According to Fig.3, the slabs can be simulated as cylindrical sources with radius R and thickness d_k . The corresponding calibration factor for the in situ measurement of the ground deposition activity is given by the right-hand side in the expression:

$$\frac{A_S}{C_r} = \left(\gamma \cdot S \cdot \sum_{k=1}^N \epsilon_k \cdot a_k \right)^{-1} \quad (9)$$

with A_S being the ground deposition activity per unit area [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$], C_r the FEP count rate [s^{-1}], γ the photon emission probability (yield) for a particular energy, S the surface of the measured area, i.e. the surface of the front side of the cylindrical slabs [m^2], ϵ_k the FEP efficiency corresponding to the slab k for a particular energy, and a_k the fraction of the total radionuclide inventory contained in the slab k . The summation occurs over the N layers or slabs of the model.

The program DETEFF allows the possibility of considering the photon attenuation caused by any material placed between the source and detector. Therefore, during the simulations for the slab $k = n$ ($1 < n \leq N$) the attenuation caused by the slabs above (from $k = 1$ to $k = n-1$) and the air can be considered by defining a hypothetical filter, with an effective linear attenuation coefficient given by the following expression:

$$\mu_{Filter\ for\ slab\ n} = \frac{\mu_{air}^m \cdot \rho_{air} \cdot d_{air} + \sum_{k=1}^{n-1} \mu_k^m \cdot \rho_k \cdot d_k}{d_{air} + \sum_{k=1}^{n-1} d_k} \quad (10)$$

where μ_k^m , ρ_k and d_k denote the mass attenuation coefficient (without coherent scattering), the density and the thickness corresponding to the k^{th} soil slab, respectively. μ_{air}^m , ρ_{air} and d_{air} denote the same parameters for the layer of air between the bottom of detector and the ground surface. The thickness of so constructed hypothetical filter is: $d_{air} + \sum_{k=1}^{n-1} d_k$.

This uniform slab model (Boson et al. 2006) to be used with the code DETEFF does not consider the effects caused by the ground curvature and the presence of trees in the evaluated sites. The effects of ground curvature and the attenuation of photons caused by trees in the field of view of the detector were studied by Boson (2008^b) for 661.7 keV. The author found that these effects were comparable to the combined uncertainty of in situ measurements on a plane surface. Similar results were obtained by Laedermann et al. (1998) for the attenuation in vegetation, being the reported value about 5% for 660 keV. It must be noted that the proposed uniform slab model is not intended however for fresh fallout, in those cases where the activity deposition on tree crowns could be significant.

According to a previous work (Cornejo Díaz et al., 2010^b), the Mersenne Twister random number generator, incorporated to the code DETEFF, seems to be adequate for the simulations of the “less efficient” measurement setups encountered during in situ gamma-ray spectrometry.

2.6.2.3. Conclusions

DETEFF has a potential application for efficiency calibration of gamma-ray spectrometric systems in “in situ” application. A new methodology was established with this purpose. This is a work in progress and we are working for the validation of this methodology with experimental measurements. A comparison with other Monte Carlo code used with this purpose (MCNP) will be also carried out.

The possibility of rapid efficiency calibrations with DETEFF may be of considerable importance in emergency response, where one might simply make some assumption about the source distribution.

3. Conclusions

Monte Carlo simulation (DETEFF) is a feasible, reliable and traceable method that makes possible to carry out traceable efficiency calibration of gamma-ray spectrometric systems for the determination of radionuclides in environmental samples (laboratory application).

Monte Carlo simulation (DETEFF) has a potential application for efficiency calibration of gamma-ray spectrometric systems in “in situ” application. In this sense, it can contribute significantly to the effective utilization of gamma-ray spectrometric systems in laboratory and “in situ” application. A clear advantage can be the possibility of effecting rapid efficiency calibrations, this may be of considerable importance in emergency response, where one might simply make some assumption about the source distribution

The use of Monte Carlo simulation (DETEFF) represents a real and effective option for developing countries for the effective utilization of gamma-ray spectrometric systems in environmental applications. It is known that in our countries (developing countries) is not always possible to guarantee the constant availability of standard calibration sources to analytical laboratories carrying out gamma-ray spectrometry.

Note:

It is important to realize that the distribution of the Monte Carlo code DETEFF is completely free. Once the authors receive a personal or e-mail request of the code, they prepare a personalized copy of it for the interested persons.

4. References

Korun, M., Likar, A., Vidmar, T., 1997. Monte Carlo calculation of the spatial dependence of the coaxial HpGe detector efficiency for point sources. Nucl. Instrum. Methods A 390, 203.

T. Vidmar et al, 2010. Testing efficiency transfer codes for equivalence. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 355–359

Moens, L., De Donder, J., Xi-lei, L., De Corte, F., De Wispelaere, A., Simonits, A., Hoste, J., 1981. Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 187, 451-472.

Gilmore, G., R., 2008. Practical Gamma-ray spectrometry, 2nd Edition. John Wiley & Sons, New York.

Lépy, M-C., et al., 2001. Intercomparison of efficiency transfer software for gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes, 55, 493-503.

Vidmar, T., et al., 2008. An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes, 66, 764-768.

Sima, O., Arnold, D., 2002. Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. Applied Radiation and Isotopes, 56, 71-75.

Piton, F., Lépy, M-C., Bé, M-M., Plagnard, J., 2000. Efficiency transfer and coincidence summing corrections for gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 791-795.

Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2008. DETEFF: An improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors. *Nuclear Instruments and Methods A*, 586, 204-210.

Jovanović, S., Dlabac, S., Mihaljević, N., Vukotić, P., 1997. ANGLE - a PC-code for semiconductor detector efficiency calculations. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 218, 13-20.

Vidmar, T., 2005. EFFTRAN - A Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods A*, 550, 603-608.

Brun, R., Bruyant, F., Maire, M., McPherson, A. C., Zancarini, P., 1987. GEANT3. CERN Data Handling Division, Geneva.

Briesmeister, J. F., 2000. MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C, CCC-700, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, 2000.

X-5 Monte Carlo Team, 2003. MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, LA-UR-03-1987, April 2003.

Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J, 2003. PENELOPE–2003: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.

Salvat, F., Fernández-Varea, J.M., Sempau, J, 2008. PENELOPE–2008: A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, OECD Nuclear Energy Agency, Issy-les-Moulineaux, France.

Nelson, W. R., Hirayama, H., Rogers, D. W. O., 1985. SLAC Report 265.

PHAM M.K., SANCHEZ-CABEZA J.A., POVINEC P.P. “Report on the worldwide intercomparison IAEA-385, Radionuclides in Irish Sea Sediment”, IAEA/AL/151, IAEA/MEL/76, IAEA, Monaco, (2005) 77p.

PHAM M.K., SANCHEZ-CABEZA J.-A., POVINEC P.P et al. A new Certified Reference Material for radionuclides in Irish Sea sediment). *Appl. Radiat. Isotopes* 66, (2008) 1711-1717.

SHAKHASHIRO, A., FAJGELJ, A., SANSONE, U., Comparison of Different Approaches to Evaluate Proficiency Test Data, Presented and accepted in the publications of the International Workshop on Combining and Reporting Analytical Results. The Role of (metrological) Traceability and (measurement) Uncertainty for Comparing Analytical Results, Rome 6-8 March, 2006.

Jurado Vargas, M., Fernández Timón, A., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2002. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples in gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 57, 893–898.

ICRU, 1994. *Gamma-Ray Spectrometry in the Environment*. ICRU REPORT 53, 17.

IAEA, 2007. Report on the IAEA-CU-2006-04 ALMERA Proficiency Test on the Determination of Gamma Emitting Radionuclides IAEA/AL/170.

Berger, M.J., Hubbell, J. H., Seltzer, S.M., Coursey, J.S., Zucker, D.S., 1999. XCOM: Photon Cross Section Database (version 1.2). National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.

IAEA, 2008. Benchmarking calibration for low-level gamma spectrometric measurements of environmental samples. IAEA-CRP-1471.

ICRU, 1994. International Commission on Radiation Units and Measurements, *Gamma-Ray Spectrometry in the Environment*. ICRU Report 53, Bethesda, MD, USA.

Boson, J., Lidström, K., Nylén, T., Ågren, G., Johansson, L., 2006. In situ gamma-ray spectrometry for environmental monitoring: a semi empirical calibration method. *Radiation Protection Dosimetry* 121, 310-316

Gering, F., Hillmann, U., Jacob, P., Fehrenbacher, G., 1998. In situ gamma-spectrometry several years after deposition of radiocaesium. II. Peak-to-valley method. *Radiation Environmental Biophysics* 37, 283-291.

Likar, A., Vidmar, T., Lipoglavšek, M., Omahen, G., 2004. Monte Carlo calculation of entire in situ gamma-ray spectra. *Journal of Environmental Radioactivity* 72, 163-168.

Boson, J., Plamboeck A H., Ramebäck, H., Ågren, G., Johansson, L., 2009. Evaluation of Monte Carlo-based calibrations of HPGe detectors for in situ gamma-ray spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity* 100, 935-940.

Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M., 2010^a. Improving the trade-off between simulation time and accuracy in efficiency calibrations with the code DETEFF. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 1413–1417.

Jurado Vargas, M., Fernández Timón, A., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2002. Influence of the geometrical characteristics of an HPGe detector on its efficiency. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 253 (3), 439–443.

Jurado Vargas, M., Cornejo Díaz, N., Pérez Sánchez, D., 2003. Efficiency transfer in the calibration of a coaxial p-type HpGe detector using the Monte Carlo method. *Applied Radiation and Isotopes* 58, 707–712.

Vidmar, T., Çelik, N., Cornejo Díaz N., Dlabac, A., Ewa I.O.B, Carrazana González, J., Hult, M., Jovanović, S., Lépy, M-C., Mihaljević, N., Sima, O., Tzika, F., JuradoVargas, M., Vasilopoulou, T., Vidmar G., 2010. Testing efficiency transfer codes for equivalence. *Applied Radiation and Isotopes* 68 355–359.

Boson, J., 2008^b. Improving accuracy of in situ gamma-ray spectrometry. Department of Radiation Sciences, Radiation Physics. Umeå University, Sweden. Medical dissertation No. 1201. ISBN 978-91-7264-621-6.

Laedermann, J. P., Byrde, F., Murith, C., 1998. In-Situ Gamma-ray Spectrometry: the influence of Topography on the Accuracy of Activity Determination. *Journal of Environmental Radioactivity* 38, 1-16.

Cornejo Díaz, N., Vergara Gil, A., Jurado Vargas, M., 2010^b. Assessment of the suitability of different random number generators for Monte Carlo simulations in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 469–473.

J. Carrazana González, N. Cornejo Díaz, M. Jurado Vargas, E. Capote Ferrera, 2010. The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples. *Applied Radiation and Isotopes* 68, 360–363.

B.3 IX Congreso Regional de Seguridad Radiológica y Nuclear IRPA 2013



RESÚMENES APROBADOS - IRPA 2013		
Código	Título	Autor
2884	RESULTADOS DO PROGRAMA DE MONITORAÇÃO OCUPACIONAL DO CENTRO TECNOLÓGICO DA MARINHA EM SÃO PAULO	Clarice de Freitas Acosta Perez
2885	PERFECCIONAMIENTO EN CUBA DE LA ESTRUCTURA NACIONAL PARA RESPUESTA A EMERGENCIAS RADIOLÓGICAS	Yamil López Forteza
2886	EXPERIENCIA CUBANA EN EL LICENCIAMIENTO DURANTE LA IMPORTACIÓN, PUESTA EN SERVICIO Y OPERACIÓN DE UN IRRADIADOR ISOGAMMA LLC	Yamil López Forteza
2887	ESTRATEGIA EN CUBA DEL FORTALECIMIENTO DE LA SEGURIDAD FÍSICA DE LOS MATERIALES RADIATIVOS	Yamil López Forteza
2888	EXPERIENCIAS EN CUBA EN LA RESPUESTA DE LOS SUCESOS RADIOLÓGICOS OCURRIDOS EN EL PERÍODO 2000-2010	Yamil López Forteza
2889	SÍNTESIS Y CARACTERIZACIÓN DOSIMÉTRICA DEL FÓSFORO LiF-MgF ₂ DOPADO CON LUTECIO	PEDRO RAMON GONZALEZ MARTINEZ
2890	DOSIMETRÍA IN VIVO CON CRISTALES TLD-100 EN Ca DE CÉRVIX	Gustavo Manuel Alvarino Bettín
2891	NIVELES DE ACTIVIDAD EN LAS AGUAS DEL BALNEARIO ELGUEA, VILLA CLARA, CUBA	ISIS MARIA GOMEZ FERNANDEZ
2892	SISTEMAS DE VIGILANCIA Y ALERTA TEMPRANA: ALIMENTOS DE IMPORTACIÓN	ISIS MARIA GOMEZ FERNANDEZ
2893	SIMULACIÓN MONTE CARLO: HERRAMIENTA PARA LA CALIBRACION EN DETERMINACIONES ANALITICAS DE RADIONUCLEIDOS	Jorge Carrazana González
2895	DESENVOLVIMENTO DE UM SISTEMA DOSIMÉTRICO PARA O CONTROLE DE QUALIDADE NOS TRATAMENTOS DE CÂNCER DE MAMA	ROBÉRIO DE CARVALHO CHAVES
2896	COMITES DE PROTECCION RADIOLOGICA EN HOSPITALES QUE CARECEN DE SERVICIO ESPECIALIZADO EN RADIOPROTECCION. PRIMEROS PASOS.	ROXANA F. LUNARDON
2897	ESTUDIO TERMOGRÁFICO Y ELECTROMAGNÉTICO DE LA INFLUENCIA DE TELÉFONOS MÓVILES EN HUMANOS	LUIS ENRIQUE LLAMOSA RINCÓN
2898	DISEÑO E IMPLEMENTACIÓN DEL SISTEMA DE GESTIÓN PARA UN LABORATORIO DE METROLOGÍA DE RADIACIONES NO IONIZANTES	LUIS ENRIQUE LLAMOSA RINCÓN
2899	ONE COMPLEX TOOL AND THREE SIMPLE APPROACHES TO THE IMPROVEMENT OF QUALITY ASSURANCE AND SAFETY IN EXTERNAL BEAM RADIOTHERAPY.	SALINAS ARANDA, FLAVIO

S02 - Día 16/04/2013 - 16h00min às 17h00min
Sala E

- **Emergencias radiológicas y nucleares**
- **Instrumentación nuclear y dosimetría**
- **Tecnologías y desarrollos en radioprotección**

41. ANÁLISE DE DESEMPENHO DE SOLUÇÕES NUMÉRICAS APLICADAS À BIOCINÉTICA DE RADIONUCLÍDEOS. Danielle dos Santos Mingatos, Alberto Saburo Todo, Orlando Rodrigues Jr. e Joyce da Silva Bevilacqua.

42. DESMANTELAMIENTO DE UN IRRADIADOR TIPO MPX- γ -25M Y DE UN IRRADIADOR DE NEUTRONES. Dania Soguero., Mercedes Guerra., Enrique Prieto, Luis Desdín.

43. SIMULACIÓN MONTE CARLO: HERRAMIENTA PARA LA CALIBRACIÓN EN DETERMINACIONES ANALÍTICAS DE RADIONUCLEIDOS. Jorge A. Carrazana González, Eduardo A. Capote Ferrera, Isis M. Fernández Gómez, Gloria V. Rodríguez Castro and Niury Martínez Ricardo.

Ubicación del trabajo en la base de datos INIS - IAEA

Monte Carlo simulation: tool for the calibration in analytical determination of radionuclides

Gonzalez, Jorge A. Carrazana; Ferrera, Eduardo A. Capote; Gomez, Isis M. Fernandez; Castro, Gloria V. Rodriguez; Ricardo, Niury Martinez ↗

http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/45/004/45004809.pdf - 84 KB - Text Version

[en] This work shows how is established the traceability of the analytical determinations using this calibration method. Highlights the advantages offered by Monte Carlo simulation for the application of corrections by differences in chemical composition, density and height of the samples analyzed. Likewise, the results obtained by the LVRA in two exercises organized by the International Agency for Atomic Energy (IAEA) are presented. In these exercises (an intercomparison and a proficiency test) all reported analytical results were obtained based on calibrations in efficiency by Monte Carlo simulation using the DETEFF program

Original Title	Simulacion Monte Carlo: herramienta para la calibracion en determinaciones analíticas de radionucleidos
Primary Subject	INSTRUMENTATION RELATED TO NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY (S46)
Source	2013; 8 p; 9. Regional Congress of IRPA on security radiological and nuclear security. 5. Iberoamerican Congress on protection radiological societies. 3. Brazilian Congress on protection radiological; 9. Congresso regional IRPA de seguridade radiologica y nuclear. 5. Congresso iberoamericano de sociedades de proteccion radiologica. 3. Congresso brasileiro de proteccion radiologica; Rio de Janeiro, RJ (Brazil); 14-19 Apr 2013
Record Type	Miscellaneous
Report Number	INIS-BR--13268
Country of publication	Brazil
Descriptors (DEI) ⓘ	CALIBRATION , CHEMICAL ANALYSIS , COMPUTER CODES , COMPUTERIZED SIMULATION , GAMMA SPECTROSCOPY , MONTE CARLO METHOD , RADIOISOTOPES , VALIDATION
Descriptors (DEC) ⓘ	CALCULATION METHODS , ISOTOPES , SIMULATION , SPECTROSCOPY , TESTING
Language	Spanish
Reference Number	45004809
Publication Year	2013
INIS Volume	45
INIS Issue	02

SIMULACIÓN MONTE CARLO: HERRAMIENTA PARA LA CALIBRACIÓN EN DETERMINACIONES ANALÍTICAS DE RADIONUCLEIDOS

**Jorge A. Carrazana González, Eduardo A. Capote Ferrera, Isis M. Fernández Gómez,
Gloria V. Rodríguez Castro and Niury Martínez Ricardo**

Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR)
Calle 20 No. 4113 entre 41 y 47. Playa
C.P. 11300. La Habana, Cuba
cphr@cphr.edu.cu

RESUMEN

La simulación MonteCarlo, a través del uso del programa DETEFF diseñado y elaborado en el Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR) de Cuba es empleada por el Laboratorio de Vigilancia Radiológica Ambiental (LVRA) de esta institución, como método de calibración en eficiencias asociado al ensayo de determinación de radionúclidos en muestras ambientales y alimentos por espectrometría gamma con detectores de Germanio Hiperpuro (HPGe). Durante el proceso de acreditación de este ensayo ante el Órgano Nacional de Acreditación de la República de Cuba (ONARC) por la norma ISO/IEC 17025:2005, se pudo comprobar la validez de este método y el cumplimiento de los requisitos de la norma internacional, así como de las políticas del ONARC. El presente trabajo refiere cómo se establece la trazabilidad de las determinaciones analíticas empleando este método de calibración. Se destacan las ventajas que ofrece la simulación Monte Carlo para la aplicación de correcciones por diferencias en la composición química, densidad y altura de las muestras analizadas. Igualmente, se presentan los resultados obtenidos por el LVRA en dos ejercicios organizados por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA). En estos ejercicios (una intercomparación y un ensayo de aptitud) todos los resultados analíticos reportados se obtuvieron en base a calibraciones en eficiencia por simulación Monte Carlo empleando el programa DETEFF.

1. INTRODUCCIÓN

El laboratorio de Vigilancia Radiológica Ambiental (LVRA) del Centro de Protección e Higiene de las Radiaciones (CPHR) tiene a su cargo la determinación de radionúclidos, por espectrometría gamma de alta resolución con detectores de Germanio Hiperpuro (HPGe), en muestras ambientales y alimentos.

La trazabilidad de las determinaciones analíticas por espectrometría gamma de alta resolución se ha establecido, a lo largo de los años, a través del uso de patrones de calibración y materiales de referencia certificados (MRC) trazables al Sistema Internacional de Unidades (SIU) en la magnitud que corresponde a estas determinaciones: Actividad (Bq).

En el año 2010 el LVRA del CPHR acreditó ante el Órgano Nacional de Acreditación de la República de Cuba (ONARC) la simulación Monte Carlo, a través del uso del programa DETEFF (diseñado y creado en el CPHR) como método de calibración en eficiencias asociado al ensayo de determinación de radionúclidos en muestras ambientales y alimentos por espectrometría gamma con detectores de Germanio Hiperpuro (HPGe). En este sentido, la

demostración de la trazabilidad de las calibraciones obtenidas usando este método constituyó un aspecto de vital importancia.

La simulación Monte Carlo es un método reconocido internacionalmente para la calibración en eficiencias de sistemas de espectrometría gamma basados en el uso de diferentes tipos de detectores, entre ellos los detectores de Germanio Hiperpuro (HPGe). La principal ventaja del uso de la simulación Monte Carlo es que, una vez definidos y ajustados los parámetros del detector y la muestra, resulta posible efectuar calibraciones en eficiencia para matrices con una gran variedad de geometrías de medición, composición química y densidad. Como es conocido, es muy difícil que los laboratorios analíticos de espectrometría gamma cuenten con patrones que se adapten (en cuanto a geometría, composición química y densidad) a la variedad de matrices de las muestras ambientales y alimentos que se miden comúnmente en el laboratorio. En este sentido, con el empleo de la simulación Monte Carlo se elimina la necesidad de contar con un patrón experimental (trazable) con las mismas características de cada tipo de muestra a medir. Este aspecto reviste una gran importancia cuando se tienen que realizar correcciones a las curvas de eficiencias por cambio de geometría (por ejemplo altura) y autoabsorción en las muestras. Trabajos previos [1] demuestran que en muestras de suelo la no correcta aplicación de las correcciones por autoabsorción a la curvas de calibración en eficiencias puede conducir a resultados no satisfactorios en intercomparaciones y ensayos de aptitud cuando se determinan radionúclidos de baja energía.

Para realizar calibraciones en eficiencia de sistemas de espectrometría gamma empleando simulación Monte Carlo, existen códigos de propósito general (como GEANT3, PENELOPE, MCNP y EGS4) y códigos específicos como DETEFF. Es de destacar que con ambos tipos de códigos se obtienen precisiones similares en las calibraciones en eficiencia. Sin embargo, la principal ventaja de DETEFF, sobre los códigos de propósito general, es que es un programa muy amigable (fácil de utilizar) y requiere de tiempos de simulación mucho menores que los empleados por dichos códigos, lo que facilita la obtención de las curvas de calibración en eficiencias en pocos minutos.

El presente trabajo refiere cómo se establece la trazabilidad de las determinaciones analíticas empleando como método de calibración en eficiencias la simulación Monte Carlo (DETEFF) en el LVRA del CPHR. Se destacan las ventajas que ofrece la simulación Monte Carlo para la aplicación de correcciones por diferencias en la composición química, densidad y altura de las muestras analizadas. Igualmente, se presentan los resultados obtenidos por el LVRA en dos ejercicios organizados por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA). En estos ejercicios (una intercomparación y un ensayo de aptitud) todos los resultados analíticos reportados se obtuvieron en base a calibraciones en eficiencia por simulación Monte Carlo empleando el programa DETEFF.

2. MATERIALES Y MÉTODOS

2.1. Programa de Simulación Monte Carlo DETEFF

El código DETEFF [2] de simulación Monte Carlo, diseñado y creado en el CPHR, permite el cálculo de las eficiencias en sistemas de espectrometría gamma con detectores coaxiales. Los detectores pueden ser centellantes (NaI or CsI) o semiconductores (Ge(Li), HpGe or

Si(Li)). DETEFF trabaja con energías gamma en el rango 10 – 2000 keV. Las configuraciones de las muestras pueden ser cilíndricas, rectangulares y Marinelli. Los casos de fuente puntual y disco son incluidos en la geometría cilíndrica. Se considera que las muestras están centradas axialmente respecto al detector, de tal modo que la posición de la muestra queda definida por la distancia muestra-detector.

DETEFF es programa que ha sido ampliamente validado [3] con determinaciones experimentales y a través de su comparación con otros códigos de simulación Monte Carlo reconocidos internacionalmente empleados para el mismo propósito.

2.2. Uso del Método de Transferencia de Eficiencias para las Calibraciones con DETEFF

En el laboratorio analítico de espectrometría gamma, comúnmente se analizan muestras en una amplia variedad de geometrías de medición, composición química y densidad. Idealmente, los patrones de calibración experimentales deberían ajustarse a las matrices de las muestras medidas en todos estos aspectos. Sin embargo, es muy difícil que un laboratorio posea tal variedad de patrones de calibración.

Una de las alternativas empleadas a nivel internacional, para enfrentar el problema de las diferencias entre los patrones de calibración y las muestras medidas rutinariamente, la constituye el método de transferencia de eficiencias [4]. El método de transferencia de eficiencias con DETEFF se aplica cuando se miden patrones de calibración con geometrías de medición, composición química y densidad diferentes a la de la muestra analizada. La eficiencia experimental determinada, en base al patrón de calibración medido, se utiliza para estimar la eficiencia que corresponde a las características propias de la muestra objeto de análisis (transferencia de eficiencias). Una ventaja importante del método de transferencia de eficiencias es que permite trabajar con parámetros no optimizados del detector. Al utilizar los cocientes de las eficiencias, todas las imprecisiones relacionadas con los parámetros del detector se cancelan mutuamente.

La aplicación del método de transferencia de eficiencias con DETEFF se basa en la siguiente ecuación:

$$\varepsilon_{muestra} = \varepsilon_{referencia} \frac{\eta_{muestra}}{\eta_{referencia}} \quad (1)$$

donde las eficiencias de los picos de absorción total son denotadas por ε y las eficiencias totales virtuales por η . El subíndice “referencia” corresponde al patrón de calibración y el subíndice “muestra” a la muestra objeto de análisis. Las eficiencias totales virtuales son calculadas a través de la simulación Monte Carlo con DETEFF. Las eficiencias en el pico de absorción total (para las energías correspondientes del patrón de calibración) tienen que ser determinadas experimentalmente.

2.3. Uso de Factores de Corrección para las Calibraciones con DETEFF

DETEFF puede emplearse también para la calibración en eficiencias a partir solamente de las eficiencias en los picos de absorción total (no considerando las eficiencias virtuales totales). Una vez introducidos en el programa los parámetros del detector (de acuerdo a las especificaciones del fabricante), los mismos pueden ser optimizados usando para ello un

conjunto de fuentes puntuales certificadas (diferentes energías) colocadas a diferentes distancias y posiciones respecto a la superficie del detector.

Cuando no sea posible o factible optimizar más los parámetros del detector (hasta el nivel de precisión deseado) a través del ajuste experimental de los mismos, se pueden determinar factores de corrección (en función de la energía) que consideren y corrijan las diferencias que existan entre las calibraciones experimentales y las calibraciones por simulación Monte Carlo. Para el cálculo de los factores de corrección en función de la energía, se utilizan patrones certificados (trazables al SIU) en geometría de fuente puntual u otra geometría diferente. Los factores de corrección se determinan por medio de la siguiente expresión:

$$F_{\text{corrección}}(E) = \frac{\varepsilon_{\text{experimental}}(E)}{\varepsilon_{\text{simulada}}(E)} \quad (2)$$

donde $\varepsilon_{\text{experimental}}$ es la eficiencia en el pico de absorción total que es calculada experimentalmente usando un patrón de calibración certificado (trazable al SIU), y $\varepsilon_{\text{simulada}}$ es esta misma eficiencia obtenida por simulación Monte Carlo usando el programa DETEFF. Los factores de corrección, calculados de esta forma, son aplicables a cualquier geometría de la muestra objeto de análisis.

Una vez calculados los factores de corrección en función de la energía, la eficiencia estimada en el pico de absorción total (para la geometría de la muestra objeto de análisis) se calcula de acuerdo a la ecuación siguiente:

$$F_{\text{corrección}}(E) \cdot \varepsilon_{\text{simulada}}(E) = \varepsilon_{\text{estimada}}(E) \quad (3)$$

2.4. Trazabilidad de las Calibraciones en Eficiencia con DETEFF

Como se ha podido apreciar, las calibraciones en eficiencia que realiza el LVRA del CPHR, usando el código de simulación Monte Carlo DETEFF, son siempre relativas. Tanto en el método de transferencia de eficiencias, como cuando se calculan directamente factores de corrección en función de la energía, se tienen que determinar eficiencias experimentales usando patrones de calibración certificados trazables al SIU en la magnitud Actividad (Bq). El empleo de estos patrones es lo que establece la cadena ininterrumpida de trazabilidad al SIU de las calibraciones en eficiencia con DETEFF. En este sentido, las eficiencias experimentales calculadas (trazables al SIU) se multiplican por constantes específicas para estimar las eficiencias en la muestra objeto de análisis. Esta operación no rompe la cadena de trazabilidad.

3. RESULTADOS

3.1. Ejercicio de Intercomparación del OIEA de Códigos Monte Carlo de Transferencia de Eficiencias

El objetivo del ejercicio de intercomparación de códigos de transferencia de eficiencias, organizado por el OIEA en el marco del Proyecto de Investigación Coordinado 1471 [5], fue evaluar el desempeño de diferentes códigos Monte Carlo (de propósito general y específico) para efectuar transferencia de eficiencias. En este ejercicio, los códigos de propósito general

que participaron fueron GEANT3, PENELOPE, MCNP y EGS4. Como códigos específicos fueron evaluados los programas DETEFF, ANGLE, GESPECOR, ETNA y EFFTRAN. Aquí se presentan solamente los resultados obtenidos por DETEFF. La evaluación del desempeño del resto de los códigos participantes se puede ver en [6].

La equivalencia de todos los códigos Monte Carlo fue analizada aplicando estos códigos para el cálculo de los factores de transferencia de eficiencia para un conjunto de parámetros bien definidos de la muestra y el detector, y energías típicamente encontradas en las determinaciones de radiactividad ambiental. Se modelaron dos tipos de detectores HPGe (Detector A = tipo N y Detector B = tipo P) y tres tipos de muestras (puntual, filtro y suelo). Las características específicas de los detectores y las muestras aparecen en [6].

La Tabla 1 muestra los valores de referencia contra los cuales fue evaluado el desempeño de cada código de simulación Monte Carlo. La Tabla 2 presenta los resultados de las eficiencias, en el pico de absorción total, obtenidos con DETEFF. En la Tabla 3 se observan las desviaciones relativas (respecto a los valores de referencia) de los resultados obtenidos con DETEFF. Se aprecia que los resultados obtenidos con DETEFF fueron satisfactorios, con diferencias relativas que no exceden el 1,2 %.

Tabla 1. Valores de referencia del ejercicio de intercomparación de transferencia de eficiencias.

Energía (keV)	Puntual A	Puntual B	Suelo A	Suelo B	Filtro A	Filtro B
20		3.6744		0.0866		2.0699
45	1.7188	2.3361	0.2831	0.3129	0.9254	1.3695
60	1.8967	2.2857	0.3535	0.3787	1.0141	1.3373
80	2.0879	2.2789	0.3978	0.4166	1.1102	1.3242
120	2.2535	2.3018	0.4379	0.4473	1.2054	1.317
200	2.2647	2.2811	0.4756	0.4775	1.2556	1.3131
500	2.149	2.1642	0.5189	0.5187	1.2562	1.2904
1000	2.063	2.0818	0.5446	0.5435	1.2472	1.2712
2000	1.9979	2.0089	0.5675	0.5642	1.2368	1.2561

Tabla 2. Valores de los factores de transferencia de eficiencias obtenidos con DETEFF

DETEFF						
Energía (keV)	Puntual A	Puntual B	Suelo A	Suelo B	Filtro A	Filtro B
20		3.6972		0.0875		2.0803
45	1.7134	2.3367	0.2817	0.3123	0.9172	1.3670
60	1.8913	2.2870	0.3505	0.3784	1.0027	1.3380
80	2.0913	2.2821	0.3988	0.4173	1.1087	1.3258
120	2.2625	2.3093	0.4376	0.4469	1.2000	1.3168
200	2.2665	2.2930	0.4725	0.4771	1.2464	1.3096
500	2.1563	2.1810	0.5202	0.5202	1.2486	1.2855
1000	2.0758	2.0940	0.5446	0.5444	1.2429	1.2634
2000	2.0121	2.0264	0.5691	0.5668	1.2313	1.2540

Tabla 3. Desviaciones relativas de los valores obtenidos con DETEFF respecto a los valores de referencia

Desviaciones relativas de DETEFF [%]						
Energía (keV)	Puntual A	Puntual B	Suelo A	Suelo B	Filtro A	Filtro B
20		0.62		0.98		0.50
45	-0.31	0.03	-0.48	-0.19	-0.88	-0.19
60	-0.28	0.06	-0.86	-0.07	-1.13	0.06
80	0.16	0.14	0.25	0.17	-0.14	0.12
120	0.40	0.32	-0.06	-0.10	-0.45	-0.01
200	0.08	0.52	-0.66	-0.09	-0.73	-0.27
500	0.34	0.77	0.25	0.29	-0.60	-0.38
1000	0.62	0.59	0.00	0.16	-0.34	-0.62
2000	0.71	0.87	0.28	0.46	-0.44	-0.17

3.2. Ensayo de Aptitud del OIEA sobre determinación de radionúclidos en sedimento

La Tabla 4 muestra los resultados obtenidos por el LVRA del CPHR en un ensayo de aptitud del OIEA [7] donde se determinaron radionúclidos en una muestra de sedimento. En este ensayo de aptitud, se empleó DETEFF para la calibración en eficiencia y se aplicaron los factores de corrección en función de la energía previamente calculados utilizando fuentes puntuales certificadas (de diferentes energías) trazables al SIU. El reporte completo de los resultados aparece en [7].

Tabla 4. Evaluación de los resultados del LVRA en el ensayo de aptitud del OIEA

Radionúclido	Valor de referencia del OIEA (Bq)	Valor determinado por el LVRA (Bq)	Evaluación de los resultados del LVRA
K-40	607 ± 18	600 ± 34	SATISFACTORIO
Cs-137	25.0 ± 1.7	25.1 ± 1.4	SATISFACTORIO
Bi-214	19.6 ± 2.2	21.6 ± 1.2	SATISFACTORIO
Pb-214	21.6 ± 2.4	21.6 ± 1.2	SATISFACTORIO
Ra-226	21.9 ± 0.9	21.6 ± 1.2	SATISFACTORIO
Ac-228	31.5 ± 2.8	33.1 ± 1.9	SATISFACTORIO
Th-232	33.7 ± 1.1	33.1 ± 1.9	SATISFACTORIO

Como se aprecia el 100 % de las determinaciones analíticas de radionúclidos en la muestra de sedimento, realizadas por el LVRA del CPHR, fueron satisfactorias.

4. CONCLUSIONES

La trazabilidad al SIU de las calibraciones en eficiencia que realiza el LVRA del CPHR empleando simulación Monte Carlo (DETEFF) puede ser establecida cuando se aplica el método de transferencia de eficiencias y los factores de corrección en función de la energía. Las calibraciones en eficiencia, usando estos métodos, son siempre relativas a calibraciones experimentales realizadas con patrones certificados trazables al SIU en la magnitud Actividad (Bq).

Los resultados satisfactorios obtenidos en dos recientes ejercicios del OIEA (una intercomparación y un ensayo de aptitud) muestran que la simulación Monte Carlo (DETEFF) constituye una alternativa factible y fiable para realizar calibraciones en eficiencia cuando existen diferencias en geometría y autoabsorción entre el patrón de calibración y la muestra objeto de análisis.

REFERENCIAS

1. J. Carrazana González, N. Cornejo Díaz, M. Jurado Vargas, E. Capote Ferrera. *The effect of source chemical composition on the self-attenuation corrections for low-energy gamma-rays in soil samples*. Applied Radiation and Isotopes 68, pp. 360–363 (2010).
2. Cornejo Díaz, N., Jurado Vargas, M. *DETEFF: An improved Monte Carlo computer program for evaluating the efficiency in coaxial gamma-ray detectors*. Nuclear Instruments and Methods 586, pp. 204-210 (2008).
3. Néstor A. Cornejo Díaz. *Desarrollo de un código de simulación por Monte Carlo para la calibración de sistemas de detección en espectrometría de radiación gamma*. Tesis Doctoral. Universidad de Extremadura. Facultad de Ciencias. Departamento de Física. Badajoz, España (2009).
4. L. Moens et al. *Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries*. Nuclear Instruments and Methods 187, pp. 451-472 (1981).

5. IAEA Coordinated Research Project no. 1471 “*Benchmarking calibration for low-level gamma spectrometric measurements of environmental samples*”.
6. T. Vidmar et al. *Testing efficiency transfer codes for equivalence*. Applied Radiation and Isotopes 68, pp. 355–359 (2010).
7. IAEA-CRP1471-01 “*Report of the Proficiency Test Determination of Radionuclides in Sediment Sample*”