

UNIVERSIDAD DE SALAMANCA

FACULTAD DE CIENCIAS

DEPARTAMENTO DE FÍSICA ATÓMICA, MOLECULAR Y NUCLEAR



UNIVERSIDAD
DE SALAMANCA

CAMPUS DE EXCELENCIA INTERNACIONAL

TRABAJO DE FIN DE MÁSTER

Datación absoluta mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C del testigo VF2501 de la Laguna Salina Grande (Lagunas de Villafáfila, CyL)

MARTA SALAS ARROYO

TUTORA:

Cát. BEGOÑA QUINTANA ARNÉS

Máster Interuniversitario en Física Nuclear

Curso 2024–2025

15/10/2025

UNIVERSIDAD DE SALAMANCA

FACULTAD DE CIENCIAS

DEPARTAMENTO DE FÍSICA ATÓMICA, MOLECULAR Y NUCLEAR

Datación absoluta mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C del testigo VF2501 de la Laguna Salina Grande (Lagunas de Villafáfila, CyL)



VNIVERSIDAD
D SALAMANCA

CAMPUS DE EXCELENCIA INTERNACIONAL

Trabajo fin de máster: Marta Salas Arroyo

Tutora: Begoña Quintana Arnés

Salamanca, 15 de octubre de 2025

Dña. Marta Salas Arroyo, con DNI ****4164F, declaro haber realizado el Trabajo de Fin de Máster titulado:
Datación absoluta mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C del testigo VF2501 de la Laguna Salina Grande (Lagunas de Villafáfila, CyL).

En Salamanca, a 15 de octubre de 2025

Fdo.: Marta Salas Arroyo

Dra. Begoña Quintana Arnés, profesora del Departamento de Física Fundamental de la Universidad de Salamanca, autoriza la presentación del Trabajo de Fin de Máster titulado *Datación absoluta mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C del testigo VF2501 de la Laguna Salina Grande (Lagunas de Villafáfila, CyL)*, realizado por Dña. Marta Salas Arroyo, con DNI ****4164F.

En Salamanca, a 15 de octubre de 2025

Fdo.: Begoña Quintana Arnés

*“Todo tiene su tiempo, y todo lo que se quiere debajo del cielo tiene su hora:
tiempo de nacer, y tiempo de morir;
tiempo de plantar, y tiempo de arrancar lo plantado.”*

Eclesiastés 3:1–2

Agradecimientos

*Agradezco al equipo del **Laboratorio LRI-D**, donde he tenido la oportunidad de aprender y crecer rodeada de personas generosas, exigentes y brillantes.*

*A **Begoña**, mi tutora, por su guía constante, por confiar en mí desde el principio y por enseñarme que la física experimental tiene su propio ritmo, hecho de paciencia, método y curiosidad.*

*A **Rubén**, por su ayuda, su tiempo y su disposición inagotable, incluso cuando los resultados no eran los esperados. A **Daniel** y al resto de compañeros del laboratorio.*

*A **Francis**, por acompañarme desde los años de carrera hasta hoy. Gracias por tu apoyo en los momentos más difíciles y por caminar siempre a mi lado. Espero que este sea solo el primero de muchos logros que sigamos celebrando juntos.*

A mi familia, y en especial a mi madre, por recordarme siempre que soy capaz.

Datación absoluta mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C del testigo VF2501 de la Laguna Salina Grande (Lagunas de Villafáfila, CyL)

MARTA SALAS ARROYO

Salamanca, 15 de octubre de 2025

Palabras clave

Datación radiométrica; Espectrometría gamma de muy bajo fondo; espectrometría de masas con acelerador; Detector HPGe; Datación por ^{210}Pb ; Datación por ^{137}Cs ; Datación por ^{14}C ; Tasa de sedimentación.

Resumen

Los estudios sobre la evolución ambiental reciente requieren métodos de **datación absoluta** capaces de resolver los procesos sedimentarios ocurridos a escala de décadas o siglos. Entre las técnicas más empleadas, la **espectrometría gamma de muy bajo fondo** y la **espectrometría de masas con acelerador (AMS)** constituyen herramientas de alta sensibilidad para la determinación de la actividad de radionúclidos naturales y artificiales. En este trabajo se combinan ambas metodologías con el objetivo de caracterizar y datar un testigo sedimentario procedente de la **Laguna Salina Grande** (Villafáfila, Castilla y León, España), un sistema lagunar estacional de gran interés paleoclimático.

El muestreo fue realizado por la autora junto con el equipo del laboratorio LRI-D, obteniéndose un testigo de 20 cm de longitud que se subdividió en secciones de 1 cm. Cada una de ellas fue analizada mediante las técnicas radiométricas descritas. El análisis por espectrometría gamma se llevó a cabo con **detectores HPGe** preparados para medidas de muy bajo fondo (sistema Mazinger) con el objetivo de cuantificar la actividad de los radionúclidos ^{210}Pb y ^{137}Cs , mientras que la datación por ^{14}C se efectuó mediante el sistema **AMS MICADAS**. Además, se analizó una muestra de aguas de la misma laguna, con el fin de complementar la interpretación radiométrica y establecer un marco cronológico coherente.

El testigo se caracterizó por una **baja tasa de sedimentación**, que dificulta la obtención de un modelo de edad continuo, aunque los resultados permiten establecer una primera estimación cronológica fiable. Esta información constituye una base sólida para el desarrollo de modelos más precisos en futuros estudios.

La integración de la **espectrometría gamma** y la **AMS** demuestra el potencial de ambas técnicas para la reconstrucción temporal de ambientes sedimentarios con tasas de acumulación muy bajas y ofrece una metodología aplicable a otros sistemas lacustres con características similares.

Absolute dating using ^{210}Pb , ^{137}Cs and ^{14}C of core VF2501 from Laguna Salina Grande (Villafáfila Lagoons, Castilla y León, Spain)

MARTA SALAS ARROYO

Salamanca, 15 de octubre de 2025

Keywords

Radiometric dating; Low-background gamma spectrometry; Accelerator Mass Spectrometry (AMS); HPGe detector; ^{210}Pb dating; ^{137}Cs dating; ^{14}C dating; Sedimentation rate.

Abstract

Studies on recent environmental evolution require methods of **absolute dating** capable of resolving sedimentary processes occurring on a decadal or centennial scale. Among the most commonly used techniques, **ultra-low background gamma spectrometry** and **accelerator mass spectrometry (AMS)** are highly sensitive tools for determining the activity of natural and artificial radionuclides. In this work, both methodologies are combined with the aim of characterizing and dating a sediment core from the **Laguna Salina Grande** (Villafáfila, Castilla y León, Spain), a seasonal lagoon system of great paleoclimatic interest.

Sampling was carried out by the author together with the LRI-D laboratory team, obtaining a 20 cm long core that was subdivided into 1 cm sections. Each section was analyzed using the radiometric techniques described. Gamma spectrometry analysis was performed with **HPGe detectors** prepared for ultra-low background measurements (Mazinger system) to quantify the activity of the radionuclides ^{210}Pb and ^{137}Cs , while ^{14}C dating was conducted using the **AMS MICADAS** system. In addition, a water sample from the same lagoon was analyzed to complement the radiometric interpretation and establish a coherent chronological framework.

The core was characterized by a **low sedimentation rate**, which makes it difficult to obtain a continuous age model, although the results allow for a first reliable chronological estimation. This information provides a solid basis for the development of more precise models in future studies.

The integration of **gamma spectrometry** and **AMS** demonstrates the potential of both techniques for the temporal reconstruction of sedimentary environments with very low accumulation rates and offers a methodology applicable to other lacustrine systems with similar characteristics.

Índice general

1. Introducción	1
2. Fundamentos de la datación radiométrica	3
2.1. Radionucleidos presentes en la naturaleza	5
2.2. Datación por ^{210}Pb	12
2.3. Datación por ^{137}Cs	15
2.4. Datación por ^{14}C	16
3. Técnicas de medida	22
3.1. Fundamentos de la espectrometría gamma de muy bajo fondo con detector HPGe	22
3.2. Análisis de espectros gamma	30
3.3. Fundamentos de la espectrometría de masas con acelerador (AMS)	38
4. Equipos e instalaciones	43
4.1. Sistema Mazinger	43
4.2. Sistema BEGe	45
4.3. Caracterización del fondo de Mazinger y BEGe	46
4.4. Instalación CARBONUS: sistema MICADAS	47
4.5. Laboratorio limpio de preparación de muestras	48
5. Muestreo en Laguna Salina grande y preparación de muestras	51
5.1. Descripción de las Lagunas de Villafáfila y punto de muestreo	51
5.2. Historia de la Laguna Salina Grande	53
5.3. Muestreo de sedimento	53
5.4. Muestreo de agua	54
5.5. Preparación de muestras sedimentarias para espectrometría gamma	55
5.6. Preparación de muestras de agua para espectrometría gamma	57
5.7. Preparación de muestras para AMS	58
6. Marcha experimental y resultados	61
6.1. Medida del testigo VF2501 por espectrometría gamma en Mazinger	61
6.2. Medida de muestra de aguas por espectrometría gamma en BEGe	69
6.3. Resultados de la medida del testigo VF2501 mediante espectrometría γ	71
6.4. Resultados de la medida del testigo VF2501 mediante AMS	74
6.5. Resultados del análisis de muestra de aguas mediante espectrometría gamma e BEGe	75
6.6. Resultados de la datación absoluta del testigo VF2501	75
7. Conclusiones	80
8. Conclusions	81
A. Tablas e imágenes adicionales al capítulo	VI
A.1. CAPÍTULO 5: PREPARACIÓN DE MUESTRAS	VI
A.2. CAPÍTULO 6: MARCHA EXPERIMENTAL Y RESULTADOS	XVII
B. Esquemas de desintegración de interés	XLII

Capítulo 1

Introducción

La radiactividad es un fenómeno natural por el cual un núcleo atómico emite uno o varios tipos de partículas, transmutándose o desexcitándose a un estado de menor energía [1]. Se denomina radionúclido, radionucleido o radioisótopo a la forma inestable de un elemento que libera radiación. Fue descubierta casualmente en 1896 por Becquerel, al observar que placas fotográficas bien envueltas se ennegrecían al colocarlas cerca de ciertos minerales. Marie y Pierre Curie participaron en la investigación de este fenómeno, concluyendo que la radiación de los elementos Uranio y Torio era un fenómeno intrínseco a los mismos y no estaba relacionado con su estado físico o químico [2]. Por esta aportación a la ciencia, los tres científicos compartieron el Premio Nobel de Física en 1903 [3]. En esa misma época (1898), Rutherford pudo diferenciar las desintegraciones alfa y beta, y muy poco después, en 1900, P. Villard descubrió la radiación gamma. La radiactividad descubierta en ese momento es la que hoy se conoce como radiactividad natural y tiene su origen en diversas fuentes. En primer lugar, se debe a la presencia de radionúclidos presentes en la corteza terrestre desde su formación, hace 4600 millones de años. Estos radionúclidos primigenios, que poseen semividas del orden de la edad de la Tierra, continúan existiendo en la actualidad. Además, decaen en otros núcleos que pueden ser radiactivos y que a la misma vez se consideran fuentes naturales de radiactividad. En este trabajo se estudiará la actividad del ^{210}Pb un radionúclido natural, descendiente de la cadena del primigenio ^{238}U . Otra fuente de radiactividad natural reside en las reacciones de nuestra atmósfera con la radiación cósmica. Los rayos cósmicos, generados en las reacciones nucleares de las estrellas, viajan por el espacio a velocidades relativistas y entran en contacto con las moléculas presentes en el aire, formando nuevos nucleidos conocidos como radionucleidos cosmogénicos [42][4]. Entre ellos se encuentra el ^{14}C , de gran relevancia en este trabajo.

En 1911, Marie Curie recibió su segundo Premio Nobel, esta vez en Química, por el descubrimiento del polonio y el radio, así como por su aislamiento [5]. Ese mismo año, Rutherford propuso la existencia del núcleo atómico como una parte central del átomo mucho más pequeña. Posteriormente, en 1934, Irene y Frédéric Joliot-Curie lograron la primera producción artificial de isótopos radiactivos al bombardear láminas de boro con radiación natural de tipo alfa, produciendo $^{13}\text{N}^*$, que a su vez decae por desintegración beta [1]. Por este logro, recibieron el Premio Nobel de Química en 1935 [7], descubriéndose así que la radiactividad también puede provenir de fuentes artificiales. A lo largo de más de un siglo, los avances en el conocimiento de la radiactividad han permitido ampliar notablemente su campo de aplicación. En la actualidad, constituye una herramienta esencial en medicina, industria y energía, además de desempeñar un papel central en las ciencias de la Tierra y del medio ambiente. En este trabajo, su potencial se aplica a la datación de sedimentos, aportando claves fundamentales para el estudio de procesos climáticos y antropogénicos recientes.

Estos estudios exigen herramientas de datación capaces de establecer con precisión la cronología de los sedimentos. En este contexto, los radionucleidos de origen natural y artificial se convierten en marcadores temporales de gran valor para reconstruir la evolución de los sistemas lacustres y evaluar tanto las variaciones climáticas como la influencia humana en ellos. Entre las técnicas más empleadas, la datación mediante ^{210}Pb y ^{137}Cs ha demostrado ser especialmente útil en el análisis de sedimentos correspondientes al último siglo, proporcionando modelos de edad de alta resolución temporal. Estas metodologías se complementan con la datación por ^{14}C , que, aunque aplicada a horizontes de mayor antigüedad, permite validar los resultados obtenidos con los radioisótopos de vida

más corta.

La caracterización radiométrica de estos isótopos requiere técnicas de alta sensibilidad y resolución. La espectrometría gamma con detectores de germanio hiperpuro (HPGe) constituye una metodología no destructiva ampliamente utilizada, que permite cuantificar directamente la actividad de ^{210}Pb y ^{137}Cs en sedimentos y aguas. En el presente trabajo, se emplean los sistemas Mazinger y BEGe, detectores de HPGe diseñados para el análisis de muestras ambientales con bajos niveles de actividad. En paralelo, la espectrometría de masas con acelerador (AMS) se utiliza para la datación mediante ^{14}C , aportando una precisión superior en la determinación de edades. La técnica AMS, implementada en el sistema MICADAS, permite analizar muestras de muy baja masa, lo que la convierte en una herramienta esencial tanto para extender el rango temporal de estudio como para validar los modelos de edad basados en ^{210}Pb y ^{137}Cs . La combinación de ambas metodologías proporciona un marco sólido para la reconstrucción cronológica de los sistemas sedimentarios.

El área de estudio corresponde a la Laguna Salina Grande, situada en el complejo lagunar de Villafáfila (Castilla y León, España). Este enclave, de gran valor ecológico e incluido en la Red Natura 2000, constituye un sistema altamente sensible a las variaciones hidrológicas y climáticas, así como a las presiones derivadas de la actividad humana. Sus sedimentos representan un archivo idóneo para analizar los cambios ambientales acontecidos en los últimos siglos, tanto a escala regional como local, y evaluar la influencia de factores climáticos y antropogénicos en su dinámica.

En relación con la estructura de este trabajo, se comienza con la exposición de los fundamentos de la datación radiométrica y la descripción de los radionucleidos empleados como trazadores temporales. A continuación, se presentan las técnicas analíticas utilizadas, centradas en la espectrometría gamma de muy bajo fondo con detectores HPGe y en la espectrometría de masas con acelerador (AMS) para el análisis de ^{14}C . Posteriormente, se detallan las instalaciones y equipos utilizados, los detectores Mazinger y BEGe, y el sistema AMS MICADAS. Seguidamente, se describe el proceso de muestreo, realizado por la autora junto con el equipo del laboratorio LRI-D, y la preparación de las muestras, así como la marcha experimental y los resultados obtenidos en el análisis del testigo sedimentario y de las aguas de la Laguna Salina Grande. Finalmente, se realiza una comparación entre los distintos métodos de datación aplicados, integrando los perfiles de ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C , lo que permite validar el modelo de edad y discutir la coherencia y precisión de las técnicas radiométricas utilizadas.

Capítulo 2

Fundamentos de la datación radiométrica

La idea original del uso del decaimiento radiactivo como herramienta de datación fue propuesta por Rutherford en 1905 [31]. Dicho autor planteaba que midiendo el contenido de un radionúclido determinado y sus derivados en un material o sustrato geológico específico, se podría estimar la edad de este. Boltwood, quien mantenía contacto con Rutherford, tomó esta idea y la llevó a la práctica, publicando en 1907 el primer trabajo de datación geológica basado en métodos radiométricos. En dicho trabajo se dataron minerales midiendo su contenido en ^{238}U y su hijo estable, el ^{206}Pb . Este método, aunque contaba con la limitación de que no se conocía con exactitud la semivida del ^{238}U , sentó las bases de la datación radiométrica [31]. En la actualidad se conocen multitud de métodos, varios de los cuales se describen en este trabajo. La datación es posible debido a que la desintegración radiactiva depende únicamente del tiempo y no se ve afectada por factores externos como la presión, la temperatura o la atmósfera química [30]. La magnitud utilizada en física para caracterizar la velocidad de desintegración de un radionúclido se denomina actividad y sigue la siguiente ley:

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N, \quad (2.1)$$

donde λ es la conocida constante radiactiva o constante de desintegración que representa la probabilidad de desintegración de un átomo por unidad de tiempo, y N el número de átomos existentes. Integrando la ecuación 2.1 se obtiene la ley de desintegración radiactiva, y para la actividad se tiene la misma tendencia:

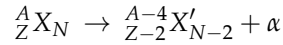
$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}; \quad A(t) = A_0 e^{-\lambda t}. \quad (2.2)$$

En el presente capítulo se describen los tipos de radiación de origen nuclear y los métodos que se emplearán en este trabajo para datar un testigo lacustre mediante ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C extraído en la Laguna Salina Grande, situada en Villafáfila, Castilla y León, España.

Es fundamental, para enmarcar este trabajo, presentar y comprender no sólo la radiación gamma, que constituye la herramienta experimental principal de detección, sino también el resto de radiaciones involucradas en los procesos de desintegración nuclear. La interpretación adecuada del comportamiento de las cadenas radiactivas naturales y de la radiación ambiental requiere tener en cuenta el conjunto de modos de decaimiento posibles. Las radiaciones ionizantes abarcan un amplio rango de energías, desde valores del orden de decenas de eV hasta varios MeV. En el límite inferior, alrededor de ~ 10 eV, se sitúa la energía mínima necesaria para producir ionización en materiales ordinarios. En el extremo superior, en torno a 20 MeV, se encuentra la frontera práctica de la física nuclear, que marca el rango de energías características de las transiciones nucleares [8].

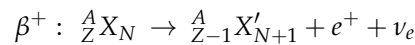
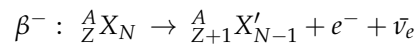
Es importante señalar que un mismo radionúclido puede desintegrarse a través de varios modos de decaimiento, siendo cada uno de ellos posible con una probabilidad bien definida. Estas probabilidades constituyen las denominadas fracciones de rama o *branching ratios*, magnitudes fundamentales que determinan la población de cada canal de desintegración y, en consecuencia, la intensidad de las radiaciones emitidas.

□ **Desintegración alfa:** las partículas alfa constituyen la radiación menos penetrante de origen natural. En 1903, Rutherford midió su relación carga-masa y, posteriormente, determinó que se trataba de núcleos de helio compuestos por dos neutrones y dos protones ($A=4$, $Z=2$). La desintegración alfa (α) consiste en la emisión espontánea de núcleos de helio por parte de un núcleo pesado, lo que da lugar a un núcleo hijo que puede encontrarse en estado fundamental o excitado, y una partícula alfa. Al tratarse de una desintegración a dos cuerpos, la energía cinética del núcleo hijo y la partícula alfa quedan totalmente determinadas.

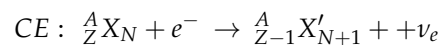


La emisión de una partícula alfa es un fenómeno causado por la repulsión coulombiana dentro del núcleo atómico. Aunque en principio podría ser energéticamente posible la emisión de otros núcleos ligeros, en la gran mayoría de los casos se observa exclusivamente la emisión de núcleos de helio. La explicación de este fenómeno fue descubierta posteriormente, en 1928, de forma simultánea e independiente por Gamow [11] y por Gurney y Condon [10]. La razón reside en la propia naturaleza del proceso: al tratarse de una emisión que ocurre por efecto túnel, la probabilidad de que se produzca disminuye de forma exponencial a medida que aumenta la masa del núcleo emitido [11][10].

□ **Desintegración beta:** la emisión espontánea de electrones, o en ese momento partículas β , fue uno de los primeros fenómenos relacionados con la radiactividad que se observaron, sin embargo, el proceso de emisión de positrones (β^+) no se identificó hasta 1934 cuando la pareja Joliot-Curie observó la emisión de estas partículas dos años después del descubrimiento inicial [9]. La desintegración beta consiste en la conversión de un protón en neutrón, con la emisión de un positrón y un neutrino electrónico (β^+); o el proceso inverso, la conversión de un neutrón en protón, con la emisión de un electrón y un antineutrino electrónico (β^-). En este tipo de desintegración, el número másico A del núcleo padre se mantiene constante, mientras que el número atómico Z y el número de neutrones N pueden aumentar o disminuir en una unidad. De esta forma, los núcleos ligeros pueden corregir un exceso de protones o neutrones, ocurriendo siempre entre nucleones ligados [9].



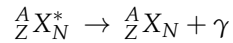
Los leptones y antileptones eyectados se crean al producirse la reacción por efecto de la interacción débil. Al ser un decaimiento a tres cuerpos se tiene una distribución continua para las energías cinéticas de los productos. La explicación de este espectro continuo de energías la dio la teoría de la desintegración beta de Fermi desarrollada en 1934 en la que participaba el neutrino, partícula antes postulada por Pauli en 1930 y que no fue detectada hasta 1956 [1]. Es importante destacar que la desintegración β^- siempre puede ocurrir energéticamente, mientras que la β^+ requiere superar una barrera de potencial de dos veces la masa del electrón ($V = 2m_e c^2$). No obstante, existe una variante de este proceso que compite con la desintegración β^+ denominada captura electrónica. Sin embargo, existe una variante de este proceso que compite con la desintegración β^- , denominada captura electrónica. En este proceso, se absorbe un electrón atómico, lo que permite la conversión de protón a neutrón sin barrera de potencial, salvo por la energía de enlace del electrón, la cual es pequeña en comparación con las energías nucleares. En este caso, el núcleo hijo emitirá un rayo X debido a la reorganización de las capas electrónicas.



Todos estos modos de desintegración pueden terminar en el estado fundamental del núcleo hijo, o en un estado excitado.

□ **Emisión gamma:** descubierta por el francés P. Villard en 1900, la radiación gamma es un proceso de desexcitación nuclear de origen electromagnético. Consiste en la emisión de un fotón gamma por parte de un núcleo

excitado, que decae a su estado fundamental o a otro estado excitado de menor energía [1].

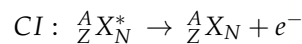


De nuevo, se trata de un proceso a dos cuerpos, lo que permite determinar la energía de los productos de forma exacta. Al emitirse el fotón gamma, el núcleo resultante no permanecerá en reposo, sino que experimentará un momento de retroceso y, en consecuencia, cierta energía cinética, la cual puede considerarse no relativista. Bajo estas premisas, mediante la imposición de la conservación de la energía y el momento, se obtiene:

$$E_\gamma \approx \Delta E - \frac{(\Delta E)^2}{2Mc^2}, \quad (2.3)$$

siendo $\Delta E = E_i - E_f$ la diferencia de energía entre los estados nucleares inicial y final, y M la masa del núcleo en reposo, es claro que se pierde cierta energía debido al retroceso del núcleo resultante. No obstante, dado que $\Delta E \ll Mc^2$, comúnmente se asume que la energía del fotón γ es la diferencia de energías entre los isómeros, $E_\gamma = \Delta E$. Esta aproximación supone una desviación del orden de 10^{-5} , imperceptible a la hora de realizar mediciones. La energía de retroceso solo adquiere relevancia en procesos de absorción nuclear resonante, como los que tienen lugar en el efecto Mössbauer [9]. Dado el carácter electromagnético del proceso y el espín del fotón (un bosón vectorial), existen restricciones estrictas relacionadas con la conservación de la paridad y el momento angular en estas desintegraciones. Dichas restricciones imponen reglas de selección que limitan las transiciones nucleares permitidas, lo que puede forzar al núcleo a desexcitarse mediante un proceso alternativo: la conversión interna.

En la conversión interna, el núcleo transfiere su energía de desexcitación directamente a un electrón atómico preexistente, provocando su eyección. Si bien este mecanismo también es de naturaleza electromagnética, permite llevar a cabo la transición ($0 \rightarrow 0$) prohibida para la desintegración gamma, ya que no implica la emisión de partículas externas al sistema nuclear [9].



□ **Fisión nuclear:** la fisión nuclear espontánea es el proceso mediante el cual un núcleo atómico pesado se fragmenta en dos fragmentos más ligeros, lo que conlleva la liberación de energía y la emisión de uno o varios neutrones. Este fenómeno se observa con frecuencia en núcleos con una alta concentración de neutrones, como los elementos transuránidos. La causa de la fisión reside en la deformación que experimentan los núcleos muy pesados debido a la repulsión coulombiana. Se prevé que este proceso tenga lugar en núcleos con un número másico superior a 300. La fisión nuclear puede conseguirse de forma artificial mediante la interacción de un núcleo pesado con neutrones, lo que se conoce como fisión nuclear inducida. Este fenómeno fue descubierto en 1938 por los investigadores Otto Hahn y Fritz Strassmann, a partir del trabajo previo realizado por Hahn junto a Lise Meitner. Cabe destacar que Meitner no fue reconocida con el Premio Nobel de Química, el cual fue otorgado únicamente a Otto Hahn en 1944 por este descubrimiento. Curiosamente no fue hasta 1942 que Maurice Scharff-Goldhaber observó el proceso de fisión nuclear espontánea. Este resultado, aunque ya había sido predicho teóricamente, no se había logrado demostrar experimentalmente. El trabajo de Scharff-Goldhaber fue clasificado como secreto de guerra y no se publicó hasta el final de la Segunda Guerra Mundial en 1946.

2.1. Radionucleidos presentes en la naturaleza

A continuación se exponen las fuentes de radiación presentes en la naturaleza, sean de origen primigenio, cosmogénico o antropogénico. Haciendo énfasis en las formas de decaimiento de los radionúclidos de interés para el trabajo de datación (${}^{210}\text{Pb}$, ${}^{137}\text{Cs}$ y ${}^{14}\text{C}$).

2.1.1. Cadenas naturales: el origen del ${}^{210}\text{Pb}$

En la naturaleza existen diversas fuentes de radiación. Una de las más relevantes está constituida por los radionucleidos primigenios, aquellos que se formaron en la corteza terrestre en el momento de su consolidación y que,

gracias a sus larguísimas semividas (del orden de la edad de la Tierra) todavía persisten hoy. Estos radionucleidos son los padres de las cuatro cadenas radiactivas naturales. La causa de que sólo existan cuatro cadenas es estrictamente aritmética: los decaimientos α reducen el número másico A en 4 unidades, de modo que un radionucleido y todos sus descendientes permanecen en la misma clase de congruencia módulo 4. Así, sólo hay cuatro familias posibles: $4n$, $4n+1$, $4n+2$ y $4n+3$. Cada una está encabezada por un núcleo padre de semivida geológica, no conectados entre sí. Los únicos núclidos primigenios supervivientes son ^{238}U (serie $4n+2$), ^{235}U (serie $4n+3$), ^{232}Th (serie $4n$) y, en tiempos primitivos, el ^{237}Np (serie $4n+1$). Este último, aunque extinguido en la naturaleza, mantiene su cadena de desintegración presente debido a la producción antropogénica asociada a la actividad nuclear. Además de estas series, la naturaleza alberga otros radionucleidos de gran interés. Entre ellos destaca el ^{40}K , cuya abundancia isotópica es muy baja (0.0117% del potasio natural), pero cuya relevancia es extraordinaria [1]. Su desintegración contribuye de forma significativa a la radiactividad natural de la Tierra, desempeñando un papel importante en la geoquímica. Asimismo, el ^{40}K es responsable de una parte no despreciable de la dosis de radiación que recibe el ser humano, ya que el potasio forma parte esencial de los tejidos biológicos y se encuentra distribuido homogéneamente en el organismo.

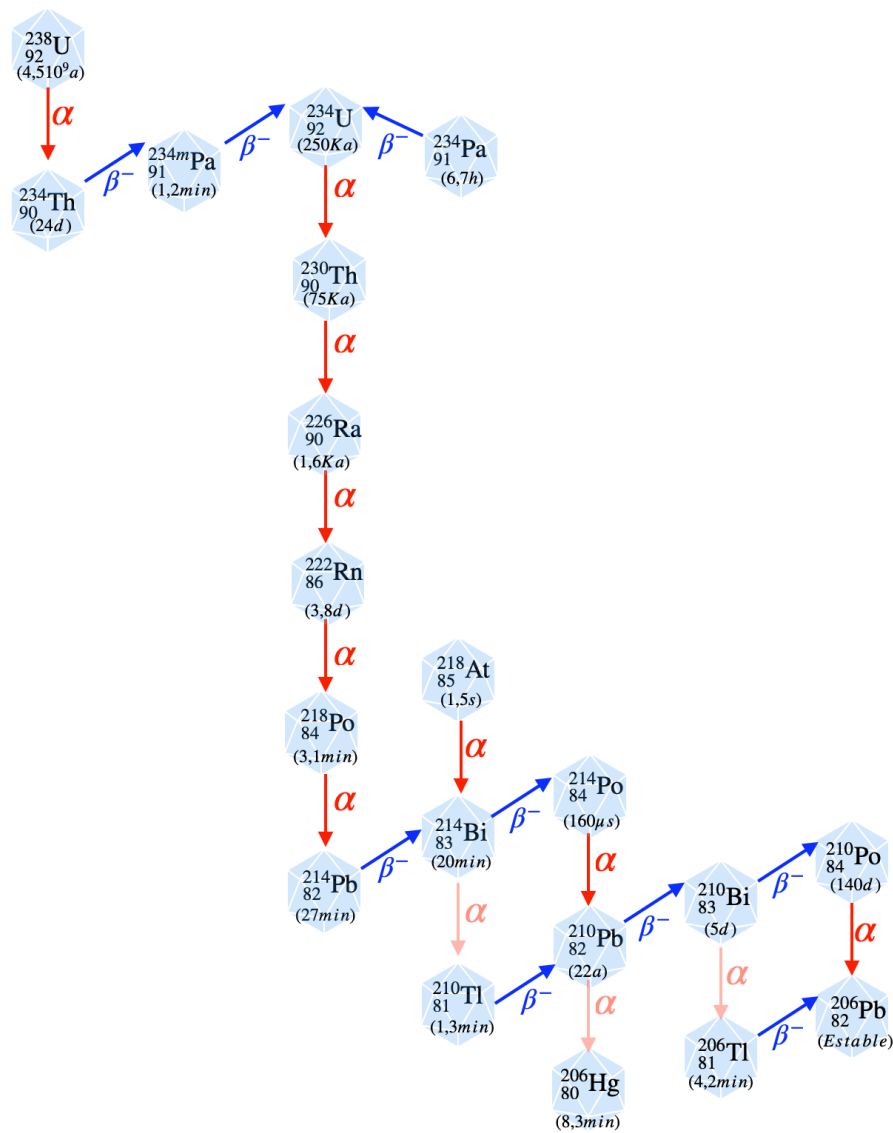
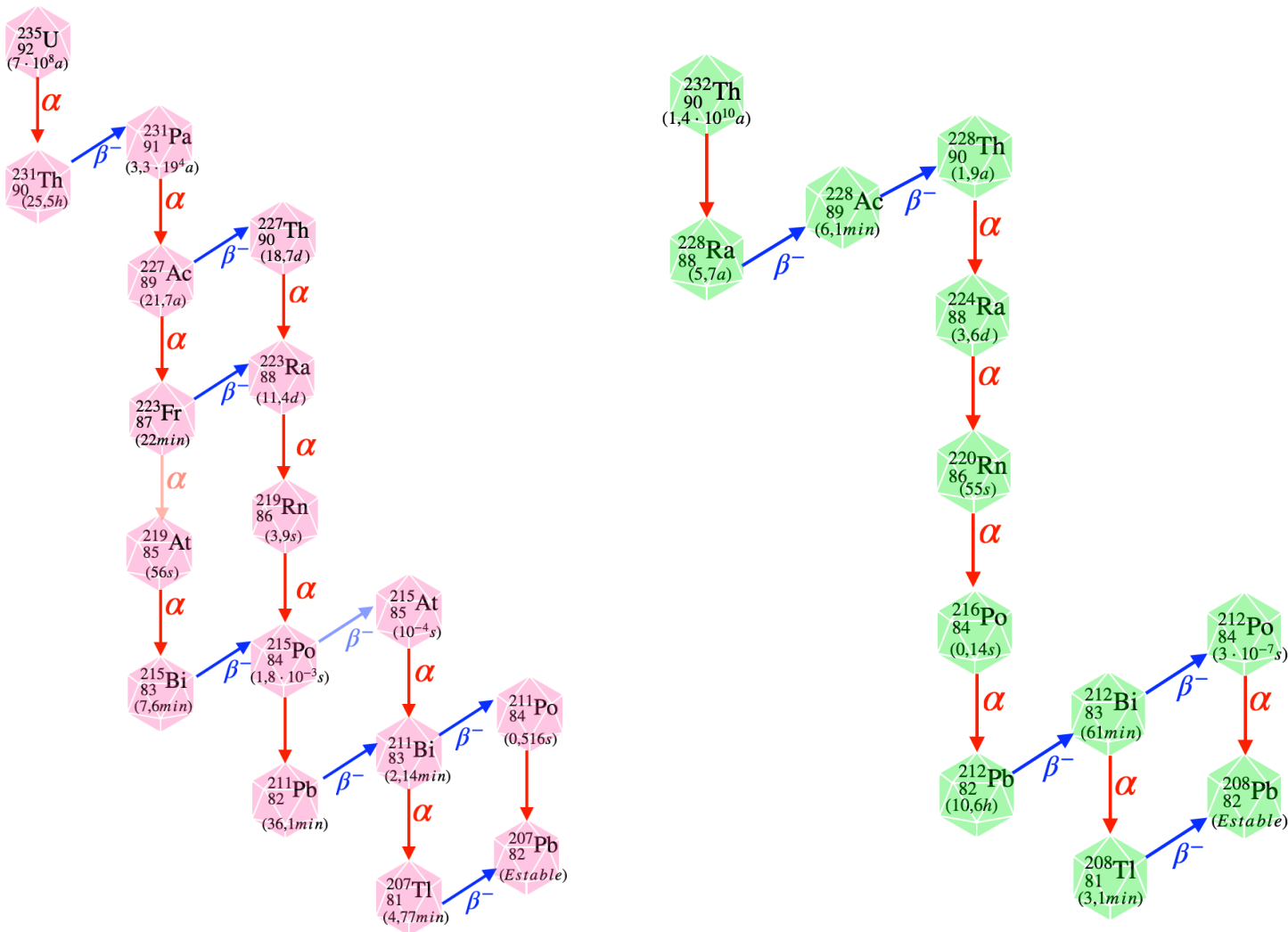


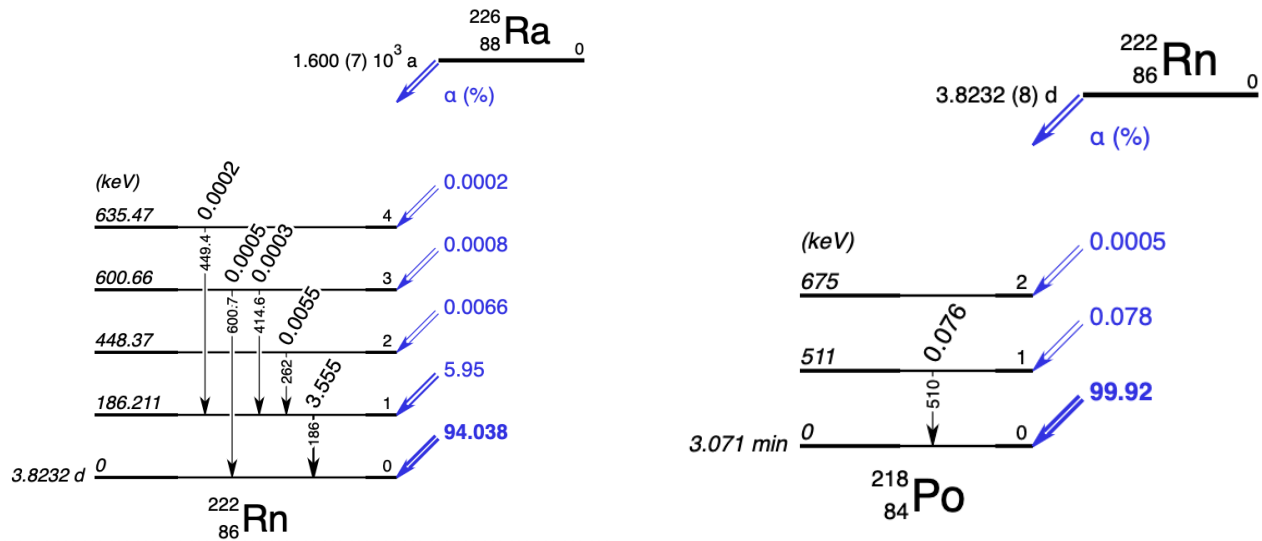
Figura 2.1: Esquema de desintegración de la serie $4n+2$


 Figura 2.2: Esquemas de desintegración series $4n+3$ y $4n$.

Las cadenas radiactivas se desarrollan como secuencias de decaimientos α y β^- . La emisión α ocurre en núcleos muy pesados ($Z > 82$), como los actínidos. En este contexto, una partícula α puede preformarse en el interior del núcleo, dado que se trata de un sistema muy estable y fuertemente ligado. Su escape se produce gracias al tunelamiento cuántico a través de la barrera de Coulomb, como ya se discute anteriormente. Tras cada emisión α , el núcleo resultante suele quedar con un cociente N/Z excesivo: de modo que la desintegración β^- actúa corrigiendo este desequilibrio al convertir un neutrón en protón. De esta forma, la serie progresa hasta alcanzar un isótopo estable de plomo o, en algunos casos, de bismuto. Se muestran las cadenas naturales en las figuras 2.1 y 2.1.1.

El estudio de estas cadenas, y en particular el de la del ^{238}U , constituye la base de gran parte de la física nuclear ambiental y de la cronología de sedimentos recientes. Un concepto clave en la explotación metrológica de las cadenas es el equilibrio secular. Si un radionucleido padre P tiene una semivida mucho más larga que la de su hijo H , tras un periodo transitorio de unas pocas semividas del H se cumple que $A_H \simeq A_P$. Esto es un efecto matemático que se produce debido a que, si se toma la ecuación general de un padre que se desintegra en un hijo que también es radiactivo:

$$N_H(t) = \frac{\lambda_P N_P(0)}{\lambda_H - \lambda_P} \left(e^{-\lambda_P t} - e^{-\lambda_H t} \right), \quad (2.4)$$


 Figura 2.3: Esquemas de desintegración para el ^{226}Ra y su hijo ^{222}Rn

si se cumple que $\lambda_H \gg \lambda_P$ la ecuación puede escribirse simplemente como:

$$N_H(t) = \frac{\lambda_P N_P(0)}{\lambda_H} e^{-\lambda_P t} \rightarrow A_H(t) = \lambda_H N_H(t) \simeq \lambda_P N_P(0) e^{-\lambda_P t} = A_P(t). \quad (2.5)$$

Por lo tanto, si bien matemáticamente las actividades del padre y del hijo son aproximadamente iguales, en la práctica pueden considerarse equivalentes. Cabe destacar que cada uno decae con su propia constante de desintegración y, en caso de que se rompa el equilibrio por factores externos, esto se observaría.

El ^{210}Pb en la naturaleza

El ^{210}Pb constituye un punto de especial interés, pues su semivida intermedia (22 años) y su emisión gamma en un rango de energías dentro de la medible mediante espectrometría gamma, lo convierte en un radionucleido idóneo para la datación de sedimentos recientes en escalas temporales del orden de uno a dos siglos. Para llegar a él es necesario estudiar en detalle la cadena $4n+2$, cuyo padre es el ^{238}U ($T_{1/2} = 4,47 \times 10^9$ a), figura 2.1, en esta cadena se establece inicialmente un equilibrio secular con sus descendientes inmediatos ^{234}Th ($T_{1/2} = 24,1$ d) y $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 1,17$ min). Este equilibrio se extiende incluso al ^{234}U ($T_{1/2} = 2,46 \times 10^5$ a) en sistemas imperturbados pese a tener una semivida muy notable sigue siendo ordenes de magnitud más pequeña que la del ^{238}U . Posteriormente, el equilibrio secular continúa entre ^{234}U y ^{230}Th ($T_{1/2} = 7,54 \times 10^4$ a), y éste se prolonga hasta el ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1600$ a).

Por razones físicas y químicas, el equilibrio puede romperse en el paso $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn}$ ($T_{1/2} = 3,82$ d), ya que el radón es un gas noble que puede difundirse y escapar fácilmente de la matriz sólida, interrumpiendo la continuidad de la cadena. Si fuese posible contener herméticamente el radón, el equilibrio secular se extendería a través de los siguientes radionucleidos de vida corta como ^{218}Po ($T_{1/2} = 3,10$ min), ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26,8$ min), ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19,9$ min) y ^{214}Po ($T_{1/2} = 164$ μs), hasta alcanzar el ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,3$ a). Cuando se trata de estudiar este núcleo por espectrometría gamma, es decir midiendo su actividad a través de sus emisiones gamma, se debe estudiar toda la cadena desde el ^{226}Ra para observar el comportamiento completo de la misma, que da información de procesos físicos químicos y geológicos.

El ^{226}Ra presenta una línea gamma a 186,2 keV, véase la figura 2.1.1, pero su medición directa se ve dificultada por la interferencia con la transición del ^{235}U a 185,7 keV. El ^{222}Rn , por su parte, decae α al estado fundamental ^{218}Po sin presentar emisiones gamma con la probabilidad suficiente para su medición. Por este motivo, se recurre a la medición de las actividades de los hijos de vida corta que suceden al ^{226}Ra , como el ^{214}Pb ($T_{1/2} = 26,8$ min), que emite gammas intensas a 295 y 352 keV, y el ^{214}Bi ($T_{1/2} = 19,9$ min) a 609, 1120 y 1764 keV. Sus esquemas de

desintegración se encuentran en el anexo B. Estas líneas son limpias y de alta intensidad, ideales para mediciones por espectrometría gamma. De este modo, se puede determinar A_{226Ra} de forma alternativa a partir de los picos del ^{214}Pb siempre que se tenga equilibrio secular, con lo que se debe asegurar un entorno cerrado donde el ^{222}Rn no escape. La actividad del ^{214}Pb también posee importancia para la datación, ya que será crucial comparar las actividades de ^{226}Ra y ^{214}Pb con la obtenida para el ^{210}Pb para comprobar si existe equilibrio en la cadena o si existen aportes externos de ^{210}Pb .

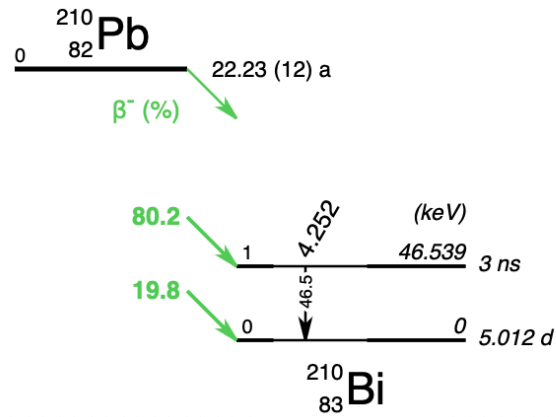


Figura 2.4: Esquema de desintegración ^{210}Pb .

Finalmente, se encuentra el ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,3$ a) que ocupa una posición clave en el tramo final de la cadena. Su transición gamma de 46.5 keV, aunque débil (intensidad de apenas 4.3 %), permite determinar su actividad. La dificultad reside en que su baja energía implica una fuerte autoabsorción en la muestra, y la baja probabilidad de emisión requiere tiempos de conteo largos y técnicas especializadas de bajo fondo. Por ello, durante el trabajo se estudian métodos de espectrometría gamma de ultra bajo fondo que permiten realizar este tipo de mediciones. A pesar de las dificultades experimentales que supone, el ^{210}Pb es insustituible en cronología ambiental, ya que su semivida es perfectamente adecuada para esta escala temporal.

2.1.2. Radionucleidos antropogénicos: ^{137}Cs

El ^{137}Cs es uno de los productos de fisión más abundantes, generado en la fisión de núclidos como ^{235}U o ^{239}Pu con un rendimiento acumulativo cercano al 6 % (véase tabla 2.1.2). Debido a este elevado rendimiento, y a su semivida de 30,17 años, el ^{137}Cs se encuentra hoy de forma ubicua en el medio ambiente como consecuencia de las pruebas nucleares atmosféricas y de diversos accidentes nucleares ocurridos durante la segunda mitad del siglo XX.

Nucleo	Padre	Térmicos		Rápidos		14 MeV	
		Acumulativo	Independiente	Acumulativo	Independiente	Acumulativo	Independiente
^{137}Cs	^{232}Th	–	–	6.2965E-02	5.1397E-05	6.2855E-02	7.6701E-04
^{137}Cs	^{233}U	6.2045E-02	4.9013E-03	6.4988E-02	9.2058E-03	4.9534E-02	2.1435E-02
^{137}Cs	^{235}U	6.2208E-02	7.2248E-04	5.8889E-02	1.2247E-03	5.5674E-02	1.1381E-02
^{137}Cs	^{237}Np	6.5115E-02	2.0515E-03	6.2654E-02	3.7395E-03	–	–
^{137}Cs	^{238}U	–	4.3585E-05	6.0222E-02	–	5.6169E-02	8.3292E-04
^{137}Cs	^{239}Pu	6.5881E-02	4.5666E-03	6.3518E-02	6.9485E-03	–	–
^{137}Cs	^{241}Am	7.1777E-02	9.6947E-03	6.3746E-02	1.3431E-02	–	–
^{137}Cs	^{241}Pu	6.2843E-02	6.4582E-04	6.3678E-02	1.4082E-03	–	–

Cuadro 2.1: Rendimientos de fisión del ^{137}Cs en distintos núclidos padres y energías del neutrón. Se muestran tanto los rendimientos acumulativos como los independientes [12].

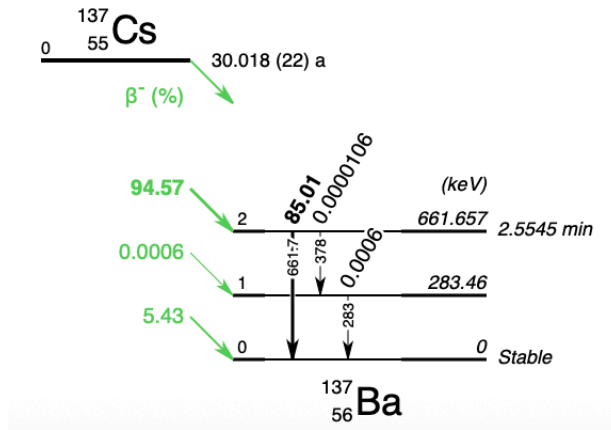


Figura 2.5: Esquema de desintegración ^{137}Cs .

El ^{137}Cs se desintegra por β^- a un estado excitado del bario, el $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 2,55$ min) según el esquema 2.1.2. Este estado se denomina metaestable porque, a diferencia de los estados excitados nucleares habituales (que se desexcitan casi instantáneamente, en escalas del orden de femtosegundos), posee una semivida relativamente larga. La razón de esta longevidad es que la transición a estados de menor energía está inhibida por las reglas de selección del espín y la paridad nucleares. Las probabilidades de transición electromagnética se pueden estimar mediante las fórmulas de Weisskopf, que proporcionan valores de referencia suponiendo un núcleo esférico y uniforme. Según estas estimaciones, la tasa de transición para la radiación electromagnética de multipolaridad L depende fuertemente de la energía del fotón E_γ como [9]:

$$\lambda(EL) \propto \left(\frac{E_\gamma}{\text{MeV}}\right)^{2L+1} B(EL), \quad \lambda(ML) \propto \left(\frac{E_\gamma}{\text{MeV}}\right)^{2L+1} B(ML).$$

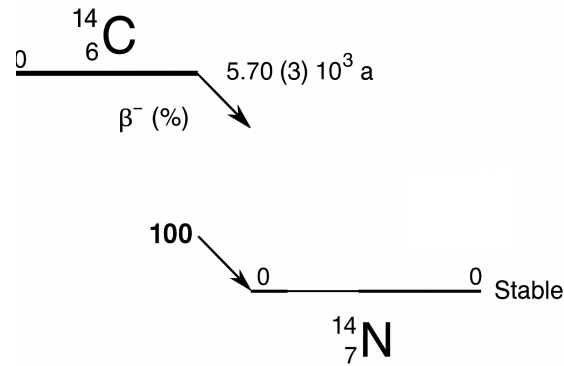
donde $B(EL)$ y $B(ML)$ son las probabilidades reducidas de transición. Este factor E_γ^{2L+1} implica que, para una misma energía, las transiciones de alto orden multipolar (L grande) son mucho menos probables que las de bajo orden, lo que se traduce en tiempos de vida significativamente más largos. La multipolaridad caracteriza el tipo de radiación electromagnética emitida (dipolar, cuadrupolar, etc.), en función de cómo se acoplan los momentos angulares de los estados nucleares inicial y final y del fotón. En el caso del $^{137\text{m}}\text{Ba}$, la transición $11/2^- \rightarrow 3/2^+$ sólo es posible por $M4$ (o $E5$ muy débil), de modo que la probabilidad instantánea de desintegración es reducida y el nivel se manifiesta como un estado metaestable con $T_{1/2} = 2,55$ min.

El $^{137\text{m}}\text{Ba}$ decae finalmente mediante esta transición isomérica, emitiendo un fotón gamma muy característico de 661.7 keV en un (85,01 %). Esta línea es particularmente intensa, aislada y se encuentra aproximadamente en el centro del rango de energías del espectro gamma, lo que la convierte en ideal para medidas espectrométricas de alta precisión. El ^{137}Cs , por lo tanto, constituye un excelente marcador cronológico ya que su presencia indica inequívocamente contaminación posterior a 1954 (fecha de inicio de las pruebas nucleares atmosféricas), alcanzando un máximo en 1963.

2.1.3. Radionucleidos cosmogénicos: ^{14}C

El ^{14}C , es cosmogénico debido a que se origina en la atmósfera de forma continua mediante la reacción de neutrones térmicos procedentes de rayos cósmicos que interaccionan con los gases atmosféricos hasta termalizarse. Posteriormente, son capturados por átomos de ^{14}N , según la reacción mediante la reacción $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$.

El ^{14}C decae por β^- al estado fundamental del ^{14}N con una semivida de $T_{1/2} = 5730$ a. El estado inicial es 0^+ y el final 1^+ , por lo que la transición no puede ser de tipo Fermi ($\Delta J = 0$), sino Gamow-Teller permitida ($\Delta J = 1$, paridad conservada). En condiciones normales, este tipo de transiciones son rápidas, con semividas de segundos o minutos [9]. Sin embargo, en el caso del ^{14}C la probabilidad de transición resulta millones de veces menor, lo que


 Figura 2.6: Esquema de desintegración ^{14}C .

se traduce en una vida media anómalamente larga [14].

El origen de esta anomalía se encuentra en la estructura nuclear, el modelo de capas los nucleones (protones y neutrones) ocupan niveles discretos, de forma análoga a los electrones en un átomo. El ^{16}O es un núcleo doblemente mágico ($Z = N = 8$): tiene capas cerradas y sirve como referencia útil. Tanto el ^{14}C ($Z = 6, N = 8$) como el ^{14}N ($Z = 7, N = 7$) pueden describirse, en primera aproximación, como dos huecos en la capa $1p$ respecto de ese núcleo cerrado: es decir, les faltan dos nucleones en la capa superior completamente ocupada en el ^{16}O . Esta imagen fija el marco para entender su desintegración β^- .

Una transición β^- está gobernada (en el límite permitido) por dos operadores: el de Fermi y el de Gamow–Teller, notado como \hat{O}_{GT} [9]. La amplitud de la transición¹ da su elemento de matriz reducido,²

$$M_{\text{GT}} = \langle f | \hat{O}_{\text{GT}} | i \rangle, \quad (2.6)$$

el operador conecta el estado nuclear inicial $|i\rangle$ con el final $|f\rangle$. En la expresión de la semivida, lo que interviene es el módulo al cuadrado, $|M_{\text{GT}}|^2$, que determina la probabilidad efectiva de la transición:

$$T_{1/2} = \frac{1}{f(Z, E_0)} \frac{2\pi^3 \hbar^7 \ln 2}{m_e^5 c^4 G_V^2} \frac{1}{g_A^2 |M_{\text{GT}}|^2}, \quad (2.7)$$

donde $f(Z, E_0)$ es el factor de fase que recoge la densidad de estados accesibles al electrón y antineutrino emitidos; G_V es la constante de Fermi y g_A el acoplamiento axial de las interacciones débiles³. Para el ^{14}C que decae al ^{14}N mediante una transición de Gamow–Teller permitida cabría esperar un $|M_{\text{GT}}|$ grande (del orden de la unidad) y una semivida corta [14] [9].

La realidad observada es la contraria, el ^{14}C tiene $T_{1/2} \approx 5730$ años. La explicación está en la estructura fina de los estados nucleares. Los estados inicial y final no son una sola configuración, sino superposiciones de muchas configuraciones de la capa p . Al evaluar M_{GT} esas contribuciones parciales entran con signos distintos y se cancelan entre sí, dejando un valor neto muy pequeño dando como resultado una transición fuertemente inhibida y una vida media anómalamente larga que resulta muy útil como reloj radiocronológico [14].

¹En física nuclear, la *amplitud de transición* es el valor (generalmente complejo) obtenido al evaluar el operador de la interacción entre el estado inicial y el final. No es directamente una probabilidad, pero su módulo al cuadrado $|M|^2$ da la intensidad o probabilidad efectiva de la transición.

²Un *elemento de matriz reducido* es una forma compacta de escribir el acoplamiento entre estados nucleares usando las reglas de simetría del momento angular (teorema de Wigner–Eckart). Permite separar la parte geométrica (factores de Clebsch–Gordan) de la parte dinámica propia de la transición [15].

³El *acoplamiento axial* de la interacción débil. Ajusta la intensidad de las transiciones Gamow–Teller frente a las de tipo Fermi. [9].

2.2. Datación por ^{210}Pb

Como ya ha sido expuesto anteriormente, ^{210}Pb es un radionúclido con una semivida de 22,3 años que proviene de la cadena natural del ^{238}U , un radionúclido primigenio [33]. En esta cadena, el ^{238}U se transmuta en distintos elementos a través de desintegraciones α y β , entre los que destaca el ^{222}Rn . Debido a su estado de agregación gaseoso en las condiciones de presión y temperatura terrestres, es posible que el ^{222}Rn escape de la roca madre y se difunda por la atmósfera. Este hecho implica que, al analizar un testigo sedimentario, se identificarán distintas fuentes de ^{210}Pb . El ^{210}Pb que siempre ha estado presente en el sedimento, producto de la desintegración in situ del ^{238}U presente inicialmente, se denomina ^{210}Pb supported ($^{210}\text{Pb}_{\text{sup}}$). Por otro lado, el ^{210}Pb procedente de la desintegración del ^{222}Rn gaseoso que escapó de su fuente primitiva y terminó por caer y depositarse en sedimentos tanto secos como húmedos, se conoce como ^{210}Pb en exceso ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$). Un esquema de este proceso se puede observar en la figura 2.7. En la acumulación de sedimento a lo largo del tiempo, se espera idealmente un perfil decreciente de la actividad específica de ^{210}Pb con la profundidad. Esto permite datar con precisión tiempos de hasta siete semividas (aproximadamente 150 años), como se ilustra en la figura 2.7. Para medir la concentración total de ^{210}Pb presente en muestras sedimentarias, utiliza el método de espectrometría gamma, desarrollado ampliamente en el siguiente capítulo.

La datación por ^{210}Pb se aplicó por primera vez a la datación de sedimentos marinos en 1972 [29]. Desde entonces, se han desarrollado numerosos modelos, que se atienden más adelante, los cuales permiten obtener un perfil que relaciona la sección de sedimento con los tiempos de formación, en función de la profundidad, y el cálculo de tasas de sedimentación.

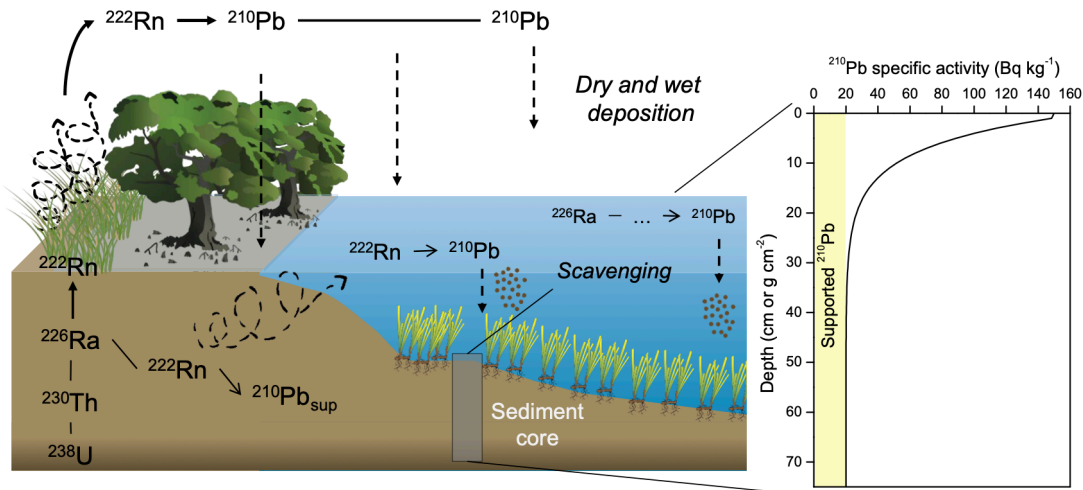


Figura 2.7: A la derecha, esquema de las dos fuentes de ^{210}Pb en un sedimento. A la izquierda el perfil esperado de actividad de ^{210}Pb según la profundidad [33].

2.2.1. Estructura general de los modelos de datación por ^{210}Pb

En el proceso de sedimentación, se debe considerar la compactación de la muestra. Por ello, la datación debe realizarse en función de la profundidad de masa (g/cm^2) en lugar de la profundidad de sedimento (cm). Se utiliza el parámetro i para determinar el corte o lámina de sedimento en la que se trabaja. En el caso de que una magnitud sea función de i ($f(i)$), se debe entender que i es infinitesimal y dicha magnitud es continua en i ; mientras que en el caso de que i aparezca como subíndice (f_i), se debe entender que es una magnitud referida a la sección i , es decir, una magnitud discreta que toma el mismo valor en toda la geometría i .

Conviene estudiar la expresión general para cualquier modelo ya que la diferencia entre ellos reside qué cantidades se suponen constantes. La concentración de actividad en (Bq/g) de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en una sección i de sedimento (C_i) decae según la ley radiactiva, ecuación 2.2, lo cual no proporciona información suficiente para conocer la edad de

la sección ya que la concentración de partida $C_i(i, t = 0)$ no se puede determinar experimentalmente, sin embargo se puede calcular:

$$C_i(i, t = 0) = \frac{f(i)}{r(i)} \rightarrow C_i(i, t) = \frac{f(i)}{r(i)} e^{-\lambda t}, \quad (2.8)$$

esto indica que la concentración inicial de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ es igual al flujo de este radionucleido $f(i)$ (medido en $\text{Bq}/\text{cm}^2\text{a}$) depositado, dividido entre la tasa de acumulación de materia, también llamada ritmo de sedimentación $r(i)$ (medido en $\text{g}/\text{cm}^2\text{a}$). Esta relación puede variar, por lo que en general no se observarán perfiles con un decaimiento exponencial claro.

2.2.2. Modelo de actividad específica constante CA

Históricamente llamado de Concentración Inicial Constante (CIC) como su nombre indica se basa en la hipótesis:

$$C_i(i, t = 0) = \frac{f(i)}{r(i)} = C_0, \quad (2.9)$$

entendiéndose que C_0 es la concentración inicial, es constante y además es la misma para todas las capas. Se calcula la edad de cada capa despejando en la expresión anterior:

$$C_i(i, t) = C_0 e^{-\lambda t} \rightarrow t_i = \frac{1}{\lambda} \ln \left(\frac{C_0}{C_i} \right). \quad (2.10)$$

Es evidente que C_0 solo está bien definida en la capa superficial de sedimento, donde el $^{210}\text{Pb}_{xs}$ acaba de depositarse y aún no ha decaído. Esta aproximación empeora a medida que aumenta la profundidad de la capa. La solución más utilizada consiste en considerar una extrapolación, lo cual es posible si existe una relación lineal entre el logaritmo neperiano de la concentración y la masa acumulada: $\ln(C) = f(m_i)$. Al considerar una dependencia lineal, se asume implícitamente que la tasa de acumulación es constante en el tiempo, lo cual constituye la hipótesis del modelo CFCS. La ventaja de este modelo reside en su simplicidad. No obstante, presenta una serie de inconvenientes: la hipótesis CA implica que el flujo de sedimentación es proporcional a la acumulación de masa en el sedimento, lo cual constituye una afirmación muy restrictiva y falsa en la mayoría de los casos. Además, este modelo no podría explicar perfiles en los que las capas profundas de sedimento presentaran mayor concentración de ^{210}Pb , una casuística común que tiene su origen en otros factores [33].

2.2.3. Modelo de sedimentación constante CS

Este modelo asume que el ritmo de sedimentación $r_i = r(i) = r$ es constante; sustituyendo en la ecuación general (2.8) se obtiene que si r es constante existe una relación proporcional entre f_i y C_i . Por la misma definición de tasa de acumulación $r = m/t$, donde m se mide en (g/cm^2) , se puede obtener t y finalmente implementando las expresiones:

$$C_i = \frac{f_i}{r} e^{-\lambda m_i/r}. \quad (2.11)$$

Esta condición aún es muy restrictiva y solo tendría utilidad si se conoce f_i durante el periodo de estudio, lo que hace que CS sea un modelo académico y sin aplicación real.

2.2.4. Modelo de flujo constante CF

También conocido como *Constant Rate of Supply model* (CRS), como cabe esperar la hipótesis fundamental de este modelo es suponer el flujo de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ constante $f_i = f(i) = f$; usando de nuevo (2.8), se obtiene una relación

inversamente proporcional entre C_i y r_i ,

$$C(i) = \frac{f}{r(i)} e^{-\lambda t(i)}. \quad (2.12)$$

Es útil trabajar con el depósito de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ acumulado bajo capa, $D(i)$, y dado que las cantidades en (2.12) están referidas a láminas, es posible integrar:

$$D = \int_m^\infty \frac{f}{r} e^{-\lambda t} dm = \int_m^\infty \frac{f dt}{dm} e^{-\lambda t} dm = \int_t^\infty f e^{-\lambda t} dt = \frac{f}{\lambda} e^{-\lambda t}. \quad (2.13)$$

Se deduce que el flujo inicial $f = D(0)\lambda$ y puede escribirse $D(i) = D(0)e^{-\lambda t}$, de donde se puede conocer la edad de cada lámina;

$$t(i) = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{D(0)}{D(i)}. \quad (2.14)$$

A partir de la expresión anterior, se deduce que es necesario conocer experimentalmente la deposición por capas. En caso de que esto no sea posible, existen distintos métodos que pueden aplicarse, dependiendo de cuáles sean los huecos desconocidos [33]. Una de las principales ventajas del modelo CF frente a otros enfoques es que la relación inversa entre la concentración de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ y la tasa de acumulación se ajusta mejor a situaciones reales. Esto es particularmente relevante en escenarios donde, debido a factores externos, la tasa de acumulación $r(i)$ aumenta bruscamente sin que se registre un incremento proporcional en la deposición de $^{210}\text{Pb}_{xs}$, lo que produce una disminución en la concentración $C(i)$. Este fenómeno se conoce como dilución. Sin embargo, una limitación del modelo CF es que, aunque la cantidad de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ en la atmósfera suele considerarse relativamente constante, en la práctica puede verse afectada por condiciones externas. Por tanto, no se puede garantizar que esta suposición sea válida para todos los contextos de estudio.

2.2.5. Modelo de flujo periódico PF

Es una generalización de CF en la que se asume que f tiene cambios periódicos en el tiempo τ , por ejemplo anuales, es muy útil en zonas donde existe un registro consistente de la deposición de $^{210}\text{Pb}_{xs}$. La acumulación puede calcularse bajo esta asunción:

$$r(i) = \frac{D(i)}{\tau C(i)} (1 - e^{-\lambda t}). \quad (2.15)$$

2.2.6. Modelo de flujo constante y sedimentación constante CFCS

Combinando las hipótesis CF y CS se obtiene:

$$C_i(i, t = 0) = \frac{f}{r} = C_0, \quad (2.16)$$

que no debe confundirse con (A.26), donde pese a que C_0 es constante tanto f como r podían variar. Se obtiene de nuevo (2.10), sustituyendo el tiempo como $t = m_i/r$ se puede resolver:

$$\ln C_i = \ln C_0 - \frac{\lambda}{r} m_i. \quad (2.17)$$

Para los perfiles en los que existe relación lineal ($y = ax + b$) entre $\ln(C_i)$ y m_i se puede resolver identificando términos:

$$a = \ln C_0 \rightarrow C_0 = e^a; \quad b = -\frac{\lambda}{r} \rightarrow r = -\frac{\lambda}{b}. \quad (2.18)$$

Para datar puede usarse simplemente la definición de $r = m_i/t$.

2.3. Datación por ^{137}Cs

El ^{137}Cs , producto de fisión, está presente en todos los sistemas naturales como consecuencia del fenómeno de lluvia radiactiva estratosférica o *fallout*. El *fallout* se produce tras la inyección de material radiactivo en la estratosfera, el cual, mediante difusión, se distribuye por el planeta y finalmente cae depositándose en los ecosistemas. La causa de dicha inyección de material radiactivo a la atmósfera se encuentra fundamentalmente en las pruebas nucleares atmosféricas que se iniciaron en 1945 con Trinity y continuaron hasta 1980, véase la Figura ???. En 1963 se alcanzó el máximo de emisión histórica y, a su vez, comenzaron a conocerse los efectos de la lluvia radiactiva, lo que llevó a Estados Unidos, Gran Bretaña y la Unión Soviética a la firma del Tratado de Prohibición Parcial de Ensayos Nucleares (*Test Ban Treaty*) ese mismo año. En dicho tratado se prohibían las pruebas atmosféricas, en espacios abiertos y subacuáticos; pero no las subterráneas [36]. En la Figura 2.8 se registran pruebas posteriores al tratado debido a que Francia y China no firmaron el acuerdo. Se estima que en total se vertieron a la atmósfera 60Kg de ^{236}U , 400Kg de ^{137}Np , 150Kg de ^{239}Pu y 30Kg de ^{240}Pu [35].

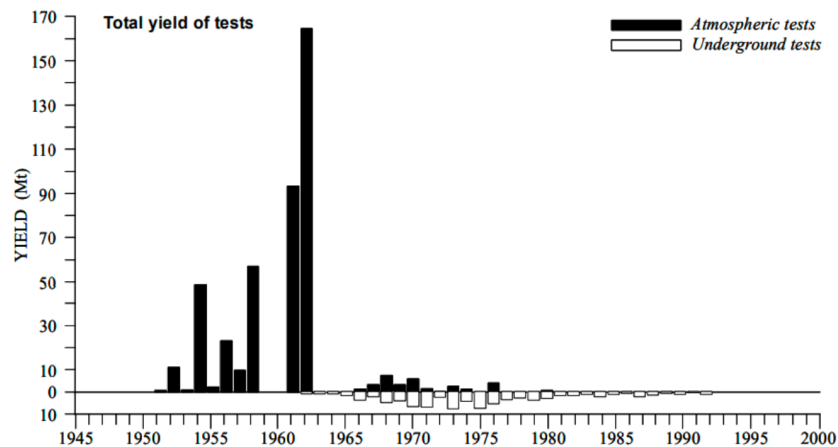


Figura 2.8: Rendimiento de prueba de armas nucleares medido en Mt, equivalente en megatoneladas de TNT, atmosféricos y subterráneos frente a fecha de detonación [35].

Además de los vertidos militares, que ocupan el primer puesto en cuanto a emisión de radionúclidos, a lo largo de la historia se han producido accidentes nucleares, como Chernóbil (1986), cuya mayor parte de la deposición de material se localizó en un radio de unos 30 km, aunque tuvo efectos globales; y Fukushima (2011) también con efectos globales. En España destacan dos episodios de especial relevancia: el accidente de Palomares (1966) y el incidente de Acerinox (1998). En Palomares, tras la colisión en vuelo de dos aeronaves militares estadounidenses, cayeron al suelo cuatro bombas termonucleares, de las cuales dos liberaron material radiactivo al romperse sus envolturas convencionales, provocando una extensa contaminación por plutonio en la zona [17]. Por su parte, el accidente de Acerinox tuvo lugar en la planta siderúrgica de Los Barrios (Cádiz), cuando una fuente radiactiva de ^{137}Cs , oculta en un cargamento de chatarra, fue fundida inadvertidamente en los hornos de la acería [16]. El suceso liberó radiación gamma y cenizas contaminadas, que fueron detectadas no solo en España sino también en diversos países europeos, generando una alerta transnacional y poniendo de manifiesto la importancia de los controles radiológicos en la industria del reciclaje metálico.

Debido a su origen exclusivamente antropogénico, el ^{137}Cs constituye un trazador cronológico de gran utilidad, ya que permite identificar con claridad la fecha de deposición en los sedimentos. En un perfil típico de ^{137}Cs , como el de la figura 2.9, las capas más superficiales suelen mostrar picos asociados a accidentes nucleares de gran repercusión, como Chernóbil (1986) y Fukushima (2011). A continuación aparece un máximo muy marcado en 1963, correspondiente al pico global de deposición derivado de los ensayos nucleares atmosféricos. Si se continúa hacia capas más antiguas, se observa una cola decreciente que refleja las deposiciones previas iniciadas en 1954, cuando

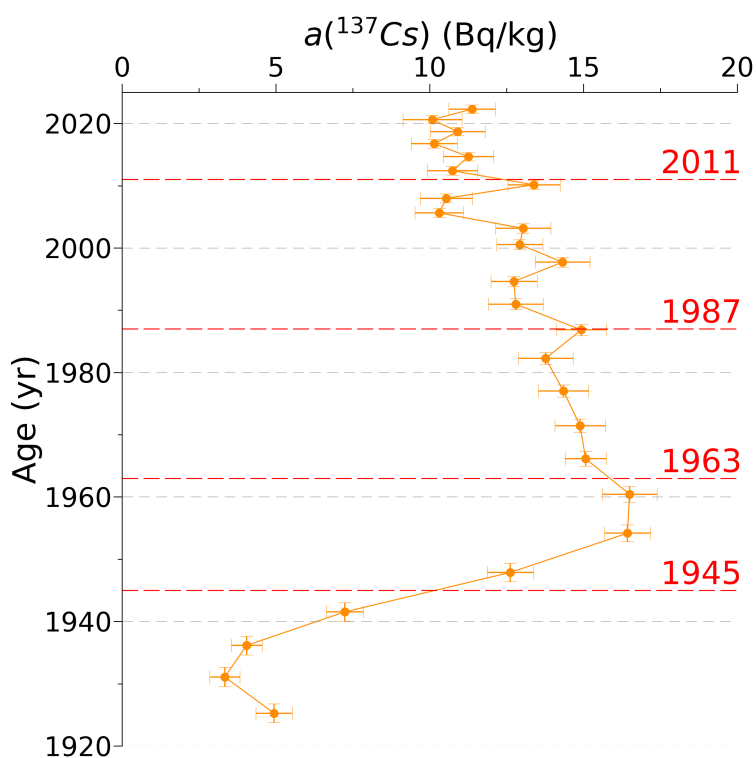


Figura 2.9: Perfil de ^{137}Cs de un testigo sedimentario de la laguna de Sobrado dos Monxes (Galicia, España) [50].

comenzaron las pruebas termonucleares a gran escala. Por debajo de esa fecha, tras 1945, puede detectarse únicamente una señal residual atribuible a procesos postdeposicionales, como la migración vertical del ^{137}Cs en el sedimento, pero no asociada a eventos de emisión concretos. La imagen 2.9 corresponde a un perfil de ^{137}Cs de un testigo sedimentario de la laguna de Sobrado dos Monxes (Galicia, España). En este perfil se observa la estructura esperada para una datación mediante ^{137}Cs . Como curiosidad al ser una laguna Española se puede observar un pequeño pico correspondiente al accidente de Acerinox (1998) cuya actividad específica es muy similar a la que se presenta para los accidentes de mayor repercusión Chernóbil y Fukushima.

En este trabajo, se contrastará el perfil cronológico generado por el radionúclido ^{210}Pb con el obtenido mediante ^{137}Cs , ambos determinados por espectrometría gamma. Mientras el ^{210}Pb ofrece una cronología continua de los últimos 100–150 años, el ^{137}Cs aporta marcadores puntuales que permiten anclar con precisión momentos discretos. Esta combinación fortalece la confiabilidad de la datación, especialmente cuando uno u otro perfil tiene zonas ambiguas o distorsionadas. Comparaciones similares entre las dos técnicas han sido realizadas en estudios recientes de sedimentos de humedales, demostrando que ambas metodologías pueden complementarse eficazmente para reducir la incertidumbre en los modelos de edad-profundidad [18] [19].

2.4. Datación por ^{14}C

El ^{14}C es un radionucleido cosmogénico con una semivida media de 5700 años, como se discute ampliamente en la sección anterior. Este radionúclido compone moléculas de CO y CO_2 con normalidad junto al resto de isótopos estables ^{12}C y ^{13}C . Con el descubrimiento de esta reacción, Korff en 1939 identificó que el ^{14}C debía estar presente en la naturaleza. Libby fue más allá postulando en 1946 que de ser así, debía existir un equilibrio entre el ^{14}C generado en la atmósfera y el incorporado por los seres vivos, primero captado mediante organismos fotosintéticos y posteriormente distribuido a todo el ecosistema, estimó que el equilibrio sería posible si el ^{14}C tenía una semivida del orden de 1000 años [37]. La consecuencia inmediata de dicha hipótesis es la posibilidad de datar restos orgánicos

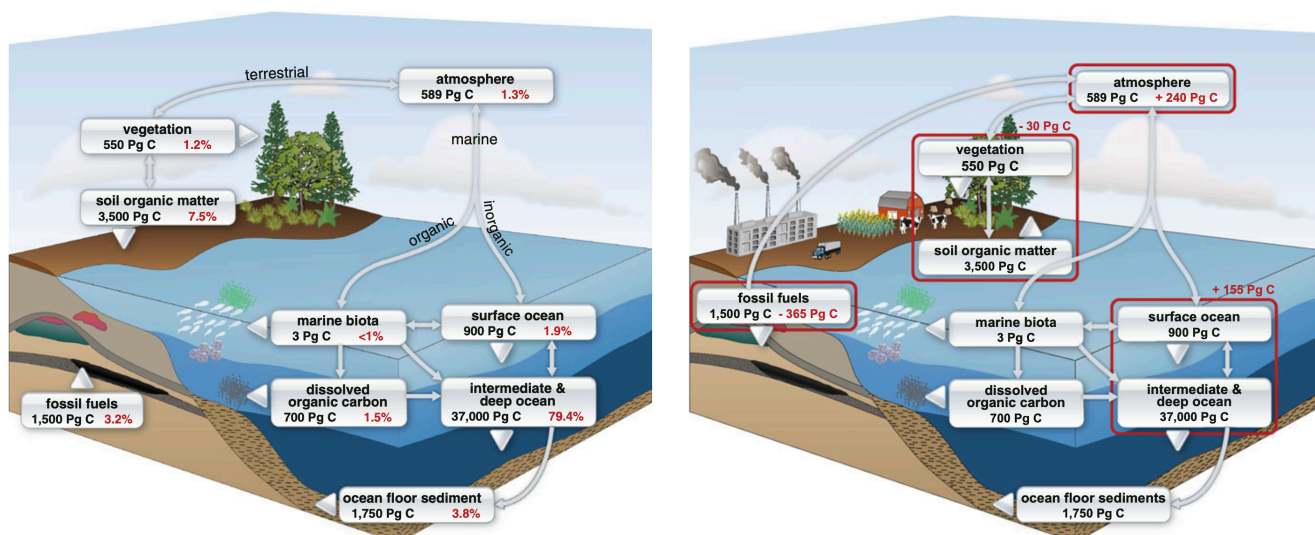


Figura 2.10: Se muestran los principales reservorios de carbono, en rojo el contenido de ^{14}C en %, en negro picogramos de carbono (PgC). A la izquierda, reservorios anteriores a 1850, a la derecha se muestra la alteración de los reservorios por la acción humana [40].

mediante el estudio del decaimiento del ^{14}C que incorporaron durante su vida, ecuación (2.2).

Libby trabajó en este proyecto durante años enfrentándose a un problema experimental, ya que debía medir el decaimiento de un radioisótopo muy poco abundante (el ^{14}C se encuentra en la naturaleza en una proporción de 10^{-10} %), lo que resultaba en actividades muy bajas y, por tanto, difíciles de detectar. Utilizó detectores Geiger con blindajes de plomo, pero aún no era posible distinguir las medidas del fondo. Por ello, puso en práctica el método de medidas en anticoincidencia ⁴. En este trabajo no se empleará el método de medición de actividades, sino que se medirá la relación $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ presente en una muestra. Esto es posible utilizando un acelerador de iones de ^{14}C , técnica conocida como espectrometría de masas con acelerador (AMS), la cual se desarrolla en el capítulo siguiente.

Finalmente, en 1949, Libby publicó el artículo que presentaba la primera curva que relacionaba la edad de muestras con edad conocida con la edad calculada mediante ^{14}C [38]. Este método se basa en una serie de suposiciones: se asume que se conoce el contenido de ^{14}C en la muestra y se toma como referencia la relación $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ anterior a 1890, en la época preindustrial; se asume que el sistema no ha intercambiado ^{14}C desde el final de la asimilación; y se asume que la fracción de ^{14}C perdida se debe exclusivamente al decaimiento radiactivo. Para sus cálculos Libby consideró que la semivida del ^{14}C era de 5568 años, es la conocida semivida de Libby, que no coincide con la que se tiene actualmente. Dada la importancia del descubrimiento terminó obteniendo el Nobel en Química en 1960 por el desarrollo de esta técnica que abrió nuevas posibilidades en campos como arqueología, geología, oceanografía o paleoclimatología.

2.4.1. Ciclo del carbono

Los reservorios son los lugares del planeta donde se acumula el carbono, siendo los principales la atmósfera, biosfera, hidrosfera y litosfera, ver figura 2.10. Se estudia como se fija el ^{14}C a cada uno de ellos mediante el ciclo del carbono.

El ^{14}C se genera en la atmósfera, donde se oxida formando CO y CO_2 que se difunden y distribuyen hacia el resto de reservorios.

□ **Biosfera:** como ya se mencionó, el carbono se fija en las plantas mediante la fotosíntesis y pasa al resto de seres a través de la cadena trófica; este mecanismo de intercambio es rápido y se puede considerar que los seres

⁴método de medida de actividad que suprime una cuenta si es medida al mismo tiempo por el detector principal y los secundarios, considerándose esta proveniente del fondo; es necesario el uso de varios detectores.

terrestres están en equilibrio con el ^{14}C atmosférico, figura 2.10.

□ **Hidrosfera:** desde la atmósfera el ^{14}C también se fija en la hidrosfera, el CO_2 se disuelve en las aguas del planeta donde es asimilado por algas, pasando a la vida subacuática y finalmente a los sedimentos marinos, figura 2.10. Este intercambio puede ser complicado ya que las aguas profundas (>500m) de los océanos están aisladas de la atmósfera, de manera que un cambio en el ^{14}C atmosférico puede no verse reflejado en estas aguas llevando a medir edades que no corresponden al equilibrio pertinente, este es el llamado efecto reservorio; para datar restos marinos es necesario conocer la edad del reservorio que puede determinarse a partir de otros métodos como muestras de edad conocida o métodos absolutos como el estudio del equilibrio ^{230}Th - ^{234}U en corales y conchas.

□ **Litosfera:** a través de restos orgánicos el ^{14}C se fija en la litosfera, pudiendo formarse combustibles fósiles como se puede ver en la figura 2.10, pero no toda la asimilación de ^{14}C es orgánica, también es posible que a través de la formación de rocas y minerales se incluyan estos iones procedentes de la atmósfera o la hidrosfera.

La concentración de $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ en los reservorios se supone constante para el método de datación propuesto por Libby, sin embargo esto no es cierto; la relación isotópica ha cambiado a lo largo del tiempo debido tanto a factores naturales (la variación de la actividad solar o el campo magnético terrestre) como a factores antropogénicos, entre los que se encuentran la revolución industrial (figura 2.10 izquierda) y las pruebas nucleares (figura 2.10 derecha). Es fundamental conocer en qué medida cada uno de estos eventos ha cambiado la concentración de ^{14}C en los distintos reservorios, de conocerse puede construirse una curva de calibrado en la que se muestra la concentración de ^{14}C frente a su fecha y de esta manera el método de datación sigue siendo válido.

2.4.2. Cambios naturales en el ciclo del carbono

Dado que el ^{14}C se forma en la atmósfera a partir de la interacción del ^{14}N con neutrones libres, un cambio en el flujo de estos altera la concentración de ^{14}C ; los cambios en el flujo de neutrones pueden tener orígenes naturales. Entre los fenómenos que aumentan el flujo de rayos cósmicos en la tierra se encuentra la actividad solar; el viento solar es capaz de distorsionar el campo geomagnético terrestre, con lo que un aumento de la actividad solar se ve reflejada en una disminución de la producción de ^{14}C y lo contrario también es cierto, una menor actividad solar llevará a la producción de mayores cantidades de ^{14}C .

2.4.3. Cambios antropogénicos en el ciclo del carbono

Las principales alteraciones al ciclo del carbono por causas antropogénicas pueden agruparse en tres fuentes principales: el efecto Suess, la actividad nuclear y el uso de la tierra.

□ **Efecto Suess:** al inicio de la revolución industrial en la década de 1850 se comienza a quemar en masa combustible fósil, principalmente carbón. Al extraer este combustible de la litosfera y quemarlo, se emiten grandes cantidades de CO_2 que terminan en la atmósfera y posteriormente en la hidrosfera (figura 2.10 derecha) modificando la concentración de ^{14}C presente anteriormente. Curiosamente este efecto disminuye la concentración en ^{14}C , como se aprecia en la figura 2.11 ya que el combustible fósil tiene muy bajo contenido en radiocarbono, la razón de esto yace en su proceso de formación que requiere del orden del millón de años, con lo que la gran mayoría del ^{14}C presente inicialmente ha decaído, es el conocido Efecto Suess bautizado por H. Suess en 1955 [41].

□ **Actividad nuclear:** los ensayos nucleares atmosféricos entre 1945 y 1980 liberaron gran cantidad de material radiactivo, alterando el ciclo de carbono al aumentar el flujo de neutrones de las reacciones de fisión. La figura 2.11 muestra el aumento de ^{14}C , con picos en 1963 en el hemisferio norte y en 1965 en el hemisferio sur, reflejando la mayoría de pruebas en el norte. Tras detenerse los ensayos, la concentración de ^{14}C disminuyó. En particular el pico del 1963 es conocido como *Bomb peak* a causa de él es difícil datar materiales recientes, a no ser que se tenga un perfil de concentración de ^{14}C en el que se aprecie esta tendencia y sea posible asignar el año 1963 de forma

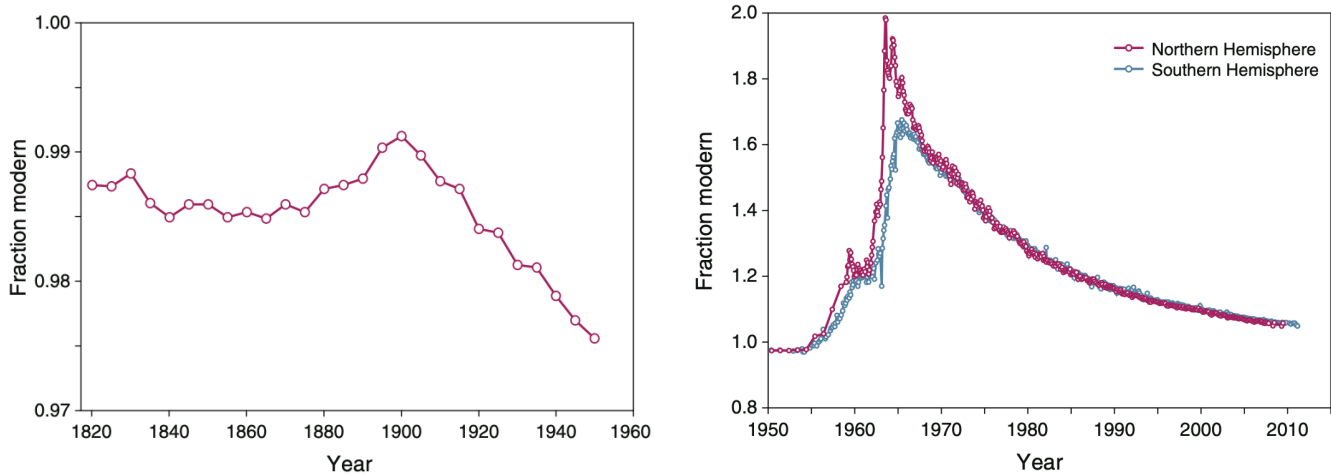


Figura 2.11: A la derecha fracción moderna (F) definida como 1 para la atmósfera preindustrial (1890), frente a tiempo en el periodo preindustrial hasta 1945. A la izquierda fracción moderna (F) frente a tiempo en el periodo de inicio de ensayos nucleares (1945) hasta 2010 [40].

efectiva. Para datación con ^{14}C se toma como referencia el año 1950 como 0 BP *before present*, por ser anterior a los efectos provocados por los ensayos nucleares.

□ **Uso de la tierra:** suele tener asociado la tala y quema de bosques. La quema de materia orgánica viva como árboles y plantas emite grandes cantidades de ^{14}C ya que al contrario de los combustibles fósiles se encontraban en equilibrio; en general el cambio del uso del suelo altera el contenido en ^{14}C en la litosfera y en consecuencia en el resto de reservorios.

El ciclo del carbono está sujeto a la acción humana, la tendencia actual mantiene las emisiones de CO_2 que no solo modifican las fuentes también los sumideros que terminan almacenando cada vez mayores cantidades de CO_2 . En 2024 la concentración de ^{14}C teniendo en cuenta todas las contribuciones, donde destacan los incendios de Canadá (2023) y el Amazonas (2024), se estima de una fracción moderna ⁵ de $F=1,52$ [42].

2.4.4. Curvas de calibrado de ^{14}C

La edad de ^{14}C se calcula suponiendo que la concentración inicial de radiocarbono se ha mantenido constante a lo largo del tiempo, sin embargo como se ha estudiado anteriormente esta premisa es falsa. La concentración de ^{14}C ha cambiado debido a factores naturales y antropogénicos, no solo en la atmósfera, también en cada uno de los reservorios existentes. Sin embargo, esto no implica que sea imposible determinar la edad real de una muestra. Es posible construir curvas que relacionen la edad de carbono de una muestra con su edad real mediante el uso de muestras cuya edad se conoce. Los anillos de los troncos de los árboles se generan de forma anual y actualmente constituyen la mejor referencia para conocer la concentración de ^{14}C de un año concreto. Cabe destacar que este método presenta limitaciones, ya que solo se dispone de árboles de hasta 15.000 años.

Para conseguir referencias más antiguas se utilizan sistemas ricos en carbonato ya que pueden datarse mediante técnicas como el desequilibrio $^{230}\text{Th}/\text{U}$. El ion carbonato CO_3^{2-} se forma por la precipitación del carbono inorgánico disuelto en el agua. Como el ^{238}U es soluble, puede incorporarse a la estructura cristalina del carbonato durante su formación. En cambio, el torio no es soluble en agua, por lo que el ^{230}Th presente en el carbonato proviene exclusivamente de la desintegración del ^{238}U . Al momento de formarse el carbonato, las concentraciones de ^{230}Th y ^{238}U están en desequilibrio. Con el tiempo, este desequilibrio tiende a desaparecer, alcanzando el equilibrio secular, ya que la semivida del ^{238}U ($T_{1/2} = 4,47 \cdot 10^9$ años) es mucho mayor que la del ^{230}Th ($T_{1/2} = 9,15 \cdot 10^4$ años). Por

⁵La "fracción moderna" F (o $F^{14}\text{C}$) se define como la relación entre la actividad específica normalizada de la muestra (A_{SN}) y la actividad de un estándar moderno de Ácido Oxálico (A_{ON}) de referencia internacional (NIST SRM): $F = A_{\text{SN}}/A_{\text{ON}}$.

tanto, al medir la relación entre ambos isótopos se puede determinar el tiempo transcurrido desde la formación del carbonato, es decir, se puede datar la muestra. Este método de datación es aplicable a distintas formaciones carbonatadas, como carbonatos marinos (corales de arrecife, moluscos, foraminíferos, carbonatos lacustres (tobas y sedimentos inorgánicos precipitados) y carbonatos terrestres (espeleotemas, travertinos). Con este método es posible obtener edades de hasta aproximadamente 10^6 años [44].

Además de estos factores, se debe tener en cuenta que la edad de ^{14}C está calculada utilizando a la vida media de Libby ($T_{1/2} = 5568$ años) que se toma como estándar por motivos históricos y la posibilidad de comparar con dataciones anteriores. Se muestra un esquema en el que se resumen las distintas curvas de calibrado a utilizar según el medio en el que se encuentre la muestra (atmosférica u oceánica), el hemisferio al que pertenezca (Norte o Sur) y el periodo en el que se estima que se encontraría tal muestra, si es posterior a 1950 (tomado como año 0BP) según la zona en la que se encuentre le corresponderá una curva de tipo Bomb peak. En la imagen 2.12 izquierda se puede ver la curva de calibrado IntCal20, a su derecha, se puede apreciar que existe otro problema para determinar la edad de una muestra; con frecuencia para una misma edad en ^{14}C son posibles varias edades reales, esto se debe a que las curvas de calibración no tienen un comportamiento lineal. Para el testigo lacustre de este trabajo, obtenido en las Lagunas de Villafáfila en Castilla y León, España; se utilizará Bomb21NH2 y IntCal20 ya que se espera que a lo largo del sedimento se supere el año 1950.

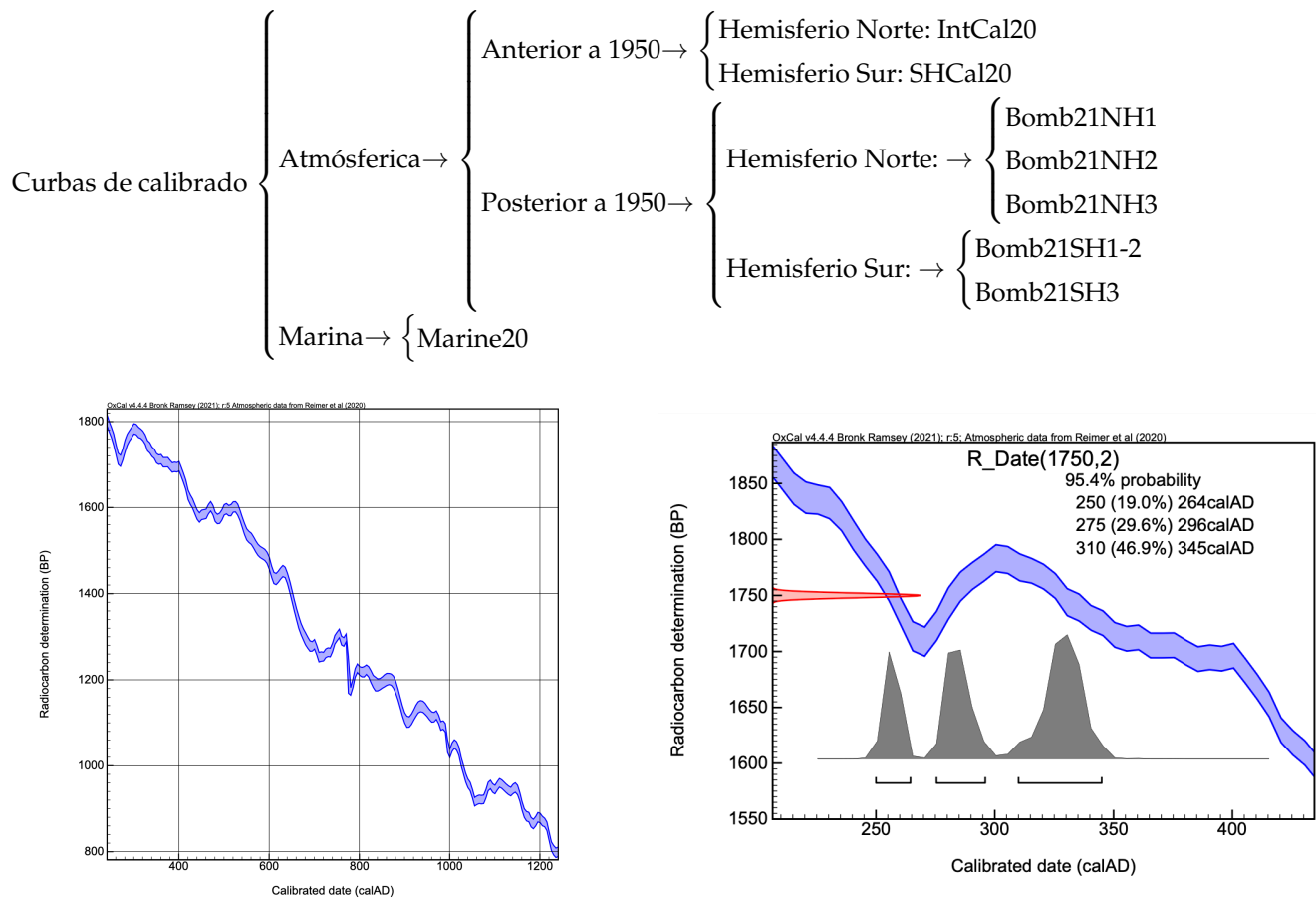


Figura 2.12: Izquierda curva de calibrado IntCal20, ejes en BP (edad de radiocarbono) frente a fecha. Derecha caso de datación con curva IntCal20, parámetros $F^{14}\text{C}=1,700(2)$. Imágenes obtenidas utilizando el programa OXAL.

2.4.5. Papel de la datación por ^{14}C en sedimentos recientes

La datación por ^{14}C ha sido una herramienta fundamental en arqueología y paleoclimatología, y en los últimos años se ha extendido al estudio de sedimentos recientes. Su principal interés radica en que permite obtener edades absolutas de material orgánico presente en los testigos (restos vegetales, carbón o materia orgánica total), extendiendo el rango temporal más allá del cubierto por radionúclidos como ^{210}Pb o ^{137}Cs y proporcionando una cronología complementaria.

Sin embargo, su aplicación en sedimentos recientes presenta desafíos experimentales, como la influencia del carbono antiguo reciclado, la bioturbación o los efectos de mezcla postdeposicional, que pueden alterar las edades medidas [20] [21].

En este contexto, resulta especialmente ilustrativo el trabajo paleoambiental realizado en las Lagunas de Villafáfila (Zamora), que combina datación por ^{14}C mediante AMS con el análisis de polen y microfósiles, lo que permitió reconstruir la historia ambiental y la explotación salinera en la región [74]. Este estudio evidencia cómo los registros sedimentarios constituyen archivos de gran valor para comprender la interacción entre factores climáticos y actividad humana a lo largo de milenios.

En conjunto, estas investigaciones muestran que el ^{14}C , aunque experimentalmente más complejo en sedimentos recientes, constituye un marcador robusto cuando se utiliza de manera combinada con otros métodos de datación, reduciendo la incertidumbre de los modelos edad–profundidad.

Capítulo 3

Técnicas de medida

3.1. Fundamentos de la espectrometría gamma de muy bajo fondo con detector HPGe

La espectrometría gamma es una técnica analítica que se fundamenta en la medición de la energía y la intensidad de las emisiones de fotones gamma de los núcleos atómicos. Esta técnica permite identificar los radioisótopos presentes y determinar su abundancia de forma empírica. Siendo no destructiva, no requiere preparaciones radioquímicas. Su principal limitación reside en sus niveles de fondo, que deben ser tratados adecuadamente. En este trabajo, la medición de bajas actividades, que requieren largos tiempos de medición en detectores de alta resolución, también presentará dificultades. La datación por ^{210}Pb y ^{137}Cs se implementa mediante esta técnica, utilizando detectores de HPGe de muy bajo fondo. Se trata de una técnica interdisciplinar, destacando su aplicación en física nuclear, geología, arqueología y datación.

En esta sección se abordan las características y el funcionamiento de los detectores de germanio, junto con los principales mecanismos de interacción de la radiación gamma con la materia. Asimismo, se analiza la forma e interpretación de los espectros obtenidos y se describen las distintas contribuciones al fondo radiactivo, así como las estrategias empleadas para su reducción y corrección en un espectrómetro de muy bajo fondo.

3.1.1. Interacción de fotones gamma con la materia y su contribución al espectro gamma

Al interactuar un fotón de energía comprendida entre [1,2000]KeV con los átomos que constituyen la materia, existen múltiples mecanismos de interacción de los fotones con la materia que contribuyen a dar forma a los espectros. Entre los procesos de interacción de la radiación gamma con la materia se encuentran la dispersión Rayleigh, un proceso elástico con electrones ligados que predomina a bajas energías, en ángulos pequeños y en materiales de alto número atómico. En este proceso, el fotón conserva su energía, pero cambia de dirección, siendo relevante en modelos de transporte de fotones. La dispersión Thomson, un proceso elástico de fotones con electrones libres o con el átomo en su conjunto, también es un proceso relevante. La dispersión Delbrück, producida por el potencial coulombiano del núcleo, y la fotodesintegración nuclear, absorción del fotón por el núcleo con emisión de nucleones, que solo son relevantes a energías muy elevadas. La dispersión por resonancia nuclear, excitación de niveles nucleares por absorción resonante de fotones, seguida de su reemisión durante la desexcitación, y la producción de mesones, que ocurre a energías superiores a 150 MeV con sección eficaz muy pequeña frente a otros procesos, también son procesos de interacción. Sin embargo, en el rango de interés para espectrometría gamma, los procesos dominantes son el efecto fotoeléctrico, la dispersión Compton y la producción de pares, que se exponen a continuación.

□ **Absorción fotoeléctrica:** ocurre cuando un fotón interactúa con las capas internas del átomo. En este proceso, el fotón es completamente absorbido siempre que su energía inicial (E_γ) sea mayor que la energía de ligadura del

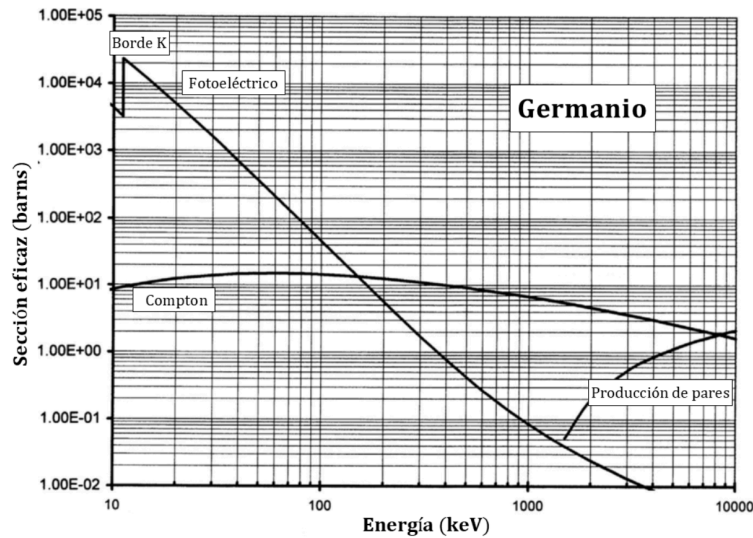


Figura 3.1: Sección eficaz para absorción fotoeléctrica, dispersión Compton, producción de pares, frente a energía del fotón incidente; en el germanio. [50].

electrón (E_b) en dicha capa. Tras la absorción, se emite un electrón atómico (fotoelectrón) que porta el resto de la energía del fotón en forma de energía cinética, ecuación 3.1. Cabe destacar que esta es una interacción de un fotón con un átomo, no puede ocurrir con electrones libres debido a la conservación de energía y momento.

$$E_{e^-} = h\nu - E_b. \quad (3.1)$$

Al emitirse un electrón atómico, el átomo queda ionizado. La vacante es ocupada mediante la captura de electrones libres del medio y/o la reorganización electrónica en el átomo. Durante la reorganización, un electrón de capas altas desciende para ocupar la vacante, lo que provoca la emisión de rayos X característicos¹ o de electrones Auger². Es necesario considerar estos procesos a la hora de detectar la radiación gamma. En la figura 3.11 se puede ver la variación de la sección eficaz³ de este proceso con la energía para el germanio, material en el que se da la interacción en el detector. Se observa en la región de bajas energías una discontinuidad en la curva, atribuible a los bordes de absorción que corresponden a E_b en la capa atómica correspondiente. Si la energía del fotón es superior a E_b , la absorción es posible; de lo contrario, no lo es. Por ello, a energías ligeramente inferiores, el proceso no se produce y la sección eficaz disminuye drásticamente. La sección eficaz de la absorción fotoeléctrica no depende únicamente de la energía, sino que también está fuertemente influenciada por el número atómico del material incidente, como se muestra en la siguiente ecuación:

$$\sigma \propto \frac{Z^n}{E_\gamma^2}, \quad (3.2)$$

donde n varía entre 4 y 5 según la región de interés. Esta interacción es la más deseable para detectar los fotones gamma ya que si ninguna de las partículas eyectadas del átomo en el proceso escapa del detector, se habría depositado completamente la energía del fotón en el material. Esta es la principal razón para la preferencia de uso de materiales de alto Z en la fabricación de detectores.

□ **Dispersión Compton:** se define como la interacción de un fotón con un electrón atómico de las capas externas,

¹Radiación electromagnética de origen atómico, cuya energía es la diferencia entre las energías de las capas atómicas inicial y final del electrón que ocupa la vacante. Esta diferencia de energías es característica de cada elemento.

²Proceso por el cual la diferencia de energías entre las capas atómicas inicial y final del electrón que ocupa la vacante se transfiere a otro electrón atómico, que es eyectado. Es el proceso que compete con la radiación X característica.

³Medida de la probabilidad de interacción a través de una sección, se mide en barns ($1b = 10^{-28}m^2$).

el cual es eyectado como resultado. Este proceso es inelástico debido a que el fotón incidente transfiere parte de su energía al electrón, que se encuentra en un estado pseudo-libre. Finalmente, tanto el fotón como el electrón se dispersan en un ángulo determinado, θ y ϕ respectivamente, tal como se ilustra en la imagen 3.2.

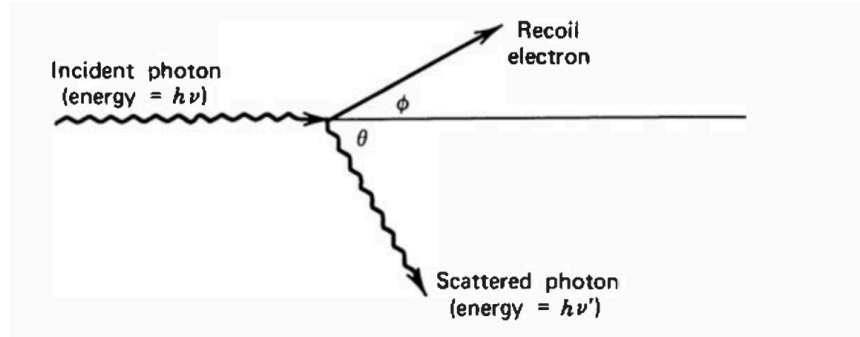


Figura 3.2: Trayectorias en el plano de dispersión [8].

Las nuevas energías para el fotón dispersado y el electrón vienen dadas por:

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma(1-\cos\theta)}{m_e c^2}}, \quad E_e = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m_e c^2}{E_\gamma(1-\cos\theta)}}; \quad (3.3)$$

donde se asume que el electrón se encuentra inicialmente en reposo. Es evidente que para ángulos de dispersión reducidos se transfiere una cantidad de energía mínima al electrón, mientras que para ángulos elevados el electrón adquiere una parte significativa de la energía.

Cabe destacar dos casos de interés: la colisión rasante ($\theta = 0$) y la colisión frontal ($\theta = \pi$). En el primer caso, la transferencia de energía al electrón es mínima. En el segundo caso, el fotón gamma experimenta retrodispersión, mientras que el electrón se dispersa en la dirección de incidencia del fotón con la máxima energía transferible, conocida como borde Compton. La sección eficaz del efecto dependerá del número de electrones disponibles, lo que se refleja con una dependencia del número atómico del material y generalmente disminuye al aumentar la energía, siendo el efecto dominante en el rango de energías medias, tendencia que se puede apreciar en la figura 3.11. La expresión más aceptada para la sección eficaz de este efecto es la fórmula de Klein-Nishina, que establece las siguientes dependencias para el número atómico, la energía y el ángulo θ de dispersión del fotón:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_0^2 \left(\frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \right)^2 \left(\frac{1 + \cos^2\theta}{2} \right) \left(1 + \frac{\alpha^2(1 - \cos\theta)^2}{(1 + \cos\theta)^2 [1 + \alpha(1 - \cos\theta)]} \right), \quad (3.4)$$

donde $\alpha = h\nu_0/m_0c^2$ y r_0 es el radio clásico del electrón. En el límite de bajas energías ($\alpha \rightarrow 0$), la dispersión se aproxima al efecto Thomson, caracterizado por una distribución casi simétrica respecto al ángulo de $\theta = \pi/2$. A medida que aumenta la energía del fotón, la dispersión se vuelve marcadamente anisótropa, con una probabilidad creciente de dispersión hacia adelante y una reducción progresiva de la sección eficaz total, esta tendencia puede apreciarse en la figura 3.3.

Suponiendo que la energía cinética del electrón dispersado se deposita íntegramente en el detector, el resultado depende del destino del fotón gamma tras la interacción. Si el fotón dispersado es absorbido completamente en el propio detector, la energía registrada será la del fotón incidente, contribuyendo al pico de absorción completa. Por el contrario, si el fotón dispersado escapa, la energía detectada será menor y dará lugar a un espectro continuo. Este continuo Compton se extiende desde cero hasta un valor máximo, el borde Compton.

□ **Creación de pares:** es el proceso por el cual un fotón es absorbido por el campo coulombiano de un núcleo, dando lugar a un par electrón-positrón, esto puede ocurrir siempre que la energía del fotón sea superior a dos veces la masa del electrón ($E_\gamma > 2m_e c^2$). En caso de tener mayor energía el resto se cede en forma de energía cinética que

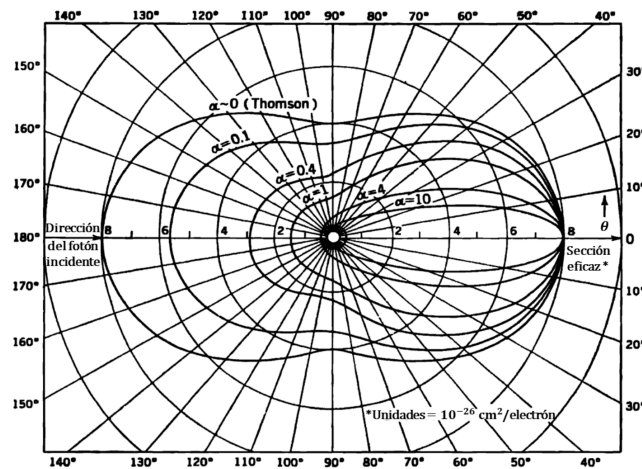


Figura 3.3: Gráfico polar para la sección eficaz de Klein-Nishina, número de fotones (incidentes desde la izquierda) dispersados por Compton en el ángulo de dispersión θ [8].

se comparte de forma igualitaria entre electrón y positrón.

$$E_{e^-} = E_{e^+} = \frac{E_\gamma}{2} \quad (3.5)$$

Se puede apreciar este comportamiento en la imagen 3.11, la producción de pares se inicia en la energía $E_\gamma = 1,022\text{MeV}$ y cobra importancia a medida que aumenta la energía del fotón incidente. En este caso, no existe una expresión sencilla para la sección eficaz. Se estima que varía proporcionalmente al cuadrado del número atómico y que aumenta considerablemente con la energía.

Cuando la energía cinética del par electrón–positrón se deposita íntegramente en el detector, el resultado depende del destino de los fotones de aniquilación de 511 keV. Si ambos son absorbidos, la señal corresponde a la energía del fotón incidente y contribuye al fotopico. Si solo uno escapa, aparece el pico de escape simple (511 keV por debajo del fotopico), mientras que si ambos escapan se genera el pico de escape doble (1022 keV por debajo). En los casos en que uno o ambos fotones interactúen parcialmente por dispersión Compton antes de escapar, se produce un continuo sobre el que se superponen los picos anteriores.

La importancia relativa de la absorción fotoeléctrica, la dispersión Compton y la producción de pares depende de la energía del fotón incidente y del número atómico del material. Tal como se muestra en la Figura 3.4, cada mecanismo domina en diferentes intervalos de energía, con regiones de transición en las que dos procesos son equiprobables.

❑ **Efectos de escape:** existen otros efectos de escape que modifican la respuesta del detector. Entre ellos, la fuga de electrones secundarios, que reduce la energía registrada en eventos de altas energías gamma, y el escape de fotones de bremsstrahlung, cuya probabilidad aumenta con la energía de los electrones y con el número atómico del material del detector. Estos procesos alteran ligeramente la forma del continuo, aunque no generan picos adicionales.

❑ **Efecto de los materiales circundantes:** los materiales que rodean a un detector gamma también influyen en su respuesta, ya que pueden generar radiación secundaria tras la interacción con los fotones incidentes. El encapsulado, la cámara de vacío o los blindajes, aunque necesarios para el funcionamiento y reducción del fondo, introducen efectos característicos en el espectro.

Uno de ellos es el pico de retrodispersión, observado en torno a 0,2–0,25 MeV. Este surge cuando los fotones gamma se dispersan hacia atrás en los materiales circundantes y posteriormente alcanzan el detector. La energía de dichos fotones, casi constante para ángulos de dispersión superiores a (110–120°), explican la posición característica

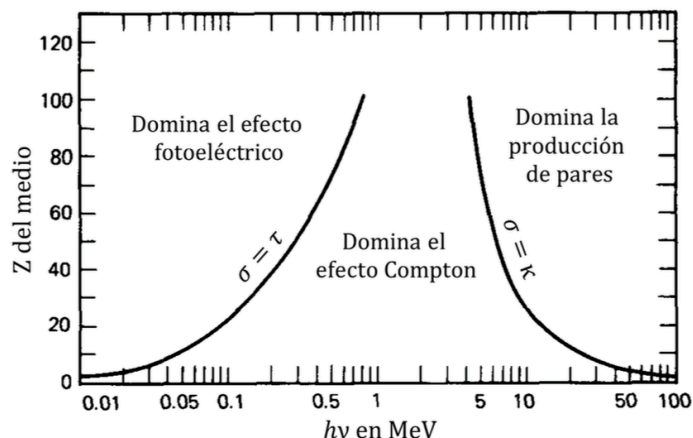


Figura 3.4: Interacción gamma según energía y número atómico [8].

de este pico.

La emisión de rayos X inducidos, generados por absorción fotoeléctrica en materiales de alto número atómico próximos al detector. Estos fotones, de energía relativamente elevada, pueden atravesar capas significativas de material y ser detectados, modificando la forma del espectro.

Finalmente, a energías primarias elevadas, la producción de pares en los materiales circundantes puede originar fotones de aniquilación. Estos, si alcanzan el detector, producen un pico en 511 keV que puede confundirse con el emitido por fuentes radiactivas de positrones.

3.1.2. Detectores de HPGe

El uso de detectores de germanio se inició en la década de 1960, se emplean en espectrometría gamma y resultan especialmente adecuados para la medida de bajas actividades, ya que ofrecen la mejor resolución en energía entre todos los tipos de detectores disponibles. Esta resolución en energía (R) se define como la capacidad del sistema para distinguir fotones de energías próximas, depende del número de portadores de información (N) como el inverso de la raíz; por lo tanto, a mayor número de portadores de información, mejor será la resolución; otra manera de expresarla es mediante el ancho total a mitad de altura ($FWHM$) de un pico característico en el espectro:

$$R = 2,35 \sqrt{\frac{F}{N}} = \frac{FWHM}{E}, \quad (3.6)$$

donde F es el factor de Fano, que representa la desviación de la estadística puramente de Poisson en el número de pares electrón-hueco generados por cada fotón incidente. En un proceso ideal, las fluctuaciones seguirían una distribución de Poisson ($F = 1$), pero en los semiconductores las correlaciones entre procesos de ionización reducen dichas fluctuaciones, dando lugar a valores típicos de $F \approx 0,1$ para el germanio. Este efecto mejora la resolución energética del detector al disminuir la dispersión estadística del número de cargas colectadas.

Además de la ventaja que supone la resolución en energía, el germanio, al ser un sólido semiconductor de alta densidad, permite construir detectores compactos que mantienen una elevada eficiencia, entendida como la fracción de fotones incidentes que producen una señal registrada en el espectro. Esta característica contrasta con los detectores gaseosos, que requieren volúmenes mucho mayores para alcanzar eficiencias comparables. También existen otros detectores sólidos, como los de centelleo, que presentan una mayor eficiencia debido al alto número atómico de los materiales centelleadores; sin embargo, su resolución en energía es inferior, lo que los hace menos apropiados para estudios como el presente. La menor resolución en energía de los detectores de centelleo, a pesar de su mayor eficiencia, se debe a que para generar un portador de información (como un fotoelectrón en el fotomultiplicador) se requiere una energía relativamente alta, del orden de $\omega \approx 100$ eV. En cambio, en los detectores semiconductores

de germanio de alta pureza (HPGe), la energía necesaria para crear un par electrón–hueco es mucho menor, aproximadamente $\omega = 3 \text{ eV}$. Esta diferencia implica que, para una misma energía depositada por la radiación incidente, en el germanio se generan muchos más portadores de carga, reduciendo las fluctuaciones estadísticas y mejorando así la resolución en energía, según la ecuación 3.6.

El HPGe es un material semiconductor compuesto por una red cristalina periódica que establece bandas de energía permitidas para los electrones dentro del sólido. Existen dos tipos de banda: la banda de valencia, que corresponde a electrones ligados; en el caso del germanio, estos electrones forman parte de los enlaces covalentes que conforman el cristal; y la banda de conducción, constituida por los electrones libres que viajan por la red. Estas bandas están separadas por el gap, un rango de energías prohibidas. El valor de este gap permite clasificar los materiales en aislantes ($E_g > 5\text{eV}$), semiconductores ($E_g \approx 1\text{eV}$) y conductores ($E_g \ll 1\text{eV}$). En ausencia de excitación térmica, un semiconductor tiene la banda de valencia llena y la de conducción completamente vacía, por lo que no presenta conducción eléctrica. Sin embargo, a temperatura ambiente, o en general a cualquier temperatura distinta de 0K, es posible que un electrón gane suficiente energía cinética proveniente de la excitación térmica para superar el gap y pasar a la banda de conducción. En este proceso, el electrón antes ligado crea una vacante a la que comúnmente se llama “hueco”, que representa una carga positiva (ausencia de carga negativa). El conjunto se denomina par electrón–hueco. La probabilidad de este suceso viene dada por la expresión:

$$P(T) = CT^{3/2} \exp\left(-\frac{E_g}{2K_B T}\right), \quad (3.7)$$

Es importante destacar la fuerte dependencia de la energía del gap, en el caso del germanio (Ge) el gap es de aproximadamente 0,7 eV; se trata de un valor bajo que permite la aparición de corriente térmica a temperatura ambiente, lo cual no es deseable en un detector. Por ello, siempre se refrigeran a la temperatura del nitrógeno líquido ($T=77 \text{ K}$). El proceso de creación de pares está en equilibrio con el de recombinación, por el cual un electrón y un hueco se combinan volviendo al estado inicial. Si se aplica un campo eléctrico, se rompe el equilibrio y se obtiene una corriente de electrones y otra de huecos en sentidos contrarios. El movimiento estaría compuesto por un término aleatorio debido al movimiento térmico que provoca una difusión y un término de deriva dependiente del campo. La velocidad de deriva está determinada, depende de la intensidad del campo eléctrico y es diferente para electrones y huecos; ambos contribuyen a la conductividad del material. Esta velocidad de deriva aumenta con la intensidad del campo eléctrico hasta llegar a un límite en el que se vuelve prácticamente independiente de la misma, alcanzando la llamada velocidad de saturación. En el caso de los detectores de Ge, es ventajoso trabajar en este régimen, ya que las velocidades del orden de 10 cm/s hacen posible colecciones de carga con tiempos inferiores a 10 ns, lo que los posiciona como uno de los detectores más rápidos.

En relación con las desventajas de los detectores basados en semiconductores, cabe destacar su fragilidad ante la radiación, la cual puede alterar la estructura de la red cristalina del germanio. La consecuencia de este daño es una variación del pulso en función de la posición, en la que se podría observar una cola de cuentas hacia la baja energía. En un detector de HPGe, los daños por radiación, si son leves, pueden repararse mediante un proceso de recocido del detector, elevando la temperatura del cristal de germanio a 120 °C durante 72 horas.

3.1.3. Mecanismo de detección

El proceso de detección se basa en la medida de la corriente generada en el semiconductor por la radiación incidente, cuando un fotón gamma interacciona en el volumen activo del detector, crea electrones mediante diferentes mecanismos: dispersión Compton, absorción fotoeléctrica o producción de pares; estos electrones de alta energía tienen la capacidad de ionizar el cristal creando grandes cantidades de pares electrón–hueco. El número de pares creados depende de la energía inicial de la radiación, la cantidad de energía media necesaria para crear un par, es decir, para que un electrón pase de la banda de valencia a conducción en el Ge es de 3eV mientras que la energía del gap es de aproximadamente 0,7eV; tal diferencia se debe a que la interacción de los electrones con la materia no siempre produce ionización; una parte de la energía se pierde a través de otros mecanismos, como la excitación de electrones sin ionización y la generación de fonones (vibraciones en la red cristalina). Por esta razón, el valor promedio de energía necesario para crear un par electrón–hueco en el germanio se establece en aproximadamente

$3eV$. El valor exacto depende de la temperatura, para Ge a 77K $\omega = 2,96eV$ [8]. El detector está fuertemente polarizado, de manera que la corriente de electrones generada se colecta rápidamente (del orden de 10ns), un buen detector debe ser capaz de colectarla por completo pues esta es la información que permite conocer la energía de la radiación incidente, finalmente la corriente pasa a la cadena electrónica donde la información se transforma en un histograma de energías.

3.1.4. Estructura de un detector de HPGe y cadena electrónica

El cristal de HPGe está constituido por un cilindro de germanio puro al que se implantan impurezas en sus extremos. Este proceso llamado dopado es común en semiconductores, consiste en la sustitución de un conjunto de átomos de germanio por otros de un grupo superior, usualmente pentavalente, o inferior, trivalente. De esta forma, se consigue aumentar el número de electrones libres en la red (impureza donadora o tipo N) o el número de huecos (impureza aceptadora o tipo P), respectivamente, no afecta a la estructura cristalina, mientras que cambia por completo sus propiedades eléctricas. El dopado en los extremos del cristal de germanio se realiza con boro para obtener un contacto tipo P y con litio para generar el contacto opuesto de tipo N, manteniendo la región intermedia prácticamente intrínseca. De esta manera se forma una estructura tipo PIN que se polariza en inversa mediante tensiones del orden de los 1000V para operar en la denominada zona de saturación. En este régimen, el campo eléctrico interno es suficientemente intenso como para barrer rápidamente todos los portadores de carga generados por la radiación, evitando su recombinación y garantizando que la señal inducida sea proporcional a la energía depositada. La región comprendida entre los electrodos, donde se produce la colección de las cargas, se denomina volumen activo del detector y constituye la zona donde tienen lugar los procesos de detección. Entre los componentes del detector destacan:

❑ **Cristal de germanio hiperpuro:** se encuentra encapsulado en un cilindro de aluminio de escaso grosor, habitualmente en vacío. La utilización de aluminio puede suponer un inconveniente para la detección de fotones gamma de muy baja energía.

❑ **Ventana:** zona destinada a la entrada de la radiación al cristal de germanio. Forma parte del criostato y tiene la función de mantener el vacío interno que aísla térmicamente el detector, permitiendo al mismo tiempo el paso de la radiación gamma. Para minimizar la atenuación de los fotones incidentes, se emplean materiales de número atómico bajo, como berilio o determinados polímeros, y se procura que el espesor sea el mínimo compatible con la resistencia mecánica necesaria para soportar el vacío. La elección del material y del grosor de la ventana depende del rango de energías que se pretenda medir: a bajas energías, incluso pequeños incrementos en el espesor pueden producir pérdidas significativas por absorción.

❑ **Criostato:** dado su bajo gap, el germanio necesita de refrigeración constante para evitar corrientes térmicas, el criostato es una varilla de cobre que hace contacto térmico entre nitrógeno líquido y el cristal de germanio, consiguiendo un equilibrio térmico. Normalmente el nitrógeno del tanque se termina evaporando, lo que requiere un control constante del detector.

Estos tres elementos constituyen la base del detector de germanio. Para obtener el espectro gamma es necesario emplear una cadena electrónica de procesamiento, la cual transforma y acondiciona las señales generadas por el detector. A continuación se expresan los pasos de dicha cadena:

1. **Preamplificador:** es un circuito compuesto por un condensador que se carga con la corriente de portadores procedente del detector. Esto genera un pulso con un tiempo de subida del orden de 100 ns y posteriormente se descarga a través de una resistencia, produciendo una caída exponencial con un tiempo característico que depende del circuito. Este sistema no es suficiente para el tratamiento de la señal, ya que estos tiempos son lentos en comparación con la colección de carga y, con frecuencia, los pulsos se apilan, dando el efecto de ser mayores de lo que en realidad son, efecto conocido como pile-up.

2. **Amplificador:** es un módulo capaz de transformarla en pulsos gaussianos o bipolares según se desee. Está compuesto por una serie de circuitos CR o RC según la forma que se le otorgue a la señal. La altura del pulso gaussiano guarda una relación proporcional con la carga colectada y esta con la energía del pulso incidente.
3. **Convertor analógico-digital:** transforma la señal analógica en pulsos lógicos de una altura determinada que mantienen la relación con la carga colectada. La altura de los pulsos se discretiza y se organiza en un número de canales elegible.
4. **Analizador multicanal:** ordena los canales según la altitud del pulso y añade una cuenta por cada vez que se mide un pulso de una determinada altura, generando un histograma de cuentas frente a canal que se puede relacionar con la energía posteriormente a través de una recta de calibrado. Estos histogramas se guardan en formatos compatibles con el software de análisis. En este trabajo se utilizará el software GALEA, ampliamente explicado en el capítulo 6.

A este resultado se le conoce como espectro gamma y mediante el estudio del área bajo los picos producidos por las emisiones de una energía determinada es posible conocer el radioisótopo al que pertenecen y su actividad.

3.1.5. Características generales de la respuesta de un detector de HPGe

❑ **Resolución energética:** constituye la principal ventaja del uso de HPGe para espectroscopía de fotones gamma, siendo la mejor entre todas las clases de detectores. Este hecho está relacionado con el coste energético de la creación del par electrón-hueco, como ya se discutió al inicio del capítulo. Sin embargo, no es el único factor que afecta a la resolución, ya que al observar un espectro, los picos presentan cierta anchura. Esto se debe a las variaciones existentes en la eficiencia de colección de carga y las contribuciones de ruido electrónico.

❑ **Resolución temporal:** es la capacidad del detector para distinguir eventos que ocurren en proximidad temporal. Esta capacidad está limitada por el tiempo de colección de carga, que incluso en régimen de saturación oscila entre 50 y 500 nanosegundos, dependiendo de la geometría y el punto de generación del par. Esto define una ventana temporal en la que todos los eventos que se produzcan serán registrados como uno solo, cuyo pulso reflejará la energía total medida. Este fenómeno es el origen de la suma en coincidencia, que se analizará con mayor detalle más adelante.

❑ **Eficiencia:** se define como la relación entre el número de fotones que depositan toda su energía en la zona activa del detector, ya sea en una o varias interacciones, y el número total de fotones emitidos. La eficiencia total de una medición es el producto de dos factores: la eficiencia intrínseca del detector, que es un valor constante, y la eficiencia geométrica. El objetivo primordial es maximizar la eficiencia. Establecer una dependencia para la eficiencia es complejo, pero en general, esta mejora al aumentar el tamaño del cristal detector y reducir la distancia entre el detector y la fuente.

❑ **Respuesta lineal:** la cantidad de portadores $N = E/\omega$ es proporcional a la energía incidente, y esta propiedad de proporcionalidad se respeta durante la cadena electrónica de manera que se puede construir una recta de calibrado que relacione el canal, es decir la altura del pulso, con la energía incidente. En el caso real pueden aparecer fenómenos no lineales haciendo necesario el uso de una serie de datos, a energías bien distribuidas, para construir una buena recta de calibrado.

❑ **Rango de energía:** es el intervalo en el que se puede obtener una calibración eficiencia-energía, es menor que el rango total de energías medidas en un espectro. Puede modificarse ajustando la ganancia, relación entre la señal de salida (canales) y la de entrada (energía depositada).

□ **Modelos:** la construcción de un detector de HPGe puede realizarse de diversas maneras, en función de la eficiencia y el rango de energías que se desee medir. Las geometrías más comunes son la planar, la semicoaxial y la coaxial. Los detectores planares están diseñados para medir bajas energías, del orden de cientos de eV hasta cientos de KeV, ya que su geometría implica un volumen activo más pequeño y, a altas energías, los fotones pueden atravesar el detector sin interactuar. Para un rango energético más amplio, desde los KeV hasta los MeV, se emplean los detectores coaxiales y semicoaxiales, que permiten la construcción de una zona activa extensa.

3.2. Análisis de espectros gamma

Un espectro gamma es un histograma de cuentas frente a canal (o energía una vez calibrado). Cada evento registrado suma una cuenta en el canal correspondiente a la amplitud de pulso; la repetición de eventos con la misma energía depositada genera un pico cuya posición fija esa energía en el espectro. El área del pico es por tanto proporcional al número de eventos, mientras que su altura depende de la resolución del sistema y del tiempo de adquisición. Los ajustes a la forma de estos picos en detectores de germanio está dada por la distribución estadística del proceso de colección de carga; para ello se utiliza una gaussiana modificada que permita un alargamiento en la zona de baja energía:

$$Y = \frac{Y_\tau}{2} \exp\left(\frac{1}{2} \frac{\sigma^2}{\tau^2} + \frac{E - E_\gamma}{\tau}\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{E - E_\gamma}{\sigma} + \frac{\sigma}{\tau}\right)\right], \quad (3.8)$$

donde E es la energía depositada, Y es la altura del pico para esa energía, E_γ la energía del centroide, Y_τ la altura del centroide, σ la anchura de la gaussiana, τ la anchura de la exponencial y $\operatorname{erfc}(x)$ la función error conjugada, $\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x)$.

3.2.1. Calibración de parámetros de medida en detector HPGe

□ **Calibración en energía:** es imprescindible calibrar la altura de los pulsos en términos de energía absoluta si se pretende identificar correctamente los picos presentes en el espectro. En muchas aplicaciones prácticas, los fotones gamma esperados son conocidos con antelación, por lo que la identificación de los picos característicos puede realizarse de forma directa mediante inspección. La calibración energética se lleva a cabo estableciendo varios puntos de referencia distribuidos a lo largo del rango de interés. A partir de ellos, se construye una curva de calibración que relaciona la energía con el número de canal del sistema multicanal. Este ajuste suele realizarse mediante un polinomio obtenido por mínimos cuadrados de la forma: $E_i = \sum(a_i C_i)$, donde E_i es la energía que corresponde al canal C_i . En el intervalo comprendido aproximadamente entre 20 keV y 2 MeV, la respuesta de los detectores HPGe es prácticamente lineal. Para asegurar la reproducibilidad de la calibración, la fuente radiactiva debe colocarse siempre en la misma posición y con la misma geometría que en las medidas posteriores, de modo que el haz de fotones gamma incida sobre el detector desde idéntica dirección. Para asegurarlo se dispone de una pieza llamada acomodador, que inmoviliza la geometría de medida asegurando que su posición se mantenga constante a lo largo de la medida y para todas las medidas siguientes.

□ **Calibración de la resolución:** determina la precisión con la que pueden ajustarse e identificarse los picos en un espectro. Esta calibración se realiza utilizando aquellos picos que presentan mejor estadística, es decir, con mayor número de cuentas bajo su área, lo que garantiza una estimación más fiable de la anchura. Una vez determinada la resolución en distintos valores de energía dentro del rango de interés, se construye una curva de calibración que relaciona la resolución, expresada habitualmente como el ancho completo a media altura (FWHM, *Full Width at Half Maximum*), con la energía de emisión o con el número de canal correspondiente. Para este ajuste, al igual que en la calibración en energía, suele emplearse un polinomio obtenido mediante mínimos cuadrados: $FWHM_i^2 = \sum(b_i E_i)$, donde FWHM es la anchura del pico de energía E_i que posee el centroide en el canal C_i . En la práctica, el comportamiento del cuadrado de la resolución frente a la energía es aproximadamente lineal en el intervalo de trabajo típico de los detectores HPGe, comprendido entre unos 20 keV y 2 MeV.

□ **Calibración de la eficiencia:** la eficiencia intrínseca de los detectores de germanio es cercana al 100 % en el rango de bajas energías (desde unos pocos keV hasta aproximadamente 100 keV), donde predomina la absorción fotoeléctrica. Entre 100 keV y 1 MeV, la mayor parte de los fotones gamma aún interactúan en el cristal, aunque una fracción lo hace mediante dispersión Compton. A energías superiores a 1 MeV, una proporción significativa de fotones puede atravesar el detector sin interacción, lo que provoca una disminución más acusada de la eficiencia de pico. Este comportamiento quedaba descrito en la figura 3.4.

La calibración de la eficiencia se realiza periódicamente empleando fuentes radiactivas patrón, preparadas con gran precisión por laboratorios de referencia. Estas calibraciones se llevan a cabo bajo las mismas condiciones geométricas de medida, utilizando radionucleidos que cubren un rango amplio de energías. El ^{226}Ra en equilibrio con sus descendientes (186–2448 keV) y el ^{152}Eu (semivida de 13 años, múltiples transiciones gamma) son fuentes de uso frecuente. En aquellas fuentes que emiten varias radiaciones en coincidencia, pueden producirse efectos de suma-coincidencia, en los que dos fotones (o rayos X característicos o bremsstrahlung) interaccionan simultáneamente en el detector, generando pulsos que no corresponden a ninguno de los picos de energía completa. Este efecto es más relevante en detectores con ventanas delgadas sensibles a radiaciones de baja energía, aunque puede mitigarse reduciendo el ángulo sólido de detección.

Como alternativa a las calibraciones experimentales, que están sujetas a la preparación de fuentes patrón y requieren tiempo de medida del detector, se recurre a simulaciones Monte Carlo, en este trabajo se utilizan calibraciones de eficiencia generadas con Geant4 por el equipo del LRI-D, que permiten modelar tanto el detector como la geometría experimental, la composición química de la matriz y calcular la eficiencia absoluta en función de la energía y las condiciones de medida. No obstante, es conveniente validar el modelo mediante comparaciones con medidas experimentales para garantizar que reproduce fielmente el comportamiento del sistema real.

3.2.2. Picos de un espectro gamma

Según el mecanismo por el que se produzca el depósito de energía del fotón gamma en el detector, se pueden distinguir varios tipos de estructuras en el espectro.

□ **Pico de absorción completa:** también denominado fotopico, se produce cuando se deposita la totalidad de la energía del fotón gamma en el detector, lo que puede ocurrir tras una o varias interacciones. Estos picos son los más deseables, ya que, a través de su área y energía, es posible determinar el radionúclido y su actividad. Suelen encontrarse por encima de un continuo de cuentas de fondo.

□ **Pico de escape:** en este caso parte de la energía del fotón gamma incidente se pierde, ya que es transferida a otras partículas que escapan del detector. Según el proceso pueden clasificarse en: pico de escape de RX, pico de escape simple, pico de escape doble.

- Pico de escape de RX: se produce tras una absorción fotoeléctrica, al ocurrir la reorganización electrónica se emite un RX característico del Ge que escapa del detector sin ser reabsorbido; por lo que la cuenta medida es de energía: $E_{dep} = E_{\gamma} - E_{XGe}$.
- Picos de escape simple y doble: están relacionados con el proceso de creación de pares, en este proceso se produce un electrón que se colecta y un positrón que, al interactuar con la materia del detector, se aniquila en reposo, dando lugar a dos fotones de 511 keV. Estos fotones pueden ser absorbidos por el Ge, en cuyo caso se detectaría un pico de absorción completa. Por el contrario, puede escapar uno de ellos, produciendo un pico de escape simple ($E_{dep} = E_{\gamma} - 511\text{KeV}$), o ambos, generando un pico de escape doble ($E_{dep} = E_{\gamma} - 1,022\text{MeV}$).

□ **Pico suma:** si en un intervalo de tiempo inferior al tiempo de respuesta del detector llegan varios fotones gamma, la energía depositada es la suma de las energías de las emisiones.

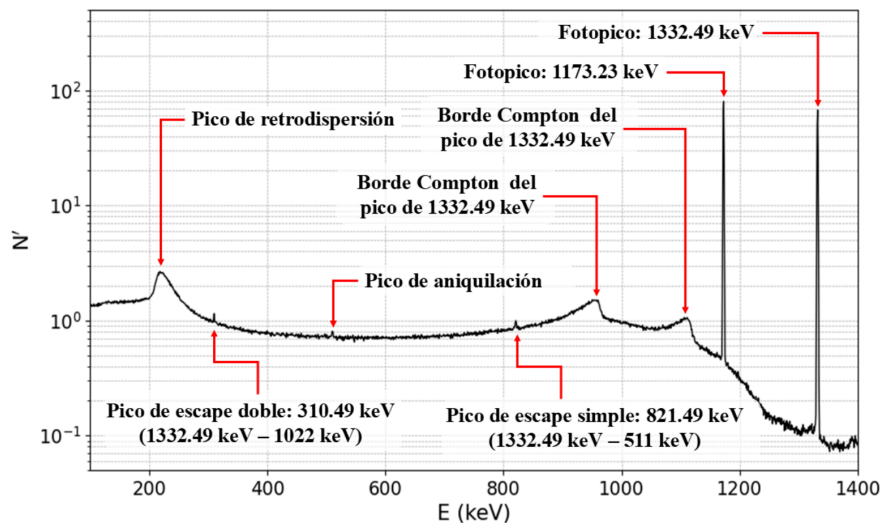


Figura 3.5: Ejemplo, espectro gamma de ^{60}Co [50].

❑ **Pico de aniquilación (511 KeV):** esta emisión es consecuencia de la aniquilación en reposo de positrones, proceso en el cual se emiten dos fotones gamma colineales de 511 keV. Su detección se produce principalmente en presencia de un radionucleido emisor β^+ . No obstante, también puede originarse por radiación cósmica de alta energía o por fotones resultantes de la creación de pares, que pueden registrarse como eventos no relacionados con la fuente principal. En este caso de estudio el pico de 511 keV se considera parte del fondo.

❑ **Pico de retrodispersión:** previamente mencionado, surge cuando los fotones gamma se dispersan hacia atrás en los materiales circundantes y posteriormente alcanzan el detector.

Todas estas emisiones, junto con las contribuciones al fondo, se recogen en la figura 3.5. En la siguiente sección se analizan dichas contribuciones y las estrategias previstas para mitigarlas.

3.2.3. Fuentes de fondo y estrategias de blindaje en detector de HPGe para espectrometría de muy bajo fondo

Las emisiones que contribuyen al fondo se pueden clasificar en varios grupos, por una parte están los procesos en los que no se deposita la totalidad de la energía pero son discretos: picos de escape; también existen las contribuciones continuas: fondo Compton; y las contribuciones debidas a factores externos.

❑ **Picos de escape:** estos picos, ya descritos en la sección anterior, no corresponden a líneas gamma reales de la muestra sino a la respuesta instrumental del sistema, por lo que constituyen fondo: pueden solaparse con líneas débiles de interés, sesgar el conteo neto de picos y complicar la identificación y ajuste del espectro. Su intensidad depende de la geometría y tamaño del cristal, cuanto mayor sea el volumen activo del detector, menor probabilidad de escape; así como de la configuración de blindaje y coincidencias.

❑ **Fondo Compton:** es una contribución continua al fondo, el llamado continuo Compton se origina principalmente cuando los fotones gamma sufren una o varias dispersiones dentro del detector y el fotón dispersado escapa sin depositar toda su energía. Para reducir este fondo, se emplean sistemas de supresión Compton (o anti-Compton), que consisten en un detector anular colocado alrededor del cristal principal. Este detector externo registra los fotones que escapan y permite descartar de forma coincidente dichos eventos, eliminando así su contribución al continuo sin afectar a los que forman parte del fotopico. El detector circundante debe ser lo suficientemente gran-

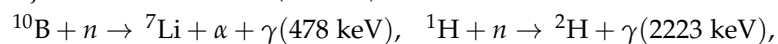
de y contar con alta eficiencia para interceptar la mayoría de los fotones emitidos. Los materiales más utilizados son los centelleadores inorgánicos, especialmente el NaI(Tl) y BGO por su ya discutida mayor eficiencia de detección. Este último, gracias a su mayor densidad y número atómico, permite construir sistemas más compactos con eficiencias comparables. Además, los sistemas anti-Compton también atenúan los picos de escape simple y doble, al suprimir eventos asociados a la producción de pares seguida de la fuga de fotones de aniquilación. No obstante, presentan ciertas limitaciones. En fuentes radiactivas con esquemas de desintegración complejos, donde varios fotones gamma se emiten en cascada y pueden interaccionar en ambos detectores, los sistemas anti-Compton pueden provocar el rechazo de eventos legítimos. Esto se traduce en una supresión no deseada de algunos fotopicos, lo que debe tenerse en cuenta en su aplicación [8].

□ **Factores externos:** es posible registrar emisiones que no provienen directamente de la muestra analizada, sino de fuentes externas o del propio sistema de detección.

- **Radionúclidos presentes en el entorno inmediato del detector:** como el ^{40}K o los integrantes de las cadenas naturales de desintegración del ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th , que forman parte del fondo natural. También pueden encontrarse en los propios materiales del blindaje y la estructura de soporte, lo que hace imprescindible el empleo de materiales no contaminados y plomo antiguo de baja actividad, con el fin de minimizar estas contribuciones.
- **Radiación cosmogénica:** compuesta principalmente por partículas cargadas de alta energía capaces de depositar parte de su energía en el cristal de germanio o inducir reacciones nucleares en los materiales circundantes.
 - **Productos cosmogénicos:** como el ^7Be , este radionúclido se produce en la atmósfera por espalación cósmica y puede depositarse en superficies a través de polvo, aerosoles o en materiales expuestos al nivel del suelo. Aporta una línea característica en ~ 478 keV debido a su decaimiento por captura electrónica a $^7\text{Li}^*$, según la reacción.



- **Muones:** la radiación cósmica, y en particular los muones, constituyen la principal fuente de fondo, se puede apreciar en la figura 3.6 un esquema de la composición de los rayos cósmicos y como afectan al detector. Para reducir esta señal se emplean blindajes activos basados en detectores plásticos de centelleo. Este tipo de blindaje se puede encontrar en el detector Mazinger, que se describe en el capítulo siguiente.
- **Neutrones:** representan otra contribución crítica al fondo. Procedentes tanto de la radiación cósmica como de la radiactividad natural, pueden interaccionar con el germanio del detector o con los materiales de blindaje mediante procesos de captura neutrónica y dispersión inelástica, generando transiciones características que aparecen en el espectro gamma. En las Tablas 3.1 y 3.2 se presentan algunas de las reacciones más relevantes junto con las energías asociadas, que constituyen picos característicos en los espectros de fondo de los detectores HPGe [45]. La presencia de estas líneas características obliga a emplear materiales moderadores y absorbentes de neutrones para reducir su intensidad en el espectro. Se utilizan principalmente planchas de polietileno (PE), frecuentemente dopado con boro (^{10}B) o litio (^6Li), debido a la elevada sección eficaz de captura neutrónica de estos elementos. Algunas de estas reacciones generan radiación gamma secundaria, que pueden contribuir al fondo, aunque de forma limitada si se combinan con blindajes interiores densos (Fe o Pb).



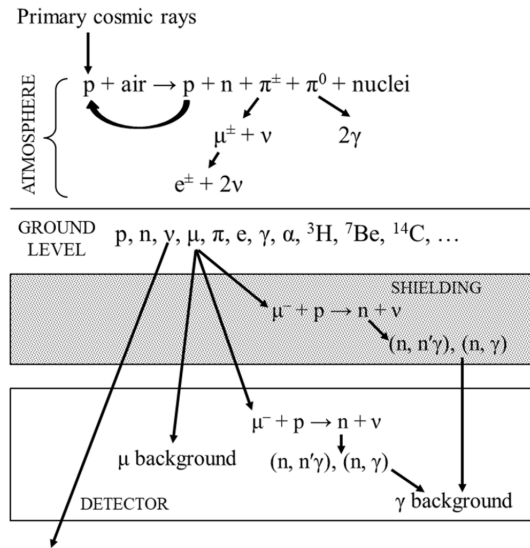


Figura 3.6: La composición de los rayos cósmicos y las interacciones con la atmósfera, los materiales de blindaje y en el detector de germanio [46].

Isótopo	Reacción	Energías γ (keV)
^{70}Ge	$(n, n'\gamma)^{70}\text{Ge}$	1039.5
^{73}Ge	$(n, n'\gamma)^{73}\text{Ge}$	53.4
^{74}Ge	$(n, n'\gamma)^{74}\text{Ge}$	595.8, 1204.2, 1463.8, 1489.4, 1756.7, 2402.7
^{76}Ge	$(n, n'\gamma)^{76}\text{Ge}$	562.9, 1108.4
^{71}Ge	$(n, n\alpha)^{72}\text{Ge}$	691.4
^{70}Ge	$(n, \gamma)^{71}\text{Ge}$	708.2
^{73}Ge	$(n, \gamma)^{74}\text{Ge}$	2353.5
^{74}Ge	$(n, \gamma)^{75}\text{Ge}$	139.7
^{76}Ge	$(n, \gamma)^{77}\text{Ge}$	1067.7, 1353.9, 1446.9

Cuadro 3.1: Reacciones neutrónicas en isótopos de Ge y energías γ características asociadas [45].

Isótopo	Reacción	Energías γ (keV)
^{63}Cu	$(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	212.4, 1165.2, 1630.1, 1670.9, 1790.3, 2291.4, 2838.2
^{65}Cu	$(n, \gamma)^{66}\text{Cu}$	89.2, 237.8, 1985.7, 2144.2, 2411.6, 2478.2, 2619.1, 2806.9
^{63}Cu	$(n, n'\gamma)^{63}\text{Cu}$	955.0, 962.1, 1245.2, 1861.3, 1927.2, 2512.0, 2696.6
^{65}Cu	$(n, n'\gamma)^{65}\text{Cu}$	770.6, 924.5, 978.8, 1261.0, 1832.0, 2862.7
^{204}Pb	$(n, \gamma)^{205}\text{Pb}$	1511.0, 1656.2
^{206}Pb	$(n, n'\gamma)^{206}\text{Pb}$	537.5, 803.1, 1620.3, 2682.0
^{207}Pb	$(n, n'\gamma)^{207}\text{Pb}$	569.7, 2736.5
^{208}Pb	$(n, n'\gamma)^{208}\text{Pb}$	583.2, 860.6, 1050.9, 2322.7
^{54}Fe	$(n, \gamma)^{55}\text{Fe}$	1917.9
^{56}Fe	$(n, \gamma)^{57}\text{Fe}$	2202.7
^{54}Fe	$(n, n'\gamma)^{54}\text{Fe}$	1129.9, 1153.1
^{56}Fe	$(n, n'\gamma)^{56}\text{Fe}$	846.8, 1303.4, 1335.4

Cuadro 3.2: Principales reacciones neutrónicas en materiales de blindaje (Cu, Pb y Fe) y energías γ asociadas [45].

- **Rayos X característicos generados en el blindaje interno:** los fotones gamma incidentes pueden ser absor-

bidos fotoeléctricamente en el blindaje, dejando huecos en la capa K del material. La relajación electrónica produce rayos X característicos del propio blindaje (por ejemplo, en Pb: $K_{\alpha} \approx 75$ keV y $K_{\beta} \approx 85$ keV) que, si no se reabsorben en el forro interior, pueden alcanzar el cristal y generar señales que no provienen de la muestra.

- **Ruido electrónico del sistema:** puede introducir señales espurias en el espectro, en forma de pulsos fantasma sin interacción real.
- **Radionúclidos de origen antropogénico:** como ^{137}Cs y ^{60}Co , aportan líneas características que no provienen de la muestra (^{137}Cs a 661,7 keV; ^{60}Co a 1173 y 1332 keV), elevando el fondo y pudiendo solaparse con señales débiles de interés. Suelen originarse por contaminación ambiental o residual, activación en aceros y soldaduras, o materiales del entorno no cribados.

Con el objetivo de minimizar las contribuciones anteriores, se emplean blindajes pasivos basados en la absorción y atenuación de la radiación de fondo y blindajes activos que consisten en vetos o supresión de cuentas por coincidencia. A continuación se resumen y se vinculan con las fuentes que mitigan.

□ **Blindaje pasivo:** consiste en una envolvente que recubre el detector y está formada por materiales de alta densidad capaces de atenuar la radiación gamma de origen ambiental. En la práctica se emplean principalmente hierro y plomo por su estabilidad y elevado número atómico. Aunque el plomo contiene isótopos con actividad intrínseca, el único relevante por su semivida larga es el ^{210}Pb ; por ello, los blindajes se fabrican con plomo antiguo o de baja actividad para asegurar que la mayor parte del ^{210}Pb haya decaído. En experimentos de muy alta precisión se ha llegado a utilizar plomo arqueológico, como en CUORE, donde se instaló un blindaje de plomo romano [48]. Para suprimir las líneas de rayos X característicos generadas en el blindaje denso (por ejemplo, las transiciones K del plomo en el rango 75–85 keV), se dispone en el interior una fina capa de cobre que absorbe estos fotones antes de que alcancen el cristal, reduciendo así picos espurios a bajas energías y mejorando la relación pico–continuo. Adicionalmente, la señal de fondo asociada a radionúclidos gaseosos naturales, en particular el ^{222}Rn , se mitiga mediante la inyección de un flujo constante de nitrógeno seco en el interior de la cámara, que desplaza el radón y limita su deposición sobre superficies frías del detector y del blindaje. Por último, la contribución de la radiación cósmica se reduce soterrando el laboratorio o incrementando la sobrecarga de material: en el caso del LRI-D, la masa de hormigón situada por encima actúa como blindaje natural, disminuyendo el flujo de muones y, con ello, la producción de secundarios que podrían contribuir al fondo del espectro.

□ **Blindaje activo:** es un sistema de anticoincidencia que rodea al detector HPGe con detectores auxiliares y electrónica de discriminación temporal para rechazar eventos identificados como fondo. Operativamente, cada detector (el HPGe y los auxiliares) genera pulsos que se comparan dentro de una ventana de coincidencia Δt definida (típicamente decenas de ns a algunos μs , según el centelleador y la cadena electrónica). Si un depósito de energía en el HPGe ocurre en coincidencia con una señal en el blindaje activo, el evento se marca como no deseado y se elimina, este proceso se denomina anticoincidencia; conservándose únicamente los eventos del detector de HPGe sin señal simultánea en el entorno. Para estabilizar el sistema se fijan umbrales energéticos en los detectores auxiliares (evitando ruido y γ ambientales en el veto muónico) y se alinean los retardos electrónicos para centrar la distribución temporal de las coincidencias reales dentro de Δt . En la práctica se distinguen dos configuraciones principales.

- **Veto muónico:** se utilizan paneles de centelleo plástico de gran área y respuesta rápida, en el techo y los laterales del espectrómetro. La lógica de veto descarta los pulsos del detector de HPGe que coinciden con el paso de muones o sus secundarios, reduciendo directamente la tasa de cuentas de fondo.
- **Anillo anti-Compton:** se rodea el detector HPGe con un anillo de centelleador inorgánico (NaI(Tl), BGO, etc.) diseñado para detectar el fotón que escapa tras una dispersión Compton en el germanio; la coincidencia con el anillo identifica depósitos parciales y se rechaza, suprimiendo el continuo Compton y atenuando los picos de escape.

Se utiliza centelleo plástico para el veto muónico y centelleadores inorgánicos para la supresión anti-Compton porque responden mejor a las exigencias físicas de cada función. Los muones son partículas mínimamente ionizan-

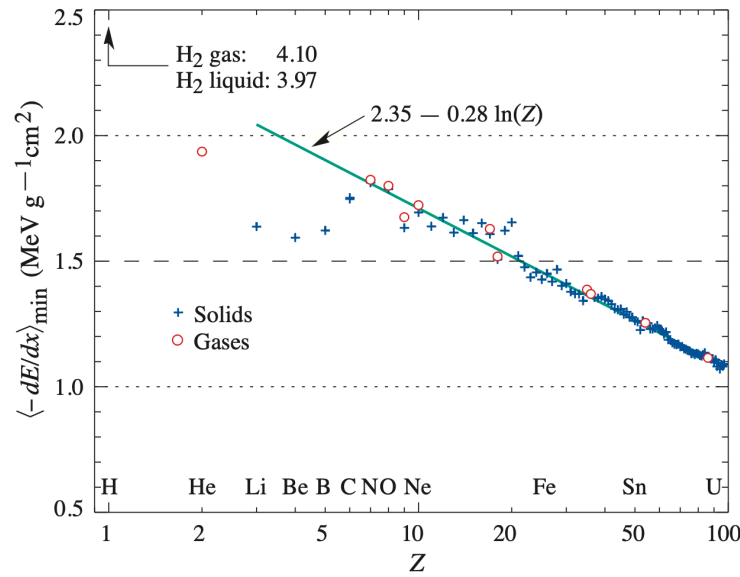


Figura 3.7: Mínimo poder de frenado másico $\langle -dE/dx \rangle_{\min}$ para partículas cargadas relativistas en función del número atómico Z del material. Los plásticos orgánicos no aparecen como punto único, pero por su composición C–H ($Z_{\text{ef}} \approx 5-6$) se sitúan próximo al carbono ($Z = 6$), con $\langle -dE/dx \rangle_{\min} \approx 1,8-2,0 \text{ MeV g}^{-1} \text{ cm}^2$. Para un centelleador plástico típico ($\rho \approx 1,03 \text{ g cm}^{-3}$) esto corresponde a $\sim 2 \text{ MeV/cm}$. La recta $2,35 - 0,28 \ln Z$ ilustra la dependencia aproximada en el mínimo; se muestran también los valores atípicos del hidrógeno (gas y líquido) [22].

tes (MIP), con una pérdida de energía casi constante $dE/dx \sim 2 \text{ MeV cm}^{-1}$ en plásticos, datos en la imagen 3.7. El poder de frenado $\langle -dE/dx \rangle$ (en MeV cm^{-1}) es la pérdida media de energía por unidad de longitud que sufre una partícula cargada al atravesar un material. Está dominado por los procesos de ionización y excitación electrónicas y, según la fórmula de Bethe–Bloch⁴ decrece aproximadamente como $1/\beta^2$ al aumentar la velocidad ($\beta = v/c$), mientras que el término logarítmico crece lentamente con $\beta\gamma$. La competencia de ambos produce un mínimo alrededor de $\beta\gamma \sim 3-4$ (las llamadas MIP); a mayores energías aparece una subida relativista suavizada por la corrección de densidad, que limita el crecimiento. Por lo tanto si los muones relativistas atraviesan unos pocos centímetros de material plástico generan señales intensas y muy rápidas con tiempos de decaimiento de pocos ns, ideales para definir ventanas de coincidencia estrechas, reducir coincidencias accidentales y cubrir grandes áreas a bajo coste. Además, el plástico presenta bajo Z_{ef} y densidad, por lo que es poco sensible a la radiación gamma, minimizando falsos vetos por radiación ambiental.

En cambio, para detectar los fotones que escapan del detector de HPGe tras una dispersión Compton conviene maximizar la probabilidad de interacción fotoeléctrica/Compton/producción de pares y la atenuación por unidad de espesor: los cristales inorgánicos, de alto Z y gran densidad, proporcionan elevada eficiencia a energías típicas para la radiación gamma ambiental, permiten geometrías anulares compactas con gran cobertura sólida y generan suficiente luz para una lógica de anticoincidencia estable. El NaI(Tl) presenta muy alto rendimiento de luz, aunque higroscópico [23]; BGO más denso y de mayor Z , más compacto pero con menor luz [24]. Aunque sus constantes de decaimiento son más lentas que las del plástico, resultan compatibles con las ventanas temporales del detector HPGe.

⁴Formula de Bethe-Bloch:

$$-\left\langle \frac{dE}{dx} \right\rangle = \frac{4\pi}{m_e c^2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{z^2}{\beta^2} \frac{ZN_A}{A} \left[\frac{1}{2} \ln \left(\frac{2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 T_{\text{máx}}}{I^2} \right) - \beta^2 - \frac{\delta(\beta\gamma)}{2} \right],$$

donde $\beta = v/c$, $\gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2}$, z es la carga de la partícula, Z/A son el número atómico y másico del medio. m_e es la masa en reposo del electrón, e la unidad fundamental de carga. I es el potencial medio de excitación e ionización del material absorbente y normalmente se trata como un parámetro determinado experimentalmente para cada elemento, [8].

3.2.4. Cálculo de la actividad de un radionúclido a través del análisis de su espectro gamma

La actividad A asociada a una emisión gamma de determinada energía se obtiene a partir del área neta del pico de absorción completa medido en el espectro, previamente calibrado en energía. La relación empleada es:

$$A = \frac{N}{\epsilon(E_\gamma) I(E_\gamma) t}, \quad (3.9)$$

donde: N es el número de cuentas netas del pico (es el único término que se extrae directamente del espectro). Los picos fotoeléctricos en los espectros gamma presentan, en general, una forma aproximadamente gaussiana, resultado de la combinación de numerosos procesos aleatorios en la generación y recolección de cargas en el detector HPGe. Aunque el número de eventos individuales sigue una estadística de Poisson⁵, para valores muy grandes de N esta distribución puede aproximarse adecuadamente por una gaussiana⁶, lo que simplifica el tratamiento analítico y el ajuste de los picos.

El área neta N se obtiene entonces integrando la función gaussiana ajustada al pico, tras la sustracción del fondo continuo local. Cuando procede, N debe corregirse por solapamientos de picos, suma en coincidencia, auto-absorción en la muestra y decaimiento durante la medida. $\epsilon(E_\gamma)$ es la eficiencia absoluta de pico total del sistema a la energía E_γ (incluye geometría, atenuaciones y eficiencia intrínseca del HPGe). Es necesario determinar esta eficiencia mediante la calibración en eficiencia del detector, que puede ser experimental o Monte Carlo, como ya se revisa anteriormente. $I(E_\gamma)$ es la intensidad de emisión, probabilidad por desintegración, o *branching ratio* de la línea considerada; se toma de bases de datos nucleares validadas. En este trabajo se ha obtenido a través de la plataforma *LARA-web* [25]. t es el tiempo de adquisición asociado al espectro, es importante medir durante un tiempo suficiente que permita obtener una buena estadística, es decir un número alto de cuentas en cada pico de interés, lo que a su vez distinguirlos bien unos de otros y una correcta formación de los mismos.

□ Cálculo de incertidumbres

Bajo estadística de conteo gaussiana, la incertidumbre en el número de cuentas en el pico N se calcula como:

$$\sigma(N) = \sqrt{N}. \quad (3.10)$$

Ya que N es la mejor aproximación experimental disponible que determina el número medio de desintegraciones. Por tanto, la incertidumbre relativa del área del pico es:

$$\epsilon_r(N) \equiv \frac{\sigma(N)}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}}. \quad (3.11)$$

A la vista de la ecuación (3.9), queda claro que la incertidumbre de A está afectada por la incertidumbre de N , de modo que cuanto mayor sea el número de cuentas de un pico, menor será la incertidumbre relativa de N y, en consecuencia, menor será también la incertidumbre relativa de la actividad.

⁵La distribución de Poisson describe la probabilidad de observar k sucesos independientes en un intervalo dado y se expresa como:

$P(k; \alpha) = \frac{\alpha^k e^{-\alpha}}{k!}$, donde α es el número medio de sucesos. En el caso de las desintegraciones radiactivas, α representa el número promedio de desintegraciones ocurridas en un tiempo t . Si inicialmente hay N_0 núcleos idénticos e independientes, la probabilidad de que un núcleo se desintegre en un intervalo t viene dada por $p = 1 - e^{-\lambda t}$ donde λ es la constante de desintegración. El número medio de desintegraciones en ese tiempo t será $\alpha = N_0 p$. En realidad el número de núcleos desintegrados K en ese tiempo sigue una distribución binomial: $P(K = k) = \binom{N_0}{k} p^k (1-p)^{N_0-k}$. Normalmente se trabaja en el límite $N_0 \gg K$ con $p \ll 1$, manteniendo $\alpha = N_0 p$ constante, donde la binomial puede aproximarse por una distribución de Poisson [8].

⁶La distribución gaussiana (o normal) tiene la forma: $f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left[-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right]$, donde μ es la media y σ la desviación estándar.

Para valores grandes de N , siempre que se cumpla que α es suficientemente grande ($\alpha \gtrsim 10$), la distribución de Poisson puede aproximarse mediante una gaussiana con media $\mu = \alpha$ y desviación estándar $\sigma = \sqrt{\alpha}$. Esta aproximación es válida porque, para grandes números de cuentas, las fluctuaciones relativas $\sigma/\mu = 1/\sqrt{\alpha}$ son pequeñas y la distribución tiende a ser simétrica [8].

□ Actividad mínima detectable (AMD)

Una vez descrito el cálculo de actividades es conveniente determinar que no todos los valores de actividad son medibles pues siempre se tiene una contribución no nula de fondo, aún utilizando todos los blindajes descritos en la sección anterior, que puede hacer imposible la distinción de picos con baja estadística. Es posible definir una cota mínima de actividad que es diferente para cada energía y depende de el número de cuentas de fondo para el pico dado y de su eficiencia como:

$$\text{AMD}(E) \simeq \frac{\sqrt{\text{Fondo}(E)}}{\text{Eficiencia}(E)}, \quad (3.12)$$

que refleja que la sensibilidad mejora al disminuir el fondo y al aumentar la eficiencia absoluta de pico total $\epsilon(E)$. Para uso riguroso suele emplearse el criterio de Currie, que en términos de cuentas da

$$\text{AMD}(E) = \frac{L_D}{\epsilon(E) I(E) t}, \quad L_D \approx 2,71 + 4,65 \sqrt{B_s},$$

donde $I(E)$ es la intensidad de emisión de la línea, t el tiempo de medida y B_s las cuentas de fondo esperadas en la energía E durante ese t [26]. La expresión aproximada anterior se recupera cuando I y t son constantes de la configuración y domina el término $\propto \sqrt{B_s}$.

3.2.5. Correcciones por suma en coincidencia (TSC)

En espectrometría gamma con detectores HPGe, las coincidencias por suma no aleatoria (TSC, por sus siglas en inglés) constituyen un factor importante en la determinación de la actividad de núclidos que emiten varios fotones en cascada. Este fenómeno provoca la aparición de picos suma en el espectro, con la consiguiente pérdida de cuentas en los picos individuales (*Summing Out*) o, por el contrario, la incorporación de cuentas adicionales (*Adding Up*).

Existen diferentes enfoques para estimar los factores de corrección C_s : los métodos matemáticos, basados en fórmulas que utilizan las probabilidades de emisión y la eficiencia del detector, aunque se vuelven muy complejos en esquemas de desintegración extensos o en sistemas multidetector; los métodos experimentales, que emplean patrones de calibración para obtener directamente los factores de corrección, pero que están limitados a las emisiones de los radionúclidos contenidos en dichos estándares; y las simulaciones Monte Carlo, que permiten modelar tanto la eficiencia como el fenómeno de coincidencia, proporcionando factores de corrección precisos siempre que el modelo sea validado con resultados experimentales. La obtención de estos factores resulta especialmente complicada en el caso de radionúclidos naturales, debido a sus complejos esquemas de desintegración, pero es indispensable para garantizar una cuantificación fiable de su actividad. En este trabajo se utilizarán los resultados para los factores TSC verificados para el equipo BEGe calculados por el equipo del LRI-D según el método descrito en el trabajo [47].

3.3. Fundamentos de la espectrometría de masas con acelerador (AMS)

La espectrometría de masas con acelerador (AMS) es una técnica de recuento de núcleos atómicos mediante un acelerador de partículas. Fue propuesta por primera vez en 1939 por Alvarez y Cornog [54]. Sin embargo, la AMS en su forma actual surge en 1977, planteándose como una solución a las limitaciones de las técnicas radiométricas convencionales para la datación por ^{14}C [55]. Estas técnicas se basan en la medición de la actividad de ^{14}C mediante detectores de tipo contador proporcional o centelleo líquido. Si bien detectar partículas β es sencillo, el problema reside en las bajas actividades de muestras antiguas, que requieren en ocasiones tiempos de medición de semanas o meses. Además, se necesitan muestras más masivas con el objetivo de aumentar la actividad que contienen. La ventaja del AMS frente a los detectores al uso es que se mide el número de núcleos de ^{14}C presentes, no sus desintegraciones. Esto permite obtener estadísticas comparables en tiempos de horas y con masas de miligramos o incluso microgramos en sólidos, y pocos mililitros en líquidos [53].

La espectrometría de masas con acelerador se diferencia de la espectrometría de masas convencional en varios aspectos. En primer lugar, permite la eliminación del fondo molecular y la discriminación de isóbaros (por ejemplo,

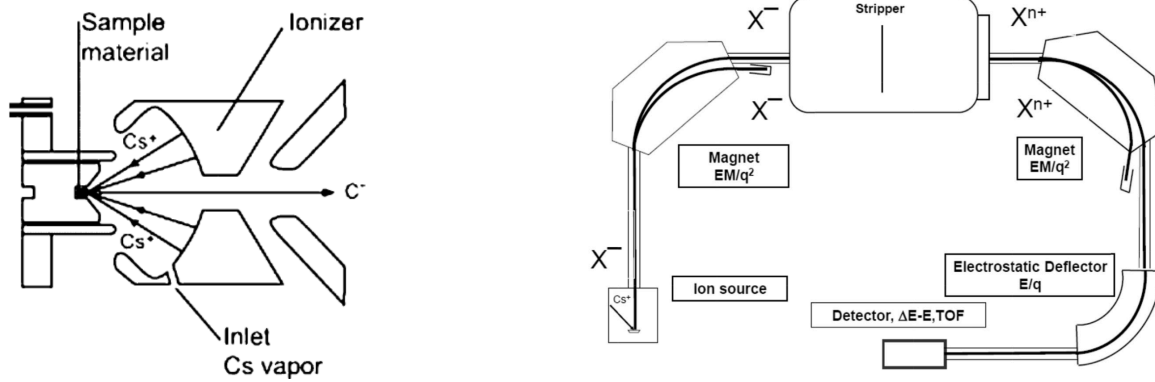


Figura 3.8: Izquierda esquema de la fuente de iones en un AMS [56], derecha esquema general de un sistema AMS [53].

el ^{14}N no puede formar iones negativos). Además, el uso de energías de orden nuclear ($\text{MeV}/\text{nucleón}$) posibilita la utilización de detectores de radiación nuclear, lo que permite medir otras variables como el poder de frenado o el tiempo de vuelo [53]. Como inconvenientes, cabe destacar la necesidad de un uso supervisado y las limitaciones espaciales (suelen ser equipos de gran tamaño que requieren medidas de protección radiológica). En los últimos años, se ha trabajado en el desarrollo de sistemas AMS cada vez más compactos. Un ejemplo de ello es el sistema MICADAS, utilizado en este trabajo, que cuenta con unas dimensiones de $3 \times 2,5$ m [67].

3.3.1. Estructura y funcionamiento de un sistema AMS

Un sistema de AMS está formado por una fuente de iones, dos espectrómetros de masas, un acelerador tándem con gas *stripper* y un detector, tal como se describe en el esquema 3.8. Su funcionamiento se basa en la extracción de iones 1^- de la muestra de interés, los cuales son analizados en masa mediante un imán. Tras este cribado inicial, el haz se inyecta en el tanque del acelerador y se acelera en dos etapas: primero, antes del proceso de eliminación de electrones conocido como *stripping*; después de este proceso, los iones adquieren carga positiva y son acelerados nuevamente y analizados con un espectrómetro de masas. Finalmente, el haz que sobrevive se mide mediante un detector, en este caso, un detector de cámara de ionización.

□ **Fuente de iones:** la mayoría de sistemas emplean fuentes de iones positivos, como el Cs^+ , siendo la fuente de pulverización catódica [57], figura 3.8 izquierda, la más común. En este tipo de fuentes, la muestra de carbono previamente gratificado⁷ se bombardea con iones de cesio positivos, lo que favorece la formación de iones negativos de carbono que son extraídos mediante una diferencia de potencial.

□ **Espectrómetros:** constituidos por un dipolo magnético y un campo magnético, seleccionan la masa de los iones de interés siguiendo la ley de Lorentz, ecuación 3.13. Se desvían las trayectorias de las partículas del haz, de modo que solo continúan el recorrido aquellas que siguen un determinado radio de curvatura, el cual es dependiente de la relación entre el momento y su carga.

$$R = \frac{mv}{qB} = \frac{p}{qB} \quad (3.13)$$

□ **Acelerador tandem con gas *stripper*:** su denominación proviene de que los iones experimentan una doble aceleración. En primer lugar, como iones negativos 1^- adquieren una energía $E = qV$. Posteriormente, se inyecta un gas neutro, denominado gas *stripper*. Para esta función, el uso de gases ligeros como el He presenta ventajas debido a su capacidad para soportar mayores tasas de corriente sin degradarse rápidamente [58]. Debido a la alta energía

⁷Proceso mediante el cual el carbono contenido en materiales orgánicos se transforma en grafito bajo condiciones de alta temperatura. En espectrometría de masas con acelerador (AMS) este paso es esencial, ya que permite preparar el ^{14}C en forma de blanco sólido de grafito apto para la ionización en la fuente.

de los iones, al interactuar con el gas neutro pierden más electrones de los que asimilan, alcanzando estados de carga positiva. Los nuevos iones son repelidos por la diferencia de potencial existente, obteniendo así una energía de $E = nqV$, donde n es el estado de carga, que puede ser superior a la unidad. La energía total que adquiere el haz tras los dos procesos de aceleración es, por tanto, $E = (1 + n)qV$. El proceso de *stripping* es de gran relevancia, ya que al alcanzarse estados de carga superiores a 3^+ se produce ruptura molecular debido a la repulsión coulombiana [59]. Estudios recientes sitúan esta ruptura en estados de carga 1^+ y 2^+ [60]. La importancia de este fenómeno reside en la disociación de moléculas de masa 14, ^{13}CH y $^{12}\text{CH}_2$, que son capaces de superar el cribado del espectrómetro. De esta manera, es posible reducir el fondo hasta en 11 órdenes de magnitud [61].

□ **Detector:** se emplea habitualmente una cámara de ionización. No obstante, un detector de tiempo de vuelo (TOF) o de telescopio ($\Delta E - E$) podrían contribuir a obtener una mayor sensibilidad. Estos últimos no se incluyen en este trabajo, si bien su principio de funcionamiento puede consultarse en [62] y [8].

□ **Cámara de ionización** Se basa en el aislamiento de un gas entre dos electrodos, a los que se aplica una diferencia de potencial. En el caso de las cámaras de ionización, esta diferencia suele ser pequeña (entre 25 y 250 V). El proceso de detección se basa en la ionización del gas presente en la cámara, provocada por la radiación incidente. Esta ionización genera pares ión-electrón que, debido a la diferencia de potencial, son colectados en el cátodo y el ánodo, respectivamente. Tras la ionización, pueden tener lugar procesos de recombinación, tanto ión-electrón (unión de un ión y un electrón para formar un átomo neutro) como ión-ión (unión de dos iones de cargas opuestas para formar una molécula). La supresión de estos procesos se logra mediante la aplicación de una diferencia de potencial que produce corrientes de iones y electrones en direcciones opuestas. Al aumentar el voltaje, se alcanza una región donde la corriente se mantiene estable, ya que todas las cargas se han recogido y su tasa de formación es constante. Esta es la llamada región de saturación, es la zona de operación típica. La energía media necesaria para la creación de un par ión-electrón es de unos $\omega = 33eV$, valor que si bien depende del gas se mantiene estable para la mayoría de gases [8], por lo tanto, al igual que ocurría en los detectores de Ge, el número de pares creados es una medida de la energía de la partícula incidente: $N = \frac{E}{\omega}$, lo que implica que la carga colectada $Q = qN$ también lo es. Considerando este valor de ω , es evidente que la resolución de una cámara de ionización es inferior a la de un detector de HPGe. Asimismo, su eficiencia también es menor debido a la baja densidad de los gases. No obstante, este tipo de detector resulta suficiente para las mediciones que se llevarán a cabo durante el trabajo. En una cámara de ionización se mide la corriente generada por los electrones procedentes de la ionización primaria. Dado que la movilidad de los electrones es mucho mayor que la de los iones, la recolección de carga se produce de forma rápida, en escalas de microsegundos frente a los milisegundos característicos de los iones [8]. En el contexto del AMS, la cámara de ionización permite identificar y contabilizar los iones que alcanzan el final del recorrido en función de su energía y número atómico, lo que posibilita la determinación precisa del número de núclidos de ^{14}C presentes en la muestra.

3.3.2. Efectos sistemáticos en la medición con AMS

Las medidas que toma el sistema AMS, MICADAS, de la universidad de Salamanca son: $^{12}\text{C}_{LE}$, $^{12}\text{C}_{HE}$, ^{13}C , ^{13}CH , ^{14}C y tiempo de medida; las siglas *LE* y *HE* hacen referencias a baja y alta energía respectivamente, ^{13}CH se refiere al carbono ^{13}C que proviene de la molécula $^{13}\text{CH}^-$. En adelante cuando se habla de ^{12}C , se entiende $^{12}\text{C}_{HE}$. El ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ que se mide directamente no es adecuado para determinar la edad de ^{14}C , es necesario tener en cuenta una serie de efectos que lo modifican mediante el proceso AMS. Tales efectos son debidos a la eficiencia, las dependencias de los ratios isotópicos con el tiempo y la corriente, las componentes de fondo, y el fraccionamiento isotópico. A continuación se detallan cada uno de estos procesos junto con su pertinente corrección al ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ medido.

□ **Eficiencia:** también denominada transmisión, hace referencia a la relación entre el número de núcleos iniciales que llegan al final de la línea y son detectados, ecuación 3.14. Habitualmente, las pérdidas se producen en el *stripper*, razón por la que se distinguen las medidas $^{12}\text{C}_{LE}$ y $^{12}\text{C}_{HE}$. No será necesario realizar ninguna corrección por la

eficiencia debido a que se trabaja con las relaciones $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ y $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$, siendo suficiente que ambas relaciones tengan la misma eficiencia. Es importante obtener la máxima transmisión posible, ya que a mayor número de núcleos, mayor sensibilidad se obtiene.

$$\epsilon = \frac{^{12}\text{C}_{HE}}{^{12}\text{C}_{LE}}. \quad (3.14)$$

□ **Dependencia de los ratios isotópicos con la corriente:** una de las causas es que el *stripper* limita la cantidad de carga que puede pasar a través de él; de manera que si la corriente es muy alta, es posible que no se transmita por completo, lo que afecta sobre todo al ^{12}C por ser el isótopo más abundante, lo que provoca cambios en los ratios. La corrección consiste en ponderar los ratios respecto a la corriente de ^{12}C , ecuación 3.15, donde el peso de una medida ($p_i = I_{^{12}\text{C}}(A) \cdot t(s)$) es la carga de ^{12}C durante el tiempo t .

$$\langle x \rangle = \sum_i \frac{X_i \cdot p_i}{\sum_i P_i}. \quad (3.15)$$

□ **Dependencias de los ratios isotópicos con el tiempo:** los ratios $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ y $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ pueden variar con el tiempo si la corriente es inestable. Dado el caso se puede reajustar el acelerador durante la medida o una vez realizada, representar los ratios frente al tiempo para evaluar la gravedad de la desviación y en ese caso hacer ajustes o desechar las medidas. Es un fenómeno común en aceleradores más antiguos o muy grandes, utilizando MICADAS se considera que son estables y no se necesita hacer correcciones.

□ **Efectos del fondo:** el principal contaminante es la molécula $^{13}\text{CH}^-$ que al tener masa 14 pasa el cribado del espectrómetro [60], que posteriormente se disocia en el *stripper* formando iones $^{13}\text{C}^+$, aún así es posible que cuentas de ^{14}C provengan en realidad de esta molécula. Para tener en cuenta el efecto se representa el ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ medido en muestras de fondo, preparadas sin ^{14}C , frente al ratio $^{13}\text{CH}/^{12}\text{C}$; si se observa una correlación entre sus aumentos, significa que se está midiendo $^{13}\text{C}^+$ producto del fondo molecular. La corrección en este caso viene dada por la ecuación siguiente y es necesaria su aplicación a todas las medidas,

$$\frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}_{Mol}} = \frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}} - K_{Mol} \frac{^{13}\text{CH}}{^{12}\text{C}}. \quad (3.16)$$

Otro de los efectos del fondo son las cuentas de ^{14}C que se detectan en ausencia de este; para corregirlo se realiza una medida del ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ en las muestras de fondo $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}(BL)$, posteriormente se sustraen de la medida:

$$\langle ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}(BL)_{Mol} \rangle = \sum \frac{(^{14}\text{C}/^{12}\text{C}(BL)_{Mol}) \cdot p_i}{\sum_i P_i} \rightarrow \frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}_{Mol,BL}} = \frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}_{Mol}} - \langle ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}(BL)_{Mol} \rangle. \quad (3.17)$$

□ **Fraccionamiento isotópico:** el fraccionamiento isotópico ocurre cuando los isótopos más pesados del carbono (^{13}C y ^{14}C) se procesan de manera diferente a los más ligeros ^{12}C en procesos físicos, químicos o biológicos; esto puede suceder tanto en la naturaleza como en el proceso de preparación de muestras [40]. Para corregir este efecto se utiliza el isótopo ^{13}C por ser estable, se define el parámetro $\delta^{13}\text{C}$ como la diferencia en tanto por mil entre el ratio en carbono 13 de la muestra y un estándar internacional:

$$\delta^{13}\text{C} = \left(\frac{(^{12}\text{C}/^{13}\text{C})_{muestra}}{(^{12}\text{C}/^{13}\text{C})_{estándar}} - 1 \right) \times 1000, \quad (3.18)$$

para la atmósfera $\delta^{13}\text{C} = -7.4$ y para las plantas, $\delta^{13}\text{C} = -27.6$ [40]. El $\delta^{13}\text{C}$ se utiliza para corregir la edad de ^{14}C , una variación de 1‰ en $\delta^{13}\text{C}$ equivalente a 16 años; permite determinar el origen del carbono en una muestra, pues dependiendo de este valor se le puede asignar una fuente; además hace posible analizar los efectos reservorio y control de calidad en AMS.

Normalización con los estándares

Una vez atendidos todos los efectos sistemáticos de la medida se normalizan los valores obtenidos para las medidas estándar. Para ello en primer lugar se calcula el valor medio de los ratios $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f}}$:

$$\langle ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f,std}} \rangle = \frac{\sum_i (^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f,i}} \cdot p_i)}{\sum_i p_i}, \quad ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f,std}} = \frac{F^{14}\text{C}_{\text{std}}}{\langle ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f,std}} \rangle} \cdot ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f}}, \quad (3.19)$$

con este valor se normalizan los ratios de todas las muestras: Donde $F^{14}\text{C}_{\text{std}}$ es el valor del estándar. Para OxII, $F^{14}\text{C} = 1,34057$. El ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}_{\text{Mol,Bl,f,std}}$ se denota como $F^{14}\text{C}$ y es el ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ corregido por fondo, fraccionamiento isotópico y normalizado.

Cálculo de la edad convencional de ^{14}C

A partir del valor calculado para $F^{14}\text{C}$, la fracción moderna de carbono-14, es posible calcular la edad de la muestra a partir de la ley de desintegración radiactiva y utilizando la semivida de Libby $T_{1/2}=5568(30)$ a:

$$t = -\frac{5568}{\ln(2)} \ln(F^{14}\text{C}) \text{ a}, \quad \sigma_t = \frac{5568}{\ln(2)} \cdot \frac{\sigma_{F^{14}\text{C}}}{F^{14}\text{C}} \text{ a}; \quad (3.20)$$

donde se considera la vida media de Libby como una constante bien determinada. Esta edad es la llamada edad de ^{14}C y no es la edad real de la muestra, para ello se requiere el uso de curvas de calibrado, como se discutía en el capítulo 2. La fracción moderna se toma $F^{14}\text{C} = 1,0$ para el año 1950 donde se sitúa el origen de los tiempos en datación por ^{14}C BP=0.

3.3.3. Estimación del error basado en modelo bayesiano

Existen dos métodos para relacionar la edad de ^{14}C con la edad real de una muestra. El primero consiste en examinar la superposición entre la medición y la curva de referencia dentro de uno o dos desviaciones estándar, método de intersección propuesto en 1986 [64]. Sin embargo, este método presenta problemas debido a que las curvas de calibrado no son monótonas y un mismo valor de ^{14}C puede corresponder a varios valores de edad real. Para solucionar esta casuística, en 1993 se introdujo el cálculo de la edad real a través de una función de densidad de probabilidad [65] [66]. Suponiendo una relación funcional entre la edad de ^{14}C y la edad real, la probabilidad de la edad de la muestra se expresa como:

$$P(t) \propto \exp\left(-\frac{(f_m - f(t))^2}{2(\sigma_{f_m}^2 + \sigma_{f(t)}^2)}\right) \cdot \frac{1}{\sqrt{\sigma_{f_m}^2 + \sigma_{f(t)}^2}}, \quad (3.21)$$

donde $f_m \pm \sigma_{f_m}$ es la edad de radiocarbono y $f(t) \pm \sigma_{f(t)}$ la curva de calibración [63]. Una vez se conoce la distribución de probabilidad, se usan técnicas de muestreo como el método de Montecarlo basado en cadenas de Markov, lo cual generará una muestra de edades que siguen la distribución dada. Para finalizar, se utiliza el rango HPD1⁸ (*highest posterior density*) para calcular el rango de valores probables, normalmente a 1σ y 2σ . Esta técnica produce una serie de edades reales posibles para una edad de ^{14}C , cada una con una probabilidad. La incertidumbre varía según la muestra y la curva de calibrado, a veces impidiendo reportar una sola edad, como en la figura 2.12, donde se deben reportar todas las fechas con sus probabilidades. El calibrado introduce la mayor incertidumbre debido a la variabilidad de ^{14}C en el tiempo y su reservorio. Existen varios programas de calibración, como Oxcal, CALIB, BCal, matcal e iosacal. Este trabajo utilizará Oxcal.

⁸No se explica en detalle ninguno de estos métodos, pues no forman parte del objetivo del trabajo, la calibración de edades convencionales de radiocarbono es un campo en si mismo.

Capítulo 4

Equipos e instalaciones

4.1. Sistema Mazinger

Las medidas de espectrometría gamma para las fuentes del testigo sedimentario se realizarán utilizando el sistema Mazinger, figura 4.1, ubicado en el LRI-D. Se trata de un sistema de muy bajo fondo y alta eficiencia que permite el análisis de actividad de origen natural. El sistema está compuesto por dos detectores de HPGe enfrentados, dos anillos anti-Compton (AC) y dos vetos anti-muones, siendo este último incorporado recientemente en 2024. Todos estos elementos se pueden ver en la imagen 4.1 y 4.2, el segundo veto se encuentra ocupando la cara posterior de la estructura. La capacidad para alcanzar un fondo tan bajo se debe a la combinación de blindajes pasivos y activos.

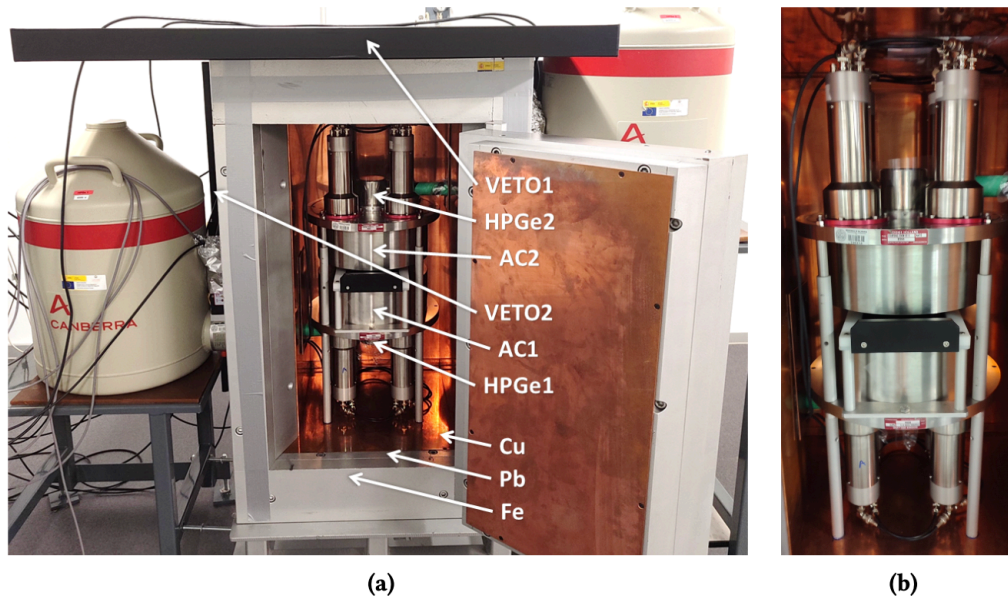


Figura 4.1: Sistema de espectrometría gamma de bajo fondo, Mazinger. A la izquierda identificación de los diferentes sistemas de detección, blindaje y refrigeración, a la derecha detalle de la estructura [50].

❑ **Características de los detectores de HPGe:** los detectores de germanio empleados son modelo BEGe5030 de Canberra, con geometría coaxial y alta pureza tipo p, características que permiten la medición de un amplio rango energético. El cristal de germanio posee 50 cm^2 y 30 mm de altura, lo que conforma un volumen activo de 117 cm^3 . Se mantienen a la temperatura del nitrógeno líquido mediante dos criostatos horizontales idénticos libres de impurezas radioactivas, modelo 7915-30/S-ULB, que disponen de un preamplificador 2002C de Canberra. El nitró-

geno líquido se almacena en dos respectivos Dewar de 30 L que requieren recarga semanal. Se montan con sus respectivas ventanas de carbón/epoxi de 0,6 mm colineales en el eje vertical y enfrentadas al portamuestras, con una distancia total entre ellas de 40,6 mm [51]. Esta configuración permite que el ángulo sólido entre el cristal de germanio y la muestra alcance valores superiores a 2π para geometrías adaptadas C00, C11, C21 [51]. El detector inferior es HPGe1 y el superior HPGe2 (véase las imágenes 4.1 y 4.2).

❑ **Blindaje pasivo:** consiste en una caja de Fe de 10 cm de espesor, libre de impurezas de ^{60}Co , revestida interiormente con 5 cm de Pb muy antiguo y, a su vez, forrada con 3 mm de Cu electrolítico. La cámara del detector tiene 760 mm de altura y 370 mm de anchura, y se ventila con un flujo constante de nitrógeno de 4,5 L/min para minimizar y estabilizar la concentración de radón [51]. El sistema de aporte de N_2 se detalla en la imagen 4.2.

❑ **Blindaje activo:** está compuesto por dos anillos AC de centelleo de NaI(Tl) que rodean a cada uno de los detectores HPGe sin superponerse en sus ventanas del HPGe para disminuir la supresión de cascadas γ - γ o γ -X. Estos anillos AC cuentan con cuatro fotomultiplicadores Scionix, modelo 270AP S102/3(4)M-E1X, acoplados ópticamente a cada anillo [51]. El anillo inferior se denomina AC1 y el superior, AC2. Dentro del blindaje activo también se incluyen dos sistemas de veto-antimuones, imagen 4.2 izquierda, con dimensiones: 1000 x 50 x 1000 mm [50]. Uno de ellos se sitúa encima de la estructura (Veto1) y el segundo en la cara posterior (Veto2). Su finalidad es reducir el fondo de rayos cósmicos mediante medidas en anticoincidencia con los detectores HPGe1 y HPGe2.

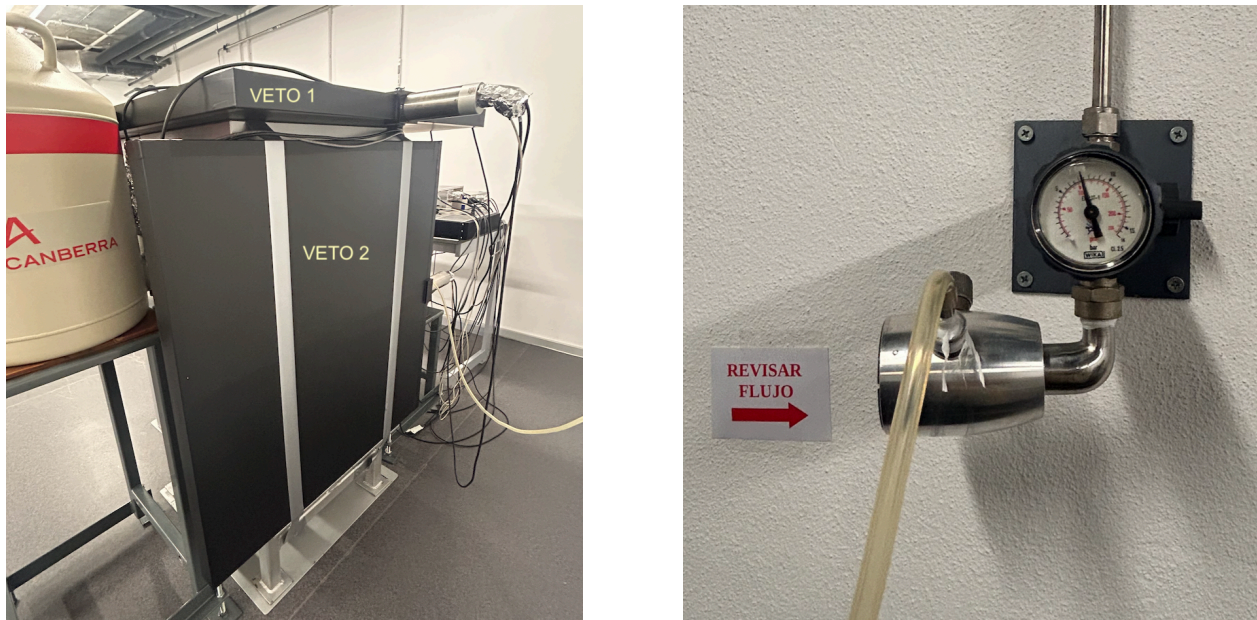


Figura 4.2: Izquierda detalle de los Vetos 1 y 2, derecha control de flujo N_2 . Imágenes propias.

4.1.1. Elementos y configuración de la electrónica

La electrónica que acompaña a los detectores HPGe está compuesta por dos fuentes NIM de alta tensión, modelo 3106D de Canberra, que les proporcionan un potencial de 4,0 kV, y sus respectivos preamplificadores modelo 2002C de Canberra, alimentados por dos de las salidas de un módulo NIM N5424 de CAEN. Las señales de salida de los detectores HPGe se conectan a los canales 0 y 1 de una tarjeta digitalizadora Pixie4 de Xia. Esta tarjeta de cuatro canales está instalada en un chasis modelo NIPXI-1033 de National Instruments y dispone de un software de adquisición propio. La frecuencia de muestreo para la digitalización de la señal es de 75 MHz, lo que equivale a aproximadamente 3000 puntos por cada pulso procedente de los detectores, con una configuración de 32768 canales de energía para la formación del espectro. Para los sistemas AC se dispone de una fuente de alta tensión de dos canales, modelo T2DP 020 050 EPU de Iseg, que proporciona un potencial de 700 V y 778 V, respectivamente, a los

cuatro fotomultiplicadores acoplados a cada cristal de NaI(Tl). Cada grupo de fotomultiplicadores se alimenta a través de las salidas restantes del módulo NIM N5424. En relación con los vetos-antimuones, estos se alimentan mediante una segunda fuente de alta tensión de dos canales, modelo T2DP 020 050 EPU de Iseg, que proporciona un potencial de 1100 y 1400 V a Veto1 y Veto2, respectivamente. Los fotomultiplicadores acoplados son del modelo R1000*50B1000/2M-E2-P-X de Scionix y se alimentan mediante un módulo TC 248 de Tennelec y un módulo 474 de Ortec. Las señales de los preamplificadores se suman en la entrada del módulo Tennelec mediante el conector tipo T para su amplificación. La señal amplificada también se envía a la tarjeta digitalizadora como una señal lógica de entrada que indica al sistema cuándo debe ignorar las señales procedentes de los otros cuatro detectores. El software de adquisición y control se encuentra instalado en un ordenador personal convencional.

4.2. Sistema BEGe

Para la caracterización de la fuente de agua se emplea el sistema BEGe, otro de los detectores de HPGe del laboratorio LRI-D. Se ha optado por este sistema debido a que la muestra de agua, al tener mayor masa, no requiere del equipo Mazinger, ya que este último es más adecuado para fuentes con menor actividad. BEGe es un detector Canberra modelo BE5030, ensamblado en un criostato libre de impurezas con configuración en U (modelo 7915-30-ULB). Se muestra en la siguiente imagen 4.3. El cristal de Ge es de tipo p y presenta un volumen activo de 117 cm³. Su eficiencia relativa a la energía de 1332 keV alcanza el 50 %, mientras que la resolución nominal es de 0,75 keV a 122 keV y de 2,20 keV a 1332 keV. Gracias a la disposición de los contactos, el detector ofrece un rango de medida amplio, con una eficiencia destacable especialmente en el intervalo de 20 a 60 keV. El criostato se refrigera por contacto directo con nitrógeno líquido contenido en un Dewar de 30 L, que requiere rellenado semanal. El detector cuenta con un blindaje pasivo compuesto por capas sucesivas: 10 cm de hierro dulce fundido anterior a la II Guerra Mundial, 5 cm de plomo con más de 300 años de antigüedad y 2 mm de cobre electrolítico de alta pureza. La cámara interna donde se aloja el sistema, al igual que Mazinger, recibe un flujo continuo de N₂ de 2,2L/min que contribuye a disminuir el fondo asociado a los descendientes del ²²²Rn. El preamplificador utilizado es un Canberra 2002CP, y sus señales se procesan mediante un sistema digital Canberra DSA1000, que también suministra el alto voltaje necesario. El montaje del preamplificador y el detector junto al criostato permite reducir pérdidas de señal, minimizar el ruido electrónico y optimizar la resolución del espectrómetro. La adquisición de los espectros y la gestión del sistema se realizan con el software Genie 2000 de Canberra.



Figura 4.3: Sistema de espectrometría gamma BEGe.

4.3. Caracterización del fondo de Mazinger y BEGe

El fondo de Mazinger fue caracterizado en 2024 tras su actualización, que incluyó el veto 2, una reconfiguración electrónica y optimización de condiciones operativas. Dado su diseño de muy bajo fondo, es importante caracterizar bien el fondo para posteriormente restar las cuentas asociadas de las mediciones a cada emisión. El fondo utilizado para BEGe en este trabajo también se caracterizó en 2024. Ambas medidas para el fondo se pueden ver en la imagen A.10.

Una caracterización del fondo consiste en una medida larga sin ninguna fuente de aproximadamente 30 días. Es necesario este tiempo para conformar adecuadamente los picos de fondo provenientes de la radiación natural o artificial de los materiales colindantes al detector y de los rayos cósmicos. De esta manera es posible estimar con precisión el área de los picos de fondo (N_f) y reducir la incertidumbre de las mismas al aumentar las cuentas netas, ya que esta depende de las cuentas como el inverso de la raíz, como se discute en el anterior capítulo.

Se muestra en la imagen A.10 una comparativa entre el fondo de Mazinger y los diferentes detectores del LRI-D. BEGe ya tratado en la sección anterior, y un modelo GR2520 de Canberra en configuración vertical (REGe), estos últimos disponen únicamente de blindaje pasivo de bajo fondo. Se observa que el fondo de Mazinger es un orden de magnitud inferior al de BEGe, esto es gracias al blindaje activo. Por ello, se utiliza el sistema Mazinger para la medida de bajas actividades y en casos en los que se tienen muestras de baja masa. Por otro lado el sistema BEGe es suficiente para la medida de la muestra de agua dado que en ese caso se cuenta con mayor masa.

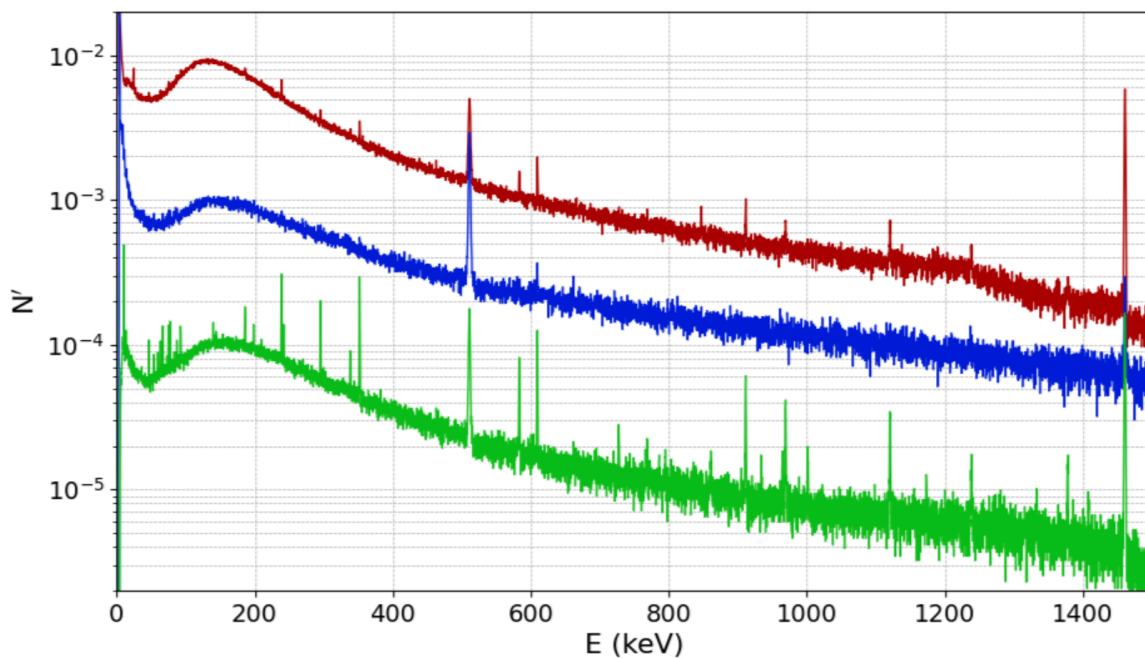


Figura 4.4: Comparación de la tasa de conteo de fondo de Mazinger (en verde) y otros detectores de Germanio del LRI-D en 2024: BEGe (en azul) y REGe (en rojo). N' se define como el número de cuentas por segundo por cada 4 canales, normalizada por la masa del cristal de Ge de cada uno de ellos [50]

4.4. Instalación CARBONUS: sistema MICADAS

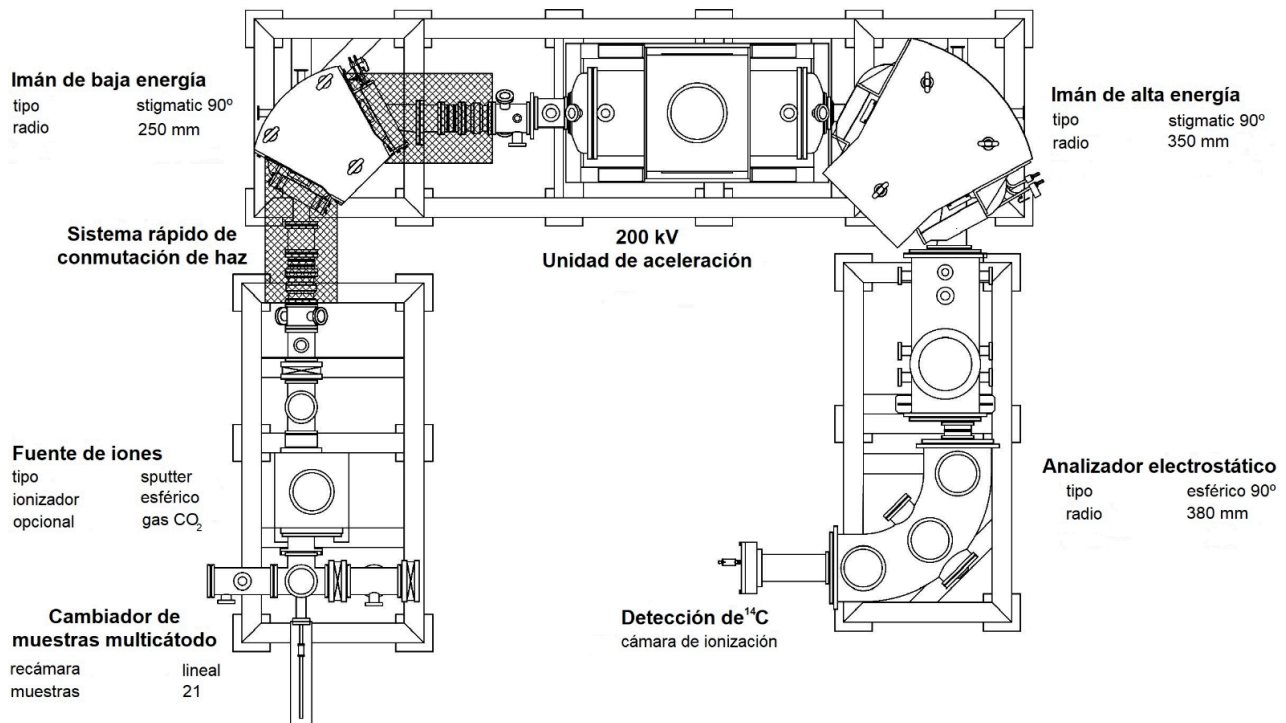


Figura 4.5: Planos del sistema MICADAS [67]

Desde 2018, el LRI-D dispone de una sala AMS equipada con un espectrómetro de masas con acelerador MICADAS, fabricado por IonPlus, así como un laboratorio limpio para la preparación de muestras.

MICADAS (Mini Carbon Dating System) es un sistema compacto, como se muestra en la figura 4.5, con dimensiones totales de 2.5x3 m², que incluye una unidad aceleradora con un voltaje terminal aislado al vacío de 200KV [67]. A continuación, se analizarán cada uno de sus componentes.

❑ **Cambiador de muestras multicátodo:** situado al inicio de la línea, dispone de una capacidad para 40 muestras, manipuladas por un brazo automático controlado por el software. La fuente de iones y el cambiador de muestras se encuentran interconectados a la misma presión, lo que permite el cambio de muestras sin interrumpir el vacío.

❑ **Fuente de iones:** fuente de pulverización catódica de iones de cesio que genera haces de energías comprendidas entre 5 KeV y 12 KeV. Se encuentra alojada en una cámara de vacío a la que se conecta una bomba que mantiene una presión de $9,87 \cdot 10^{-11}$ atm. En su interior se encuentra el cesio. Mediante un sistema de extracción electrostático, los iones negativos son acelerados hacia el espectrómetro con energías de hasta 40 KeV, produciendo corrientes de 30 μ A a 50 μ A para blancos de grafito. Se pueden consultar más detalles de su diseño en [67].

❑ **Lente de inmersión:** elemento óptico que enfoca el haz de iones en el cátodo que contiene la muestra.

❑ **Válvula para la fuente de iones:** válvula que permite desacoplar la fuente de iones del resto de la línea.

❑ **Espectrómetro de baja energía:** se trata de un dipolo magnético permanente de 250 mm de radio y 415 mT. Al ser permanente, solo discrimina el ion para el que fue diseñado (¹⁴C⁻). En la práctica, el espectrómetro deja pasar iones de cierta emitancia, ya que el haz ocupa un área, con lo cual se tiene un error de 10π mm mrad $\sqrt{\text{MeV}}$. En los puntos focales anteriores y posteriores al dipolo se colocan rendijas variables. Tras el espectrómetro se coloca una

Faraday cup con el objetivo de medir la corriente de iones $^{12}\text{C}^-$.

□ **Sistema de conmutación rápida del haz:** sistema que ajusta la energía del haz para permitir pulsos muy cortos de ^{12}C , ^{13}C y ^{14}C mediante la aplicación de diferentes voltajes para evitar la sobrecarga del acelerador.

□ **Unidad de aceleración y stripper:** se trata de un acelerador tándem de 1 metro de longitud y en vacío. La tensión se obtiene mediante una fuente comercial de 200 kV. El gas *stripper* se encuentra dentro de la unidad y se suministra desde el exterior de la cámara de vacío mediante un tubo a alta presión. Este gas se extrae mediante tres bombas turbomoleculares y se renueva constantemente.

□ **Espectrómetro de alta energía:** se trata de un dipolo magnético permanente de 350 mm y un campo de 968 mT que, mediante un cribado de iones basado en su relación p/q , permite la selección de iones a la salida del imán. En este punto, se coloca una *Faraday cup* para la recolección de los iones ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C y ^{13}C procedentes de la ruptura molecular de $^{13}\text{CH}^-$.

□ **Analizador electrostático:** espectrómetro electrostático de 380 mm, con posibilidad de seleccionar la relación T/q de los iones incidentes.

□ **Detector:** cámara de ionización que utiliza gas isobutano a 20mbar. El detector de gas se emplea en esta región para evitar los efectos del tiempo muerto, permitiendo así la recolección de la totalidad de la carga generada por los iones de ^{14}C al frenarse en el gas. La ventana de entrada, con dimensiones de 5x5 mm y compuesta por nitruro de silicio, minimiza las pérdidas de energía y la dispersión angular y energética del haz [69].

4.4.1. Medidas de radioprotección

Durante el funcionamiento del AMS se produce la emisión de rayos X. Este fenómeno se debe a la aceleración y posterior desaceleración de las cargas, principalmente electrones, lo que genera *Bremsstrahlung*¹. Por ello, es necesario realizar mediciones de los niveles de dosis en la sala durante las operaciones. En condiciones normales, no se superan los límites de $0,1\mu\text{Sv/h}$ a 10 cm del sistema.

Durante el proceso de condicionamiento, el acelerador puede alcanzar energías superiores a 200 keV, lo que puede resultar en dosis superiores a $40\mu\text{Sv/h}$ en las proximidades del mismo. Por este motivo, durante este proceso no se debe ocupar la sala. Tras su finalización, se deberán medir los niveles de radiación en cada punto asignado por el manual del fabricante y comprobar que no se superen los límites establecidos en dicho documento. Para verificar la seguridad de la sala, se dispone de un detector Geiger ubicado junto al acelerador. Cuando los niveles de dosis superan los $0,5\mu\text{Sv/h}$, se activa una alarma, una luz roja y se cierra la puerta automáticamente. Además, se cuenta con un botón de emergencia que interrumpe el suministro eléctrico del AMS. Si transcurridos 30 segundos desde el inicio de la alarma los valores no descienden, el suministro se corta automáticamente.

4.5. Laboratorio limpio de preparación de muestras

El trabajo con muestras para datación por ^{14}C requiere condiciones de máxima limpieza, ya que la presencia de contaminantes con carbono moderno puede comprometer los resultados. Las principales fuentes de contaminación son el polvo (con pelo, fibras de papel, polen o partículas de piel) y el crecimiento bacteriano en las muestras, por lo que se recomienda conservarlas mediante congelación o liofilización. El laboratorio de preparación de la Universidad de Salamanca dispone de una sala blanca y una cabina acristalada para el pesado, con el fin de evitar interferencias por corrientes de aire. Entre el equipamiento se incluyen balanza de precisión, un Analizador Elemental (EA), un sistema de grafitización automática (AGE), así como diversos materiales auxiliares (prensa, cápsulas

¹Al desacelerarse una partícula cargada debido a una dispersión con el campo coulombiano de un núcleo, pierde energía cinética que se emite en forma de radiación X de espectro continuo.

de estaño y plata, Eppendorfs, gradillas, toallitas, etanol al 75 %, etc.). Pueden revisarse imágenes de todos estos elementos junto con otros enseres en el anexo C.

4.5.1. Analizador elemental (EA)

El EA será clave en el proceso de preparación, ya que convierte el carbono de las muestras en CO_2 , que posteriormente será grafitizado en el AGE. Proporciona información elemental (%C, %N, %O, %H, %S) y relaciones como C/N, de interés en la caracterización de sedimentos. El modelo utilizado se encuentra en la imagen A.5, es un VarioIsotope Select (Elementar).

❑ **Inserción de la muestra:** las muestras se introducen en cápsulas de estaño, figura A.5, que se colocan en un carrusel automatizado. Desde allí, cada cápsula es transportada hasta una válvula de bola que actúa como punto de entrada al sistema. En este paso se elimina el aire atmosférico presente y se establece una atmósfera controlada mediante una mezcla de helio y oxígeno, que servirán como gases portadores a lo largo de todo el proceso. Se debe ser muy consistente con el prensado de las muestras ya que el carrusel puede atascarse, como sucedió en la primera tanda de preparación.

❑ **Combustión y reducción:** una vez en el horno de combustión, esta ocurre a 950°C en una atmósfera rica en oxígeno, la muestra se oxida completamente en presencia de catalizadores, generando principalmente dióxido de carbono (CO_2), agua (H_2O) y nitrógeno (N_2), además de otros compuestos secundarios. Un flujo de gas de He conduce los gases a lo largo del sistema hasta la columna de reducción, compuesta por Cu, donde los óxidos de nitrógeno (NO_x) se transforman en N_2 y los compuestos de azufre y halógenos son eliminados mediante absorbentes específicos, garantizando que únicamente los gases de interés prosigan en el circuito.

❑ **Separación de componentes:** la mezcla gaseosa resultante pasa en primer lugar por un tubo con Sicapent, cuyo objetivo es eliminar la humedad (H_2O) presente tras la combustión. A continuación, los gases atraviesan la columna de absorción, donde se produce la separación secuencial de los distintos compuestos en función de la temperatura. De este modo, N_2 , CO_2 , H_2O o SO_2 son liberados de manera diferenciada y en un orden definido, lo que facilita su análisis individual posterior.

❑ **Detección y análisis:** los gases separados alcanzan el detector de conductividad térmica (TCD). Este dispositivo compara la conductividad térmica de la mezcla con la del helio puro, generando una señal eléctrica proporcional a la concentración de cada componente. Los resultados se representan en forma de picos de señal. La forma de cada pico es característica de un gas. Se pueden observar las formas esperadas en la imagen 4.6, que posteriormente se integran y transforman en porcentajes absolutos mediante funciones de calibración previamente establecidas.

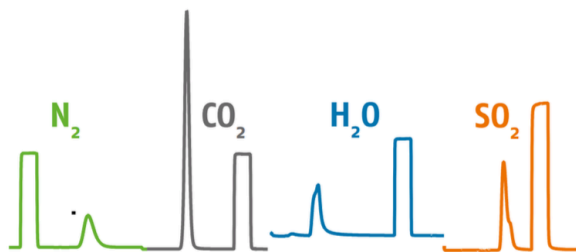


Figura 4.6: Señales típicas para cada gas en el EA, manual del fabricante.

❑ **Calibración y control de calidad:** el EA permite seleccionar distintos protocolos de operación (como G50s, G80s o G120s), que varían en parámetros como el tiempo de dosificación de oxígeno, en función del tipo de muestra a analizar, el utilizado para el procesamiento de las muestras ha sido G80s. Para garantizar la exactitud de las medidas, la calibración se realiza con un estándar de acetanilida, con concentraciones certificadas de carbono (71,09 %)

y nitrógeno (10,36 %). De esta manera, es posible establecer curvas de calibración lineales que relacionan el área de los picos detectados con el contenido absoluto de cada elemento. Adicionalmente, se emplea un factor de corrección denominado Daily Factor, que se calcula a partir del análisis de muestras estándar al inicio de cada jornada. Este valor corrige posibles variaciones ambientales debidas a cambios de presión, temperatura o humedad, asegurando así la estabilidad y reproducibilidad de los resultados obtenidos.

❑ **Mantenimiento del EA:** el correcto funcionamiento del EA depende de un mantenimiento periódico de sus componentes principales. En primer lugar, la columna de combustión, formada por diferentes materiales catalíticos que favorecen la oxidación completa de la muestra y la eliminación de compuestos indeseados, debe sustituirse una vez que estos reactivos se agotan. A continuación, la columna de reducción, compuesta por cobre metálico, necesita regenerarse regularmente mediante un flujo controlado de hidrógeno y nitrógeno, proceso que devuelve al cobre su capacidad de transformar los óxidos de nitrógeno en N_2 . Finalmente, el tubo de Sicapent, encargado de eliminar la humedad residual de los gases de combustión, ha de reemplazarse con precaución, ya que este material reacciona de manera fuertemente exotérmica al entrar en contacto con el agua.

4.5.2. Grafitización automática (AGE)

El sistema AGE3 transforma el CO_2 procedente del Analizador Elemental en grafito, material necesario para la posterior medida mediante AMS. Devuelve la muestra ya grafitizada en finos tubos de vidrio, imagen A.6.

❑ **Introducción del CO_2 :** el gas CO_2 generado en el EA es transferido al AGE3 a través de una trampa de zeolita, donde queda retenido temporalmente. Este paso permite acumular la cantidad de carbono necesaria para su posterior reducción y, además, evita el denominado “efecto memoria” al acondicionar la columna antes de introducir nuevas muestras.

❑ **Reducción catalítica:** el CO_2 retenido es liberado y dirigido hacia un reactor en el que, bajo una atmósfera de hidrógeno y a una temperatura de aproximadamente $580^\circ C$, se inicia el proceso de reducción. En esta etapa se emplea hierro como catalizador. El CO_2 se transforma primero en monóxido de carbono (CO) y finalmente en carbono elemental (C), mientras que en cada paso se generan moléculas de agua como subproducto.

❑ **Eliminación de subproductos:** el agua y los gases residuales generados durante la reducción son eliminados del reactor mediante la aplicación de vacío. Este procedimiento asegura que el carbono depositado quede libre de impurezas y en condiciones adecuadas para su uso en la medida posterior.

❑ **Ventilación con argón:** una vez completada la reducción y eliminados los subproductos, el sistema se ventila con argón. Este gas inerte protege el grafito resultante frente a contaminaciones accidentales y estabiliza el reactor para su apertura y manipulación.

Capítulo 5

Muestreo en Laguna Salina grande y preparación de muestras

5.1. Descripción de las Lagunas de Villafáfila y punto de muestreo

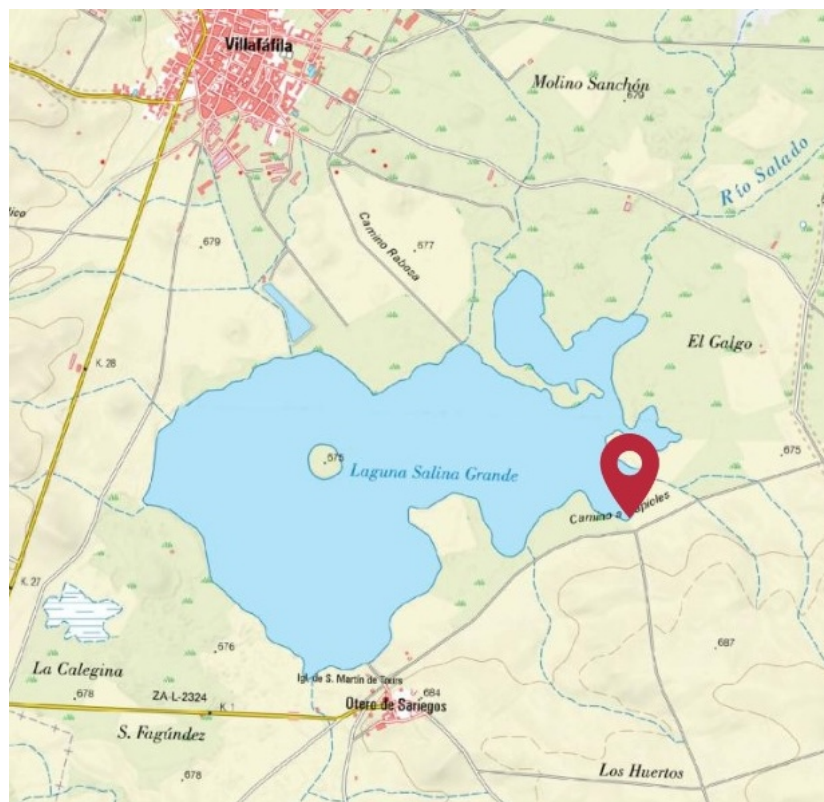


Figura 5.1: Mapa de la zona Lagunas de Villafáfila, en rojo, localización del punto de muestreo; Aportada por el equipo de medioambiente.

Las lagunas de Villafáfila constituyen un ecosistema de alto valor medioambiental. Declaradas Reserva Natural en 2006 [88], están consideradas como «Zona de Especial Protección para las Aves» (ZEPA) y pertenecen a las Zonas Húmedas de Importancia Internacional (Convenio Ramsar). Además, forman parte de la red europea Natura 2000.

Se trata de lagos de flujo continuo situados a 40 km al norte del río Duero, véase la imagen 5.1. Son de carácter efímero y contienen su mayor volumen de agua en invierno y primavera (de noviembre a junio), llegando a desapa-

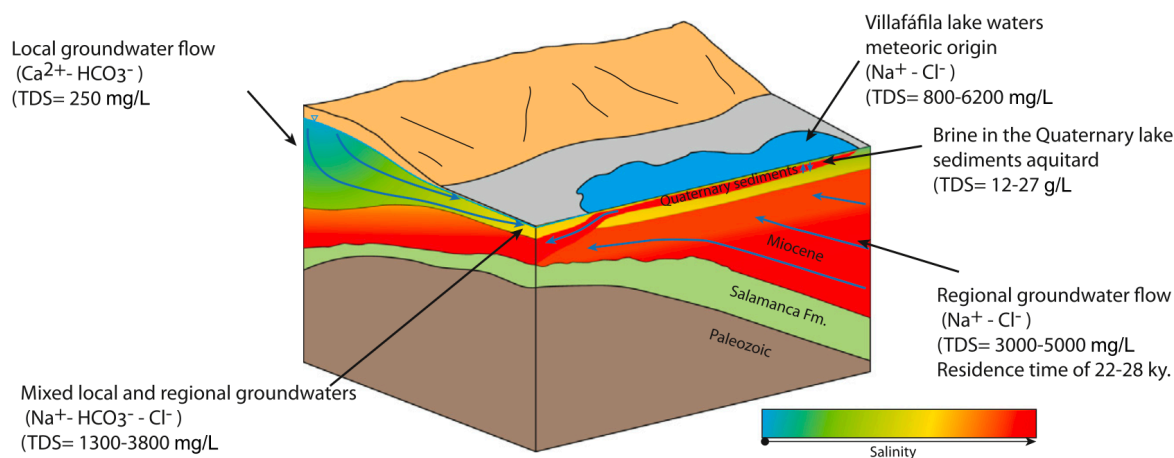


Figura 5.2: Estructura geológica de la cuenca de Villafáfila [70]

recer prácticamente en verano. Las depresiones que forman estas lagunas tienen una extensión variable y alcanzan una profundidad máxima que no supera los 50 cm [70]. La zona tiene una superficie estimada de 32 682 hectáreas, de las cuales 1000 hectáreas están formadas por más de 40 zonas encharcables. Entre ellas destacan por su extensión la Laguna de Barrillos, la Laguna de las Salinas y la Laguna Salina Grande, en la que se realizó el muestreo.

Se encuentran ubicadas en una zona relativamente baja y extensa de 685 metros de cota, con una pendiente casi nula que favorece la acumulación de sedimentos transportados por el agua. La mayor parte del agua proviene de la precipitación directa y de aguas subterráneas poco profundas, aunque también existen contribuciones menores del escurrimiento y de aguas subterráneas profundas. No se trata de una cuenca puramente endorreica, sino pseudoendorreica, ya que las lagunas están parcialmente drenadas por el Arroyo Salado, como se puede observar en la imagen 5.1. Este arroyo conecta las tres lagunas principales y llega a tener calidad de río a lo largo de su curso, desembocando en el río Valderaduey, un afluente del Duero.

Este fondo de valle se extiende sobre una superficie de alteración del Mioceno inferior, de 23 a 16 millones de años, que separa los materiales del Paleógeno de los del Neógeno. Ver esquema en la imagen 5.2. Los estudios previos realizados en esta área se han centrado principalmente en la composición química del agua de las lagunas debido a su particular salinidad. Este fenómeno se atribuye al aporte de sales provenientes de aguas subterráneas mixtas, caracterizadas por la presencia de HCO_3^- , Cl^- y Na^+ , que emergen en la base de las colinas. Asimismo, se han detectado aguas con alta salinidad (Na^+ y Cl^-) en las lagunas, los manantiales cercanos y en perforaciones con profundidades superiores a 40 m [70] [71]. Además, existen estudios sobre la formación geológica de la zona [72] y numerosos estudios biológicos, arqueológicos e históricos.

En relación directa con este se tiene un estudio paleoambiental previo combinó datación por ^{14}C AMS, análisis químico e identificación de palinomorfos ¹ mediante microscopio óptico [74]. Publicado en 2017, utilizó muestras de 2013 tomadas en pastizales húmedos cerca de la Laguna de las Salinas. Este estudio servirá de referencia, aunque el nuevo testigo de 19 cm analizará fenómenos más recientes.

Considerando todos estos factores, se selecciona la Laguna de Salina Grande para el muestreo debido a su gran interés ecológico, su peculiar ambiente sedimentario y la escasez de estudios de datación previos en la zona.

¹Microfósiles orgánicos de tamaño entre 5 y 500 μm que incluyen estructuras como granos de polen, esporas y fungoesporas. Son estudiados por la palinología, esta disciplina puede dar información útil no solo para datación, sino también sobre la actividad humana y eventos climáticos en la zona [77].

5.2. Historia de la Laguna Salina Grande

Las lagunas de Villafáfila han sido estratégicas por su riqueza en sal desde la Edad del Bronce (3000-1700 a.C.), con evidencias arqueológicas como recipientes cerámicos para evaporación por ebullición, ahora en el Museo Arqueológico de Zamora. Durante las épocas romana y visigoda, siguieron siendo un centro salinero, como indica un documento jurídico en bronce sobre las “lacuna” de la región. La sal abastecía asentamientos del noroeste peninsular. En la etapa mozárabe, la explotación continuó con mozárabes, visigodos y leoneses [76].

La explotación de sal alcanzó su apogeo en la Edad Media, con documentos del siglo X que muestran intensa actividad comercial y una economía basada en este mineral. La monarquía y grandes monasterios, como Sahagún, controlaban la explotación. En el siglo XIII, el crecimiento poblacional se debió al auge de la industria salinera, que atrajo a trabajadores y comerciantes. Sin embargo, en el siglo XVI, la competencia de otras salinas y la importación de sal más barata desde Andalucía y Portugal causaron el declive en Villafáfila, cesando en 1564 [76]. Los intentos de reactivación en los siglos XVIII y XIX fracasaron. En el siglo XX, desecaciones parciales para la agricultura y ganadería alteraron el sistema lagunar, secando la laguna Salina Grande en 1972 [72]. Fue recuperada en 1989 por la Junta de Castilla y León para reactivar el ecosistema. Actualmente, son Reserva Natural, albergando el 50 % de las aves acuáticas de Castilla y León y una de las mayores poblaciones de avutarda del mundo [73].

5.3. Muestreo de sedimento

Esta expedición ha constituido la primera realizada por el LRI con el objetivo de muestrear sedimento, lo que ha conllevado la aparición de ciertas dificultades técnicas a lo largo de todo el proceso, principalmente derivadas del uso del muestreador.

El muestreo se realizó el 25 de Febrero de 2025 en las coordenadas ($41^{\circ}49'51,3''N$ $5^{\circ}35'41,2''W$) en la Laguna Salina grande, posterior a una solicitud al Servicio Territorial de Medio Ambiente Salamanca. La laguna estaba llena y se procedió a muestrear en una zona de unos 40cm de profundidad, la máxima permitida por el equipo. Se busca que el punto de muestreo permanezca húmedo el mayor tiempo posible a lo largo de las estaciones, con lo que se eligió una zona bien entrada en la laguna que está comunicada directamente con su zona más profunda.

El equipo empleado fue un muestreador manual de tipo gravitatorio, consistente en un cilindro de acero de 30 cm de longitud (véase la Figura 5.3 izquierda), dentro del cual se sitúa el tubo de PVC que contendrá el sedimento.

La cámara donde se sitúa el sedimento va enroscada a una pieza también de acero que permite, a través de pasadores, utilizar distintos cabezales (véase la Figura 5.3). El cabezal para clavar, de color rojo, es un émbolo con una pesa de 5 kg en su extremo superior. El cabezal para la extracción es una T ideada para rotar el sistema y evitar la succión que se produce en el fondo al tirar bruscamente hacia arriba. De esta forma, se evitan pérdidas de sedimento.

La pieza que conecta los cabezales con la vaina de acero presenta un pequeño orificio de salida, como se observa en la figura, para evacuar el agua presente en la cámara y permitir la ascensión de la muestra durante su inserción. Por este motivo, el cabezal debe sobresalir del nivel del agua; de lo contrario, el agua penetraría constantemente y perturbaría la muestra. La limitación en la profundidad de muestreo que presenta este equipo sugiere la posibilidad de conectar el orificio de la válvula a una cámara de vacío mediante un tubo de goma para futuros muestreos.

El funcionamiento teórico es sencillo: se introduce la vaina de acero, ligeramente afilada en su extremo inferior, en el sedimento. Para ello, se emplea el cabezal gravitatorio, dejando caer la pesa repetidamente hasta alcanzar la profundidad deseada. Sin embargo, en la práctica, la acción de la gravedad resultó insuficiente. Fue necesario aplicar fuerza descendente, utilizando la pesa para percutir con insistencia. Esta observación abre la posibilidad de utilizar un cabezal de mayor peso en futuros muestreos.

Una vez alcanzado la máxima profundidad permitida por el equipo, se procede a cambiar al cabezal rotatorio. Se realizan pequeños giros simultáneamente a una presión ascendente hasta lograr la extracción completa de la vaina. Posteriormente, se coloca el equipo en posición horizontal para evitar pérdidas de material y se desenrosca la válvula para extraer el exceso de agua que pueda haber quedado en el interior del tubo.

El objetivo inicial de la expedición consistía en extraer el tubo de PVC del muestreador para sustituirlo y pro-



Figura 5.3: A la izquierda equipo de muestreo completo, cabezal gravitatorio (rojo), cabezal rotatorio (T), vaina de acero que contiene el sedimento, cierre y válvula de acero. Derecha, detalle del cierre se puede ver el orificio de salida de agua que conecta la vaina con el exterior. Imágenes propias..

ceder a la toma de muestras. Sin embargo, debido a la falta de materiales adecuados en ese momento, se optó por inmovilizar el sedimento, sellarlo con tapones de goma y trasladar la geometría completa al laboratorio. Este proceso se ilustra en la imagen 5.4.

La vaina se depositó imperturbada en un congelador, pasando allí un día completo a -18°C ; tras este proceso se saca y se deja a temperatura ambiente (23°C) hasta que el acero alcanza dicha temperatura. La extracción fue sencilla tras el calentamiento del acero se tiró del PVC con normalidad y se extrajo el testigo sin incidencias. Se observa que los últimos 3,5cm de sedimento no entraron en el tubo a causa del diseño de la vaina y se decidió incluirlos en el estudio ya que siempre estuvieron dentro de la misma y no sufrieron perturbaciones, el testigo tiene una longitud de 15,5 cm en el tubo de PVC más el resto que quedó fuera como se ve en la figura 5.4, es decir un total 19cm aprovechables; el centímetro 19-20 es un pequeño sobrante debido a la irregularidad de los bordes que se tendrá en cuenta para el estudio, aunque es una muestra de menor masa. Para extraer el testigo del PVC sin compactarlo, se realiza una hemisección con una sierra Dremel, dividiendo el sedimento en dos secciones semicilíndricas. Posteriormente, se procede a cortar en secciones de 1 cm de grosor, lo cual es posible gracias a la textura plástica del sedimento, similar a la de una arcilla, imagen 5.4.

Se observa una composición homogénea sin cambios de color, no hay insectos, se aprecia presencia de raíces en el centímetro 5-6 que son separadas para no alterar los resultados de ^{14}C , no contiene agua en exceso. La textura cambia a lo largo de los cortes estando más seco y compactado el final del testigo, este proceso queda documentado en la figura 5.4.

5.4. Muestreo de agua

Para el muestreo de agua continental se emplean tres garrafas de polietileno de alta densidad y boca ancha con capacidad de 10L y tapa obturadora. La muestra de agua se recoge de una zona suficientemente alejada de la orilla, de una profundidad aproximada de 50 cm. Se recomienda extraer el agua de una capa intermedia, que



Figura 5.4: A la izquierda base de acero del muestreador, en el interior se encuentra el tubo de PVC que contiene el sedimento. A la derecha muestras de sedimento hecha la hemisección y los tres centímetros que quedaron en la parte final del muestreador. Imágenes propias.

no esté en contacto con la superficie ni se vea afectada por el fondo, con el fin de evitar la elevación de partículas sedimentarias.

5.5. Preparación de muestras sedimentarias para espectrometría gamma

Tras la hemisección del tubo, se procede al corte de las secciones. Para ello, se emplea una espátula plana con perfil curvo que se adapta a la geometría. En el caso del sedimento libre, la hemisección se realiza con un cuchillo, y dada su textura, permite obtener secciones de 1 cm utilizando un calibre como referencia. Esta parte presenta una alta compactación, lo que facilita su manejo sin que se observe disgregación.

Cada centímetro se considera una muestra única, depositando las dos hemisecciones en un mismo papel de aluminio para pesar la masa húmeda correspondiente al centímetro en cuestión. Este procedimiento es fundamental, ya que una mayor masa implica una mayor actividad en cada muestra, lo que redundará en análisis posteriores más precisos.

Tras el pesado en húmedo, cada muestra se deposita en un crisol cerámico para proceder a su secado. Las muestras se introducen en una estufa estática a 45 °C. Se ha optado por este tipo de estufa debido a que las corrientes de aire podrían favorecer la transferencia de polvo entre muestras, y la baja temperatura busca minimizar posibles pérdidas de radionúclidos por evaporación, especialmente del ^{210}Pb , por ser el más volátil. Este proceso se puede observar en la figura A.1. Se realiza un pesado de las muestras periódicamente hasta que la masa de las mismas se estabiliza, pudiéndose establecer así la masa inicial de sedimento seco, como se muestra en la imagen derecha de la figura A.1 en el anexo A.

Cuatro días después, se constata que la masa se mantiene invariable y se procede a la separación de las muestras para cada uno de los procesos de análisis.

El último paso consiste en introducir las masas en su geometría final. En primer lugar, se procede a la disgregación y molienda del sedimento previamente seco, hasta obtener un polvo fino de grano lo más uniforme posible. Para ello, se emplea un mortero de ágata, el proceso puede observarse en la figura A.2 en el anexo A. Este mortero presenta una dureza de entre 6,5 y 7 en la escala Mohs, lo que, junto a su baja porosidad, contribuye a minimizar la contaminación entre muestras.

Se observa presencia de pequeñas piedras en los primeros centímetros (del 0-1 al 3-4) y raíces (5-6). Estas piedras se intentan moler junto con el resto de sedimento pero son demasiado duras por lo que se decide separarlas a simple vista, etiquetarlas y guardarlas.

En este proceso, la limpieza exhaustiva de todo el material y la sustitución de guantes tras la preparación de cada muestra son factores de gran importancia. Se procede al enjuague de todo el material con etanol y agua desionizada,



Figura 5.5: Proceso de llenado y compactación de masa dentro de la geometría C11. Imágenes propias.

seguido del cambio del papel protector de la mesa. El objetivo es evitar contaminaciones y obtener resultados coherentes en función del centímetro de sedimento con el que se trabaja.

La selección de la geometría de medición es crucial, puesto que el objetivo es optimizar la eficiencia de detección en función de la forma de la fuente, así como incorporar la mayor cantidad de masa posible para obtener una mayor actividad total en cada muestra, lo que repercutirá en el tiempo de medición. Para lograrlo, se busca una geometría compacta y que mantenga la muestra lo más próxima posible a los detectores.

Se busca utilizar la mayor masa posible para obtener medidas con mayor precisión estadística y que requieran un menor tiempo de medición dentro del detector de HPGe. Para seleccionar la cantidad de masa, se separan de la muestra menos pesada 3 g destinados a la medición de ^{14}C con AMS y el resto se utiliza para espectrometría gamma, restando una masa neta de aproximadamente 18,5 g. Para una medición mediante espectrometría gamma uniforme, es necesario que todas las muestras posean una densidad aparente similar, ya que la eficiencia de detección depende en gran medida de la densidad de las muestras. Las alícuotas exactas se exponen en las tablas A.2 y A.3 del anexo A.

Se selecciona la geometría C11, consistente en un cilindro de 40 mm de diámetro y 24,5 mm de altura, compuesta por polietileno de alta densidad (HDPE), como se puede observar en la figura 5.5. Esta elección se debe a su coherencia con la cantidad de masa seleccionada para la espectrometría gamma y al conocimiento previo de su geometría para el estudio de la eficiencia. Antes de utilizar cada vial es necesario enjuagar con alcohol y agua desionizada para asegurar su limpieza.

Se compacta la masa de sedimento dentro de la geometría C11 con ayuda del mortero de ágata y espátula metálica para el ajuste fino en los bordes, este proceso está retratado en la figura 5.5. El objetivo es que tanto la altura como la masa de todas las muestras sea lo más similar posible, buscando precisión y una superficie uniforme. Se añade sobre la superficie compactada una lámina de metacrilato de radio igual al de la geometría C11. Tras la compactación, se mide la altura alcanzada en tres puntos diferentes y se pesa todo el conjunto, con esto se calcula la densidad aparente y la masa neta de sedimento que se introduce finalmente al detector.

Tras la compactación se procede al sellado de las muestras. Es importante asegurar un cierre hermético para evitar la fuga del ^{222}Rn gaseoso, hijo del ^{226}Ra , en las condiciones del laboratorio. De esta manera, se asegura alcanzar el equilibrio secular entre el ^{226}Ra y el ^{214}Pb , lo que permite determinar la actividad del ^{226}Ra y, consecuentemente, la del $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ con la mayor precisión posible.

El sellado se realiza en tres etapas. En primer lugar, se cubre la muestra con una capa de parafina hasta ocupar todo el espacio disponible, la lámina de metacrilato protege la muestra (véase la Figura 5.6). A continuación, antes de la solidificación completa, se coloca la tapa, sellando la geometría por completo. En este proceso, la eficiencia se ve comprometida en aras de alcanzar el equilibrio secular. Se ha determinado en este trabajo que la eficiencia de la medición se ve afectada en su segunda cifra significativa, como se analiza con mayor detalle más adelante.

Posteriormente, se cubre la junta con pegamento Loctite, que actúa como cristalizante y cubre cualquier posible

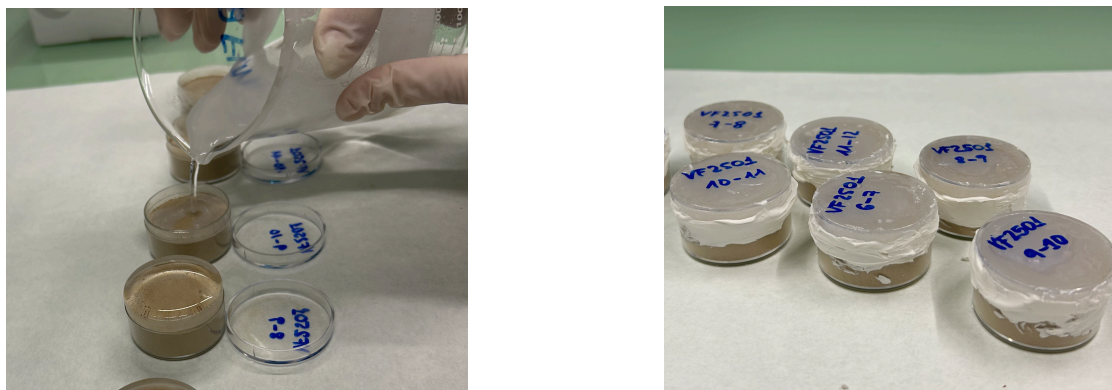


Figura 5.6: Izquierda proceso de sellado con parafina, derecha muestras selladas con parafina Loctite y silicona. Imágenes propias.

fuga en el cierre. Finalmente, se vuelve a cubrir la unión con una generosa capa de silicona, procurando que esta sea lo más uniforme posible. En la Figura 5.6 se puede observar el resultado final.

Las muestras selladas deben esperar a que se restablezca el equilibrio secular en la cadena. El crecimiento del hijo de semivida corta se rige por la ecuación:

$$N_{\text{Rn}}(t) = N_{\text{eq}} \left(1 - e^{-\lambda_{\text{Rn}} t} \right),$$

por lo que la fracción de acumulación será $f(t) = 1 - e^{-t/\tau}$. Para que $f(t)$ alcance un valor superior al 99% se requiere un tiempo de espera de $t = \frac{\ln(100)}{\ln(2)} T_{1/2}$, lo que equivale aproximadamente a siete semividas. En el caso del ^{222}Rn , cuya semivida es de $T_{1/2} = 3,8232(8)$ días, el tiempo de espera mínimo es de 28 días.

Los datos que acompañan todo el proceso de preparación de muestras sedimentarias se encuentran en las tablas A.1, A.2, A.3 en el anexo A.

5.6. Preparación de muestras de agua para espectrometría gamma

Para la preparación de muestras de agua, el primer paso es la recepción. En este procedimiento se mide la conductividad, la temperatura y el pH con la sonda MM-02. A continuación para su correcta conservación se procede a la acidificación del agua vertiendo 1 mL de HNO_3 al 70% por litro de muestra tal y como se recoge en el protocolo del LRI-D [80].

Tras este proceso se vierten 25L de muestra, utilizando un matraz aforado de categoría A en sendos vasos de precipitado y se colocan en placas calefactoras con agitación magnética y alta temperatura, inicialmente 500°C. Es fundamental que no se alcance ebullición en ninguna etapa del proceso de evaporación ya que podría salpicar muestra y volatilizar los radionúcleidos de interés. Cuando la muestra alcanza un volumen total de 1L se trasvasa a un vaso de precipitado más pequeño y continúa el proceso. Durante el trasvase se debe procurar no perder materia, para ello se hacen tres enjuagues con agua desionizada.

El objetivo inicial consistía en alcanzar un volumen de 50 mL para transferir la muestra a la geometría B11, estándar para el análisis de aguas mediante espectrometría gamma. Sin embargo, al alcanzar un volumen de 100 mL, se obtuvo una disolución muy viscosa, con deposición de residuos orgánicos, causa del color amarillo (véase la figura A.3 en el anexo A) y olor a podrido. Para disminuir el volumen, se procede a digerir los residuos mediante la aportación de ácido nítrico al 70% y la acción de la temperatura. Se consigue eliminar el residuo orgánico, lo que evidencia que lo que permanece son sales inorgánicas de color blanco, figura A.3, que impiden reducir el volumen. Por lo tanto, se opta por realizar una medición del residuo seco en una geometría mayor que permita contener la totalidad de la muestra. Es muy notable la cantidad de sales que se obtienen de tan solo 25L de agua.

Se procede a disgregar la muestra en un crisol de secado que se traslada a estufa a 45 °C, siguiendo desde aquí el

mismo procedimiento que para la muestra sedimentaria. Una vez que la masa de la muestra se mantiene constante tras varios días de medición, se considera seca. A continuación, se obtiene una muestra cristalina de gran tamaño como se puede ver en la figura A.4 en el anexo A, esta se tritura en mortero de ágata y se compacta en una geometría C21. Para esta muestra la geometría C21 es la más idónea ya que se quería aprovechar toda la masa disponible, que es de unos 150 g (datos de la preparación en las tablas A.1.5, A.1.5, A.1.5 del anexo A). La geometría C21 es un cilindro de XXcm de diametro y XXcm de alto de polietileno de alta densidad (HDPE). Finalmente, se realiza el triple sellado con parafina, Loctite y silicona para medir la muestra en equilibrio, el resultado final que puede verse en la imagen A.4. Se esperan 28 días para su medida en equilibrio secular.

5.7. Preparación de muestras para AMS

En primer lugar antes de la preparación de muestras se debe hacer una prueba para estimar el contenido en carbono orgánico (OC) de las muestras, ya que para su correcta medida debe llegar al final de la línea aceleradora 1mg de carbono.

5.7.1. Elección de alícuotas

Se seleccionan cinco muestras distribuidas a lo largo del sedimento para obtener un resultado del % en OC lo más representativo posible, que permita determinar las alícuotas de masa para las muestras definitivas.

Tras esta medición, se obtienen los resultados del cuadro 5.1. Se observa dispersión en la medición del OC, por lo que se toma un valor conservador: 0,4 %. En consecuencia, las muestras deben ser de al menos 250 mg, por lo que se deben tomar dos submuestras de 125 mg. Además, se opta por preparar tres réplicas de cada muestra, las cuales seguirán el proceso descrito a continuación.

Sección	Masa ($\pm 0,01$) mg	% OC
1-2	68,93	0,26
2-4	60,21	0,58
2-3	55,61	0,57
5-4	54,75	0,49
5-4	61,30	0,37

Cuadro 5.1: Resultados tras la medición de % OC en muestras preliminares.

5.7.2. Fumigación y medida del % de carbono orgánico mediante EA

Es necesario eliminar el carbono inorgánico de las muestras, ya que este no proporciona información relevante sobre la cantidad de ^{14}C asimilada por un organismo. Para ello, existen dos métodos: el enjuague ácido y la fumigación [81]. El enjuague ácido consiste en la aplicación directa de un ácido concentrado, como HCl 1M, seguida de un enjuague con agua desionizada para neutralizar la muestra. Por otro lado, la fumigación ácida consiste en mantener las muestras en una atmósfera ácida controlada durante un tiempo determinado, y posteriormente, exponerlas a una atmósfera básica para su neutralización.

En este trabajo se ha optado por el segundo método, ya que la fumigación tiende a preservar mejor la integridad del material orgánico en muestras con bajo contenido de carbonato [82], evitando la pérdida de fracciones jóvenes enriquecidas en ^{14}C que suelen eliminarse durante los enjuagues ácidos.

□ **Pesaje de muestras:** se realiza en el laboratorio limpio donde se encuentra la balanza de alta precisión, en sala acristalada para evitar la influencia de corrientes de aire. En primer lugar, se pesa una cápsula de plata previamente muflada, utilizando plata ya que no reacciona al HCl. Se tara la balanza y se procede a la introducción de la muestra con espátula fina. Es importante limpiar todo el material al cambiar de muestra y realizar un cambio de guante. En caso de que parte de muestra caiga dentro de la balanza, se debe soplar con un compresor de aire. Las cápsulas de

plata se depositan sobre placas Petri previamente mufladas y se rotulan con el código correspondiente. Se registra su masa y posición (véase la tabla adjunta) en la placa. Pueden verse las muestras rotuladas en la imagen A.7, en el anexo A. (Datos de la preparación de las muestras disponibles en la tabla A.7).

❑ **Atmósfera ácida:** tras la caracterización de las muestras, se introduce en la base del desecador un volumen de 200 mL de HCl al 35 %. Se coloca el separador cerámico y se deposita la placa Petri encima. A continuación, se coloca la tapa y se sella el desecador con cinta aislante. Una vez sellado, se traslada a una estufa a 60°C durante cuatro días, imagen del resultado en A.7. Este procedimiento asegura el intercambio de vapores ácidos con las muestras.

❑ **Atmósfera básica:** se procede a abrir el desecador, asegurándose de retirar completamente la cinta aislante. Se desecha el ácido y se introduce una placa Petri previamente muflada, con un fondo de NaOH granulado para neutralizar las muestras, imagen A.11. Se sella el desecador y se retorna a la estufa a 60°C durante cuatro días adicionales.

❑ **Reencapsulado:** una vez finalizada la fumigación, las cápsulas de plata que contienen las muestras se vuelven muy frágiles. Por ello, se procede a reencapsular las muestras en cápsulas de estaño, lo que presenta beneficios en cuanto a la combustión.

❑ **Prensado:** A continuación, se compacta la muestra en prensa hasta obtener pastillas de estaño con tamaño y forma uniformes. Finalmente, estas pastillas se introducen en un recipiente *Eppendorf* que contiene un rótulo con la identificación de cada muestra. Pueden verse tanto el resultado como los materiales en la imagen siguiente.

❑ **Medición con EA:** para la medición del carbono orgánico se emplea el equipo EA, descrito en el capítulo 5. Inicialmente, se realiza una prueba de presión de He para verificar y ajustar la misma al nivel de operación (1,5 bares manométricos), y comprobar que durante los siguientes 336 segundos no se produzca una pérdida superior a 20 mbares. Cabe destacar que se ha requerido la regulación de la presión en varias ocasiones debido a la complejidad de esta prueba. Asimismo, se deben verificar los valores correctos de presión y flujo, recogidos en la tabla 5.2.

Se preparan tres muestras de acetanilina, con una masa aproximada de 2 mg, que se pesan en cápsulas de plata y se encapsulan en cápsulas de estaño. Estas muestras se utilizan como referencia para la medición del EA. Con estas muestras de masa conocida, se calcula el factor de día.

Previo al inicio de las mediciones, se deben programar al menos cuatro ciclos de limpieza para garantizar la ausencia de contaminación por nitrógeno o carbono en el EA. Posteriormente, se procederá a la colocación de las muestras de acetanilida y, finalmente, las muestras a analizar. Los resultados de estas medidas para todas las muestras que se preparan se encuentran en las tablas A.31 - A.35 en el anexo A.

Gas	Presión (bar)	Flujo (ml/min)
He	1.5	180
O ₂ (standby)	2.0	10–15
O ₂ (flushing)	—	28–30
TCD	—	180

Cuadro 5.2: Parámetros óptimos de presión y flujo en el EA

❑ **Grafitización en el sistema AGE3:** el CO₂ generado en el EA es transferido al sistema AGE3, donde se somete a un proceso de reducción en un reactor a 580 °C bajo una atmósfera de hidrógeno. En este procedimiento, con hierro como catalizador, el CO₂ se convierte primero en CO y posteriormente en carbono, liberando moléculas de H₂O en cada etapa de la reacción. Finalmente, los gases y el agua resultantes son extraídos por vacío y el sistema se purga con argón. Las muestras al salir del sistema se encuentran dentro de tubos de vidrio, imagen A.11 izquierda.

❑ **Prensado y envasado:** inmediatamente después de su grafitización, se deben prensar y envasar las muestras

con el fin de reducir al mínimo el riesgo de contaminación. Para este proceso se emplea un sistema neumático que aplica presión mediante una esfera metálica colocada sobre la muestra, imagen A.11, ya ubicada en el cátodo de medida. En la imagen A.1.3 izquierda se muestra la pieza que inmoviliza el cátodo para su prensado junto con las esferas de prensado. La esfera actúa como barrera, evitando el contacto directo de la aguja de la prensa con la muestra. Una vez prensados, los cátodos se introducen en tubos previamente sometidos a un proceso de muflado. Posteriormente, estos tubos se sellan en un envoltorio plástico del que se extrae el aire, y se conservan en dichas condiciones hasta el momento de realizar la medición, imagen A.1.3 derecha.

□ **Muestras de referencia y fondo:** junto con las muestras sedimentarias se deben medir muestras del patrón estándar (OXII) y muestras de fondo de ácido ftálico (Pha) para obtener la $F^{14}C$ ya corregida por fondo, fraccionamiento isotópico y normalizada al estándar; que es el valor que entrega el sistema MICADAS. Estas muestras adicionales se pesan y se grafitizan, no es necesario el proceso de fumigado. La información sobre las masas seleccionadas para cada muestra se encuentra en la tabla A.8 en el anexo A. Finalmente son prensadas en cátodos y ensambladas en el carrusel junto con las muestras problema, en la imagen A.13 se muestra el carrusel montado con la totalidad de las muestras, incluyendo estándares y fondo. En la tabla A.29 del anexo A se recoge la ordenación de todas las muestras en el carrusel de medida.

Capítulo 6

Marcha experimental y resultados

6.1. Medida del testigo VF2501 por espectrometría gamma en Mazinger

Se procede a la medida de las fuentes en el equipo Mazinger, tras introducir la primera muestra se hicieron análisis del espectro cada dos días para comprobar cual es el tiempo de medida requerido para la muestra. Tras dos días de medida se tenía una incertidumbre aún notable en la actividad de ^{210}Pb , además se observa poca actividad de $^{210}\text{Pb}_{xs}$, dato extraño ya que para empezar se mide el techo del sedimento que es la muestra más joven. La conclusión fue que se necesitarían de 5 a 7 días para obtener una incertidumbre lo suficientemente pequeña.

6.1.1. Determinación MC de la curva de calibración de eficiencia en función de la energía

Previamente a la determinación de la actividad mediante el análisis de espectros, es preciso obtener una curva de eficiencia vigente en el rango de energías de trabajo, que en este caso es de [26, 1460] KeV. La importancia y necesidad de esta calibración ya ha sido discutida en el capítulo 3. En este trabajo se utiliza una simulación Monte Carlo con *Geant4* realizada y verificada por el equipo del LRI-D. Es necesaria una simulación individual para cada muestra, ya que existe variabilidad en la composición química, la densidad y la geometría (altura/volumen) de las fuentes. Estos factores influyen de manera significativa en la eficiencia, especialmente en el caso de fotones gamma de baja energía, de interés en este trabajo, ya que la emisión gamma del ^{210}Pb es a 46,54 KeV. Dichos fotones pueden ser absorbidos parcial o totalmente por la muestra antes de alcanzar el detector. Como se indicó anteriormente, a menor energía del fotón aumenta la probabilidad de absorción fotoeléctrica. Este proceso puede ocurrir dentro de la matriz y su probabilidad depende en gran medida de la composición química del material, ya que está relacionada con el número atómico del medio. Durante el desarrollo del trabajo se encontraron dificultades relacionadas con la determinación de la eficiencia, requiriendo una comprobación experimental de la misma en el caso de 46,54 KeV, que se exponen a continuación.

Caracterización de la matriz

En relación con la matriz, la simulación permite modificar parámetros generales como la densidad y la altura de la muestra, así como específicos, como la composición química de la misma. Durante la preparación de las muestras, se busca que todas presenten una densidad aparente lo más similar posible, con el fin de que las condiciones de medición sean lo más homogéneas.

Inicialmente, se simuló una eficiencia basada en la composición química habitual de un sedimento estándar. Sin embargo, esta simulación sobreestimaba la eficiencia para las emisiones de baja energía, lo que se sospechaba debido a la diferencia entre la actividad medida del ^{210}Pb y el ^{226}Ra , la cual era excesivamente acusada. Por este motivo, se optó por realizar un análisis químico del sedimento, que se encuentra en el anexo A, tabla A.9. No se observan una composición química extraña para una matriz sedimentaria, la mayor parte de sedimento esta formada por SiO_2 , entorno al 40 %, se observa contenido significativo en óxidos de hierro y aluminio para las secciones más profundas

de entre el 6 % y el 10 % respectivamente. Dada la diferencia en los resultados del análisis entre la muestra del techo y las siguientes se toma una media ponderada según la profundidad. Teniendo esto en cuenta la eficiencia mejoró los resultados, permitiendo aumentar la actividad medida de ^{210}Pb , sin embargo el comportamiento de los perfiles en este punto sigue estando lejos de lo que se esperaba, al haber solo tres muestras que contengan $^{210}\text{Pb}_{xs}$, por ello se optó por hacer una comprobación experimental de la eficiencia para la energía de 46,54 KeV.

Validación experimental de la eficiencia a 46,54 KeV

La técnica consiste en marcar una fuente con una masa determinada de patrón de actividad de ^{210}Pb conocida y verificar, mediante la medición directa de N utilizando la ecuación 3.9, que la eficiencia es la correcta. Para marcar se escoge una fuente con poca actividad de ^{210}Pb , como el centímetro (8-9) y se marca con el patrón de ^{210}Pb del LRI-D certificado por Eckert & Ziegler Isotope Products con fecha de 1/Febrero/2025 y una concentración de actividad de 0,2742 KBq/g con incertidumbre de un 4 % para un intervalo de confianza del 99 %.

El primer paso consistió en la apertura de la muestra previamente sellada. Para ello, fue necesario recurrir al uso de una sierra tipo Dremel debido a la solidez que presentaba la geometría una vez sellada. A continuación con una pipeta automática con boquilla desechable se escoge un volumen de patrón suficiente y equivalente a la masa estimada para marcar la fuente. En este caso se estimó necesario necesario una masa de 0,24 g. El patrón se deposita en un recipiente cónico plástico, también desechable. La boquilla de la pipeta y todo otro material que haya estado en contacto directo con el patrón debe desecharse en un contenedor de residuos de riesgo, el material utilizado se encuentra en la imagen A.14, en el anexo A.

A continuación con un pignómetro, imagen A.14 derecha, se asimila el volumen de patrón escogido y se realiza una pesada de precisión. Para verter el patrón sobre la fuente, se selecciona una nueva geometría C11 limpia y vacía donde se depositará la muestra previamente abierta capa a capa. Cada capa debe tener un grosor de unos milímetros, en cada una ellas se depositan entre tres y cuatro gotas de patrón. Posteriormente, se cubren con más muestra y se repite el proceso. Se recomienda que las gotas no se depositen siempre en la misma zona para asegurar una distribución homogénea del patrón en toda la muestra. Una vez finalizado el proceso se hace una pesada de precisión del pignómetro para anotar la masa de patrón que se ha introducido en la muestra. El pignómetro también debe desecharse en el contenedor de residuos peligrosos.

Esta muestra debe someterse a secado en estufa a 45°C hasta verificar la evaporación completa de la matriz líquida del patrón, asegurando la retención del ^{210}Pb añadido. Una vez seca, la muestra se muele en un mortero de ágata para obtener un polvo homogéneo. Este paso es de gran importancia para garantizar la correcta distribución del patrón en toda la muestra, factor determinante para la medición de la eficiencia real, la cual está condicionada por la geometría. En la imagen A.15, recogida en el anexo A, pueden verse los gránulos de sedimento formados por las gotas ya secas del patrón, de no haber molido de nuevo la muestra se habrían tenido resultados afectados.

Una vez molida la muestra se pasa a su compactación, de forma estándar tal como se explica en el capítulo anterior, tratando de perder la menor masa posible y de obtener la misma densidad que la muestra original, para poder hacer una comparación con la eficiencia simulada lo más certera posible. Se realiza el triple sellado de parafina, loctite y silicona, aunque en este caso no es necesario alcanzar el equilibrio secular $^{226}\text{Ra} - ^{214}\text{Pb}$ pues solo interesa analizar la emisión de 46,54 KeV, se replica para medir la eficiencia experimental en las mismas condiciones que las simuladas. Finalmente se pasa a medir en Mazinger como una muestra más. Tan solo son necesarios dos días de medida ya que la actividad de ^{210}Pb es notablemente mayor que la de antes del marcaje. Los resultados de esta verificación, tablas 6.1 y 6.2, mostraron que existía una discrepancia entre la eficiencia experimental y la eficiencia MC, debido a que en la simulación no se había tenido en cuenta que las fuentes se sellan con parafina, que cubre todo el volumen de la geometría que no está ocupado por la propia muestra. Tras un ajuste en la simulación se obtiene un resultado coherente para la eficiencia, en adelante se utiliza la eficiencia MC con parafina (ϵ_{MC}^{cp}).

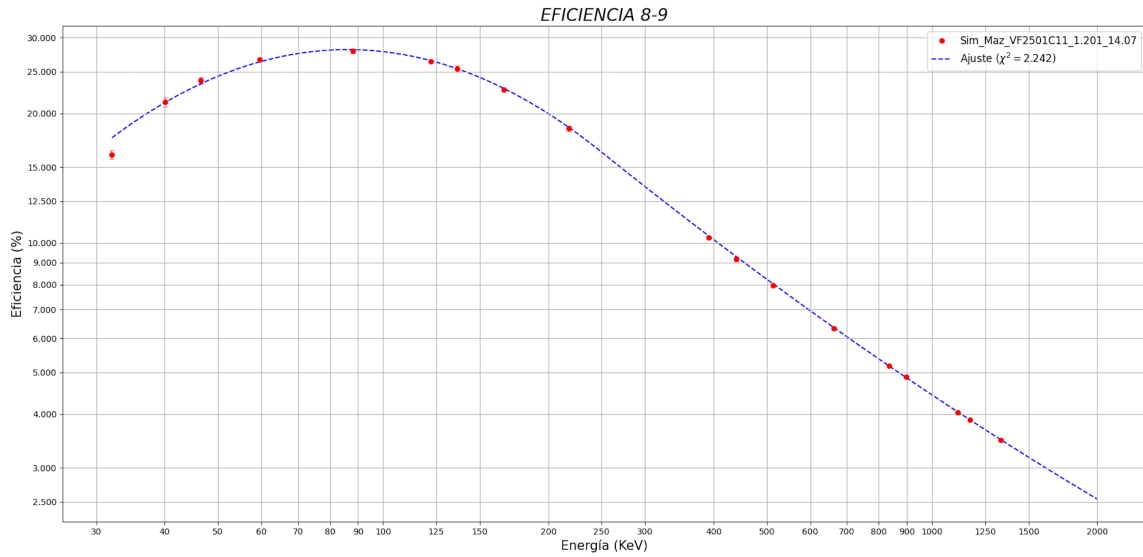


Figura 6.1: Curva de eficiencia MC con parafina $\epsilon_{MC}^{cp}(E)$. Esta es la curva para la muestra VF2501-8-9.

Cálculo de ϵ experimental a 46,54 KeV	
$N_{fuente+patron}$	119496.9(1779)
Tiempo de medida	181238 s
N_{fuente}	1185.5(251)
Tiempo de medida	606053 s
A_{patron}	65.38(105) Bq
M_{patron}	242.63 (1) mg
$I_{(46,539keV)}$	0.0425(4)
$N_{patron} = N_{fuente+patron} - N_{fuente}$	118311.3(1797)
ϵ_{exp}	0.2348(79)

Cuadro 6.1: Cálculo de la eficiencia experimental. $N_{fuente+patron}$ número de cuentas del pico 46,54 KeV de la fuente marcada. N_{fuente} número de cuentas del pico 46,54 KeV de la fuente original sin marcar. M_{patron} masa de patrón añadida. $I_{(46,539keV)}$ intensidad de emisión.

Comparación de ϵ	valor	t de student
ϵ_{exp}	0.2348(79)	—
ϵ_{MC}^{sp}	0.2573(46)	2.4613
ϵ_{MC}^{cp}	0.2385(43)	0.4114

Cuadro 6.2: Comparación de las eficiencias experimentales y Monte Carlo. ϵ_{exp} eficiencia experimental, ϵ_{MC}^{sp} eficiencia monte-carlo sin parafina, ϵ_{MC}^{cp} con parafina.

Se muestra la curva de eficiencia definitiva para la medida (8-9) como ejemplo. El resto de curvas no presentan variaciones significativas respecto a esta, aunque son necesarias para la obtención de actividades con el nivel de precisión adecuado para medidas de radiación natural. Se incluyen las eficiencias en función de la energía utilizadas en las tablas A.10-A.21 del anexo A.

6.1.2. Análisis de espectros con software GALEA

El análisis de los espectros gamma se lleva a cabo mediante el programa Galea, software propio del LRI-D [85]. Este software implementa una metodología para descomponer un espectro medido en sus componentes fundamentales y cuantificar las actividades de los radionúclidos presentes. La metodología fue propuesta originalmente por Quintana y Fernández en 1998 [83] [84]; se basa en dos elementos principales: la determinación precisa del fondo continuo del espectro mediante el algoritmo COSPAJ, y el ajuste global de los picos de energía completa sobre el espectro una vez sustraído ese fondo continuo. A continuación se enumeran las etapas esenciales de este procedimiento.

① **Precalibración de energía:** se identifican picos conocidos, al menos tres, que cubran el rango de energía al completo. En este caso se tomaron línea de ^{40}K (1460,8 KeV) al final del espectro, electrones provenientes de la aniquilación e^+e^- en mita del espectro (511 KeV), seguidos de ^{208}Tl (583,2) y ^{214}Bi (609,3 KeV); para precalibración en baja energía se toma el ^{210}Pb en 46,54 KeV. Así se corrige cualquier corrimiento del canal en relación a la energía.

② **Estimación del continuo:** para el análisis se determina el componente continuo $C(E)$ del espectro, asociado al fondo generado por la dispersión Compton, la radiación ambiental y otros procesos de naturaleza continua. El algoritmo COSPAJ examina el espectro localizando las zonas libres de picos evidentes (regiones de valle) y, a partir de esos puntos mínimos, construye un ajuste suavizado que representa $C(E)$. De esta manera se obtiene una función que describe la forma del continuo dentro del intervalo de energías considerado, puede verse en la figura 6.2. En la práctica se varían los parámetros COFO, la cota de búsqueda de los canales de fondo y COPI, la cota de búsqueda de los picos y *manphe*, a diferentes rangos de canales. En ocasiones es necesario hacer modificaciones en intervalos de canales pequeños por irregularidades locales del espectro.

③ **Sustracción del fondo:** una vez estimado el continuo $C(E)$, éste se resta del espectro bruto medido $S(E)$, lo que permite obtener el espectro neto $S_{\text{net}}(E)$ compuesto únicamente por las contribuciones discretas. De manera resumida:

$$S_{\text{net}}(E) = S(E) - C(E)$$

donde $S(E)$ representa la distribución original de cuentas y $C(E)$ corresponde al fondo continuo calculado. Con esta sustracción, los picos de absorción total quedan definidos sobre una línea de fondo.

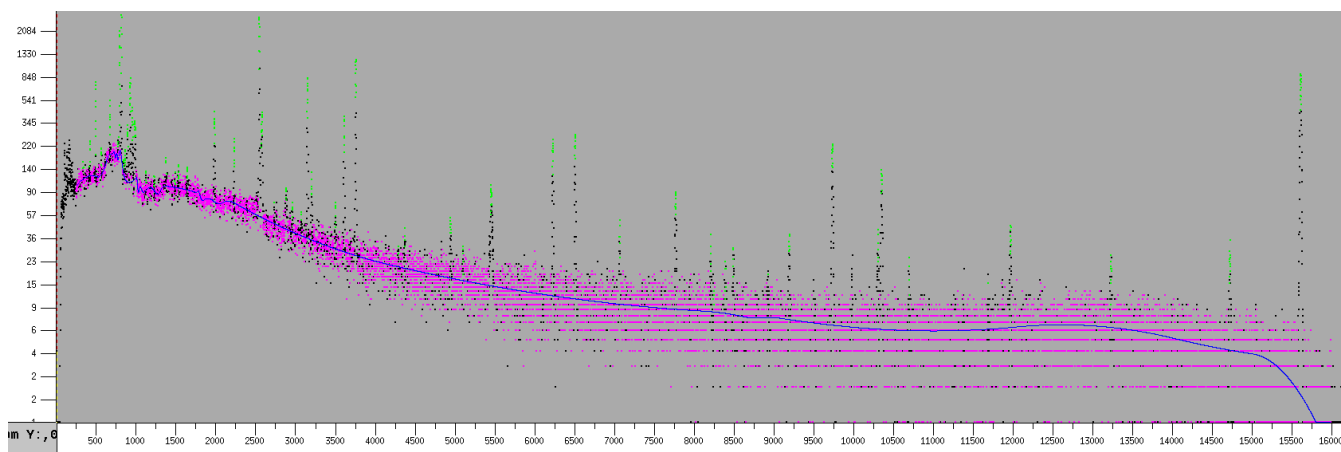


Figura 6.2: Espectro completo en Galea tras la determinación y ajuste del fondo continuo (azul). En rosa los puntos asignados al fondo continuo, en verde los puntos identificados como picos, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

④ **Detección de picos:** sobre el espectro neto $S_{\text{net}}(E)$ se procede a la localización de los fotopicos. El código

Galea detecta máximos locales relevantes y establece intervalos energéticos en torno a cada uno, de manera que cada intervalo contiene un único pico aislado o un multiplete, estos picos aparecen en verde en la imagen 6.2.

⑤ **Calibración de parámetros de forma:** es una calibración de la relación Canal-Energía, Canal- σ y Canal- τ . Es conveniente seleccionar los picos con mejor estadística y conformación a lo largo de todo el rango de energía. A partir de estos ajustes, se toman los valores de inicialización para el ajuste de los picos en la etapa de búsqueda. Se incluyen en esta etapa los picos usados para la precalibración y generalmente los picos de 242,00 keV, 295,22 keV y 351,93 keV del ^{214}Pb , 338,32 keV y 968,96 keV del ^{228}Ac y 583,19 keV del ^{208}Tl , aunque todo depende de la situación particular de cada espectro.

⑥ **Busqueda de picos:** Galea identifica todos los picos presentes en el espectro, se apoya en la librería interna NATURLIB [86], que incluye las energías y probabilidades de emisión γ de los radionúclidos naturales con probabilidad mayor al 0.01 % y algunos núcleos artificiales comúnmente presentes.

⑦ **Ajuste de los picos:** cada pico o multiplete identificado se ajusta mediante una función analítica que describe la forma de los picos en detectores HPGe. En particular, se emplea una función compuesta dada por la convolución de una distribución exponencial decreciente con una distribución Gaussiana, la cual modela la forma asimétrica de los picos con cola hacia bajas energías debido a efectos de escape de carga, recombinación incompleta u otros fenómenos. Para un pico centrado en la energía E_0 , con resolución σ y parámetro de cola τ , la forma se expresa como la convolución:

$$P(E) = A \int_0^{\infty} \frac{1}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[-\frac{(E - E_0 - t)^2}{2\sigma^2}\right] dt \quad (6.1)$$

En esta expresión, A es una constante de normalización relacionada con el área total del pico. La función describe un fotopico con una cola exponencial hacia bajas energías. El ajuste de esta forma se realiza numéricamente, no analíticamente. El software Galea usa optimización global con algoritmos genéticos para encontrar los valores óptimos de E_0 , σ , τ y A , incluso en multipletes. Estos parámetros iniciales se mejoran con métodos de mínimos cuadrados no lineales, como el algoritmo de Levenberg-Marquardt, para describir con precisión la forma del pico en datos experimentales.

⑧ **Nivel de decisión:** se aplica el ya mencionado criterio de Currie [26], calculando el límite de decisión L_c correspondiente a un nivel de confianza establecido. Aquellos picos cuya área neta ajustada no supere de manera significativa las fluctuaciones del fondo, es decir, que se ubiquen por debajo de L_c , se descartan por carecer de confiabilidad estadística. Esta etapa asegura que solo se consideren señales reales en el espectro final. Si se excluye un pico espurio, se puede ajustar nuevamente el intervalo afectado para confirmar que el continuo local está bien representado.

⑨ **Cálculo de actividades:** con los picos validados y ajustados, el programa estima sus áreas netas, magnitudes directamente proporcionales a la actividad de los radionúclidos emisores, ecuación 3.9. A través de la calibración de eficiencia del detector, y aplicando en caso necesario correcciones por coincidencias verdaderas (TCS) y por autoatenuación, Galea convierte estas áreas en actividades absolutas o concentraciones, constituyendo el resultado final del análisis. En el caso de emisión única se utiliza 3.9, mientras que si se obtiene el valor de la actividad mediante distintas emisiones, se procede tanto mediante la media ponderada:

$$\bar{A} = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma^2(A_i)} A_i}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma^2(A_i)}}, \quad \sigma_1(\bar{A}) = \left(\sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma^2(A_i)}} \right)^{-1}, \quad \sigma_2(\bar{A}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma^2(A_i)} (A_i - \bar{A})^2}{(n-1) \sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma^2(A_i)}}}. \quad (6.2)$$

donde $\sigma_1(\bar{A})$ es la incertidumbre interna de la actividad media y $\sigma_2(\bar{A})$ la incertidumbre externa, siendo la incertidumbre de la actividad media el valor más alto de ellas.

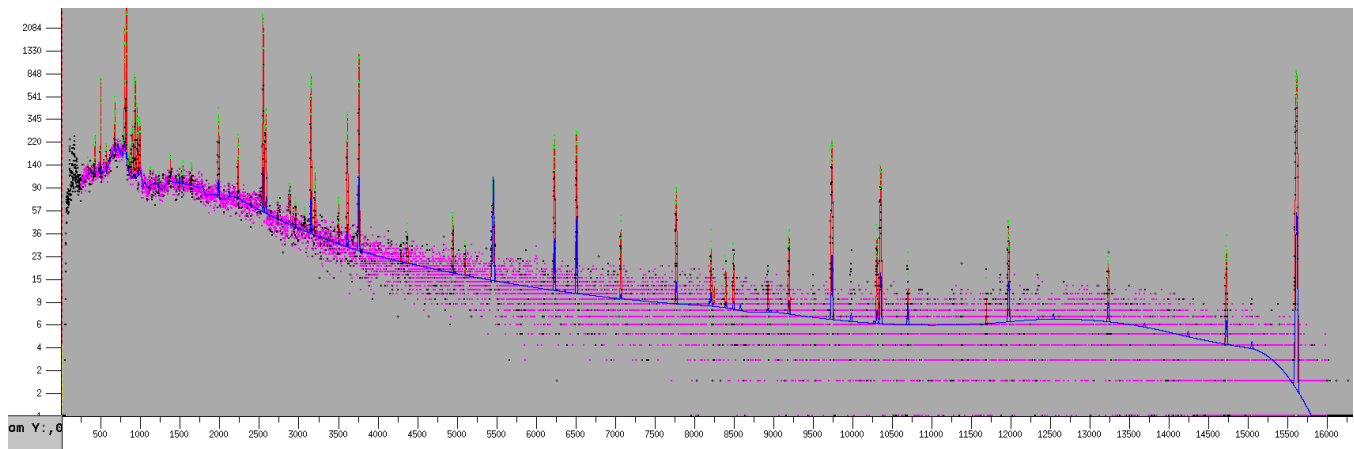


Figura 6.3: Espectro completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

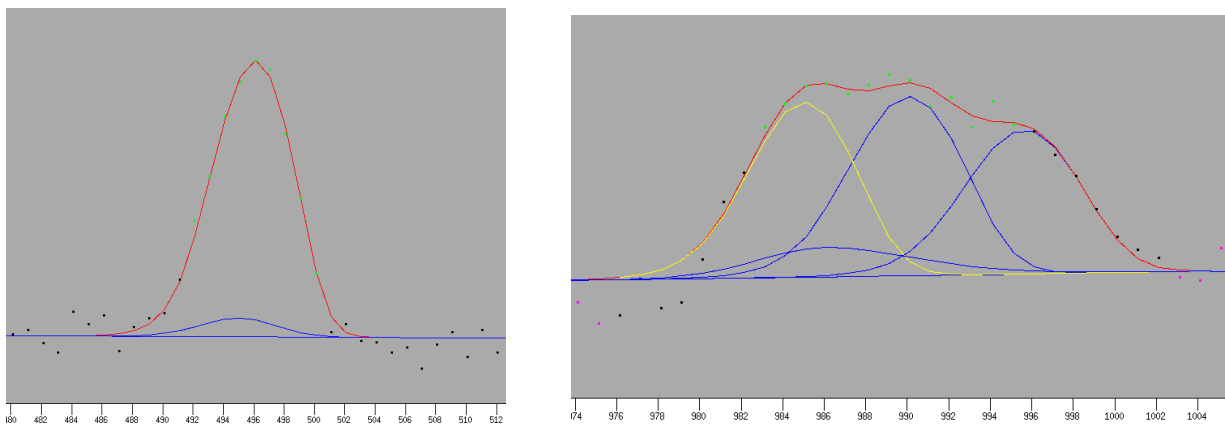


Figura 6.4: Izquierda, fuente marcada seca sin disgregar. Derecha, fuente marcada seca disgregada. Imágenes propias.

Se incluyen imágenes de todos los espectros analizados mediante Galea en el anexo A. Imágenes A.16-A.28.

6.1.3. Determinación de las actividades de radionúclidos de interés

○ ^{210}Pb : se determina su actividad de forma directa a partir de su emisión a 46,54 KeV con intensidad 4,252 %. Se muestra en la imagen 6.4 izquierda el pico ajustado mediante el programa Galea.

○ ^{238}U : el cálculo de su actividad no puede realizarse a partir de su emisión propia a 49.55 keV, debido a que su baja intensidad, tabla 6.3, no es distinguible del continuo del espectro. En su lugar se asume que existe equilibrio secular con su hijo ^{234}Th de manera que las actividades de ambos núcleos son iguales. El ^{234}Th tiene múltiples emisiones, cuadro 6.3, se muestra una imagen del multiplete de las emisiones gemelas del ^{234}Th con el rayo X del ^{228}Ac a 93,35 KeV, imagen 6.4. Para calcular la actividad final, se requiere una media ponderada por la incertidumbre del valor obtenido a partir de las emisiones del doblete, con la actividad calculada a partir de la emisión de 63,3 keV según las expresiones 6.2.

○ ^{235}U : en primer lugar se obtiene un valor inicial de la actividad a partir de la determinación de la del ^{238}U

Núcleo	E (keV)	I (%)	CSC	T _{1/2} (días)
²⁴¹ Am	59.54	35.92(17)	No	158000(220)
¹³⁷ Cs	661.66	85.01(20)	No	10964(8)
⁴⁰ K	1460.82	10.55(11)	No	456,7(11) × 10 ⁹
²³⁵ U	143.77	10.94(6)	Sí	257140(370)
	163.36	5.08(3)	No	
	185.72	57.0(3)	No	
	205.32	5.02(3)	No	
²³⁸ U	49.55	0.0697(26)	No	1,6320(18) × 10 ¹²
	113.50	0.0174(47)	No	
²³⁴ Th	63.30	3.75(8)	No	24.10(3)
	92.38	2.18(19)	No	
	92.80	2.15(19)	No	
²³⁴ U	53.20	0.1253(40)	No	89670(220)
	120.90	0.0386(32)	No	
²²⁶ Ra	186.21	3.555(19)	No	584400(2600)
²¹⁴ Pb	242.00	7.268(22)	Sí	0.018692(31)
	295.22	18.414(36)	No	
	351.93	35.60(77)	No	
²¹⁴ Bi	609.31	45.49(19)	Sí	0.013750(69)
²¹⁰ Pb	46.54	4.252(40)	No	8120(44)
²³² Th	63.81	0.259(15)	No	5,121(22) × 10 ¹²
	140.88	0.021(6)	No	
²²⁸ Ac	338.32	11.4(4)	Sí	0.2563(13)
	911.20	26.2(8)	Sí	
	968.96	15.9(5)	Sí	
²¹² Pb	238.63	43.6(5)	No	0.17733(16)
²¹² Bi	727.33	7.1(3)	Sí	0.042042(42)
²⁰⁸ Tl	583.19	85.0(3)	Sí	0.0021236(42)

Cuadro 6.3: Emisiones principales que se pueden observar en los espectros y sus características. Se incluye cuales deben ser corregidas por efectos de suma en coincidencia.

mediante su relación isotópica:

$$s = \frac{A_{235}}{A_{238}} = 0,04603(9).$$

Con este resultado y los valores derivados de sus emisiones, se realizan dos estimaciones: la primera incluye todas las energías registradas, mientras que en la segunda se descarta el pico de 185,72 keV, ya que proviene de la deconvolución de la línea de 186,21 keV correspondiente al ²²⁶Ra. Determinar bien el valor de la actividad del ²³⁵U es importante pues afectará a la determinación de la actividad del ²²⁶Ra fundamental en la datación.

○ ²²⁶Ra: la emisión principal, de 186,21 keV, se encuentra en interferencia con la emisión de 185,72 keV del ²³⁵U, cuadro 6.3, lo que dificulta la correcta determinación de ambos núclidos a partir de dichas emisiones. Para obtener la mejor estimación posible de su actividad se realizan tres determinaciones independientes:

1. Medida directa de la actividad obtenido a partir de su emisión de 186,21 keV mediante la deconvolución con ²³⁵U, tal como se puede ver en la imagen 6.5. En este trabajo se observa que dicho valor es inferior al esperado, puesto que al compararlo posteriormente con la actividad de ²¹⁴Pb, esta siempre resultaba superior, caso imposible; por lo que se descarta.
2. Valor calculado a partir de las cuentas totales en la interferencia con el pico de 185,72 keV del ²³⁵U. A este valor se le sustraen las cuentas debidas al fondo (U_{fondo}) y a la emisión del ²³⁵U. Estas últimas se obtienen

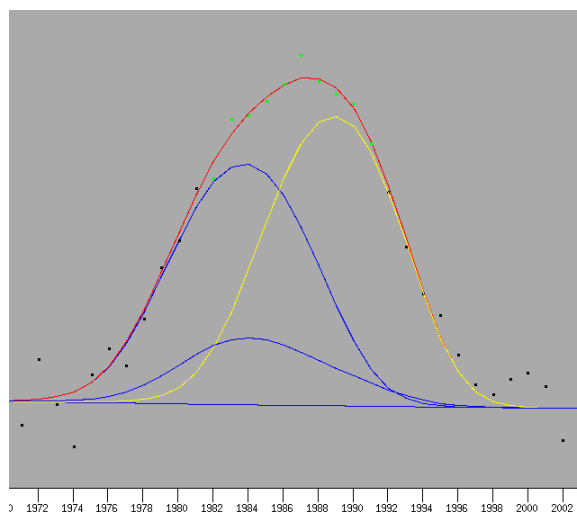


Figura 6.5: Ajuste del doblete 185,72 keV ^{235}U (azul) y 186,21 keV ^{226}Ra (amarillo) con Galea. En rojo el ajuste del doblete, el pico residual en azul es de fondo. Imagen propia.

utilizando la segunda determinación de actividad del ^{235}U :

$$N_{235} = A_{235} \cdot I_{235} \epsilon_{235} \cdot t, \quad N_{226} = N - N_{\text{fondo}} - N_{235}, \quad \rightarrow A_{226} = \frac{N_{226}}{I_{226} \cdot \epsilon_{226} \cdot t}$$

En este trabajo se determina esta actividad con un valor relativamente coherente que se encuentra por encima del ^{214}Pb , en casi todos los puntos, y muestra un perfil similar. Lo que sí de muestra este valor es que se logra el equilibrio secular con el ^{214}Pb .

3. Valor a partir del ^{214}Pb , asumiendo equilibrio secular entre ambos núclidos gracias al sellado de las fuentes. La actividad se calcula mediante una media ponderada de las emisiones a 295,22 keV y 351,93 keV, descartando la de 242,00 keV al requerir corrección de coincidencias (CSC).

De las tres posibles determinaciones, la opción más lógica es seleccionar el valor con menor incertidumbre. Por ello se opta por elegir el valor obtenido a partir de la actividad del ^{214}Pb , dado que la medición directa está infravalorada y la obtenida a partir de las cuentas de ^{235}U presenta mayor incertidumbre e incoherencias en algunas secciones del sedimento.

Respecto a la actividad final del ^{235}U , la elección del valor dependerá de la incertidumbre asociada a la determinación del ^{226}Ra . Si la estimación directa de este último muestra una incertidumbre inferior a la obtenida mediante el recuento total, se considerará el valor del ^{235}U que incorpora el pico de 185,72 keV. En caso contrario, cuando la incertidumbre de la determinación directa sea mayor, se adoptará la estimación que lo descarta.

○ ^{228}Ra : la determinación de la actividad mediante sus propias emisiones resulta muy complicada dada sus bajas energías e intensidades (su emisión principal 13,52 KeV 1,6%). De nuevo se asume equilibrio secular con su hijo, en este caso el ^{228}Ac que tiene tres emisiones principales, cuadro 6.3. Para determinar la actividad se hace la media ponderada entre estas tres, todas las emisiones del ^{228}Ac requieren de CSC, por lo que la actividad determinada será inferior a la real. Esto no interfiere en ningún cálculo posterior, pues esta determinación solo es de utilidad en la observación del perfil de actividades con lo que no se juzga necesario aplicarlas.

○ ^{224}Ra : su actividad puede determinarse a partir de su propia emisión; sin embargo, debido a su baja intensidad (4,12%), la incertidumbre asociada resulta elevada. Es más conveniente asumir equilibrio secular con su descendiente, el ^{212}Pb , y la actividad final se calcula a partir de la emisión de 238.63 keV de este último. Las emisiones correspondientes al ^{212}Bi y al ^{208}Tl no se emplean directamente, ya que requerirían aplicar correcciones

por coincidencia (CSC). Dado que la línea de 238.63 keV del ^{212}Pb presenta una alta intensidad y proporciona una actividad con baja incertidumbre, se adopta exclusivamente esta determinación.

Siguiendo este procedimiento, se ha calculado la actividad de cada radionúclido de interés en las 9 primeras secciones del testigo.

En el anexo A, tablas A.22- A.25, se encuentran todos los resultados de las actividades, tanto absolutas como específicas, para cada radionúclido y sección del testigo.

6.2. Medida de muestra de aguas por espectrometría gamma en BEGe

Se llevó a cabo la medida de la fuente en el equipo BEGe. La medición se extendió durante cinco días hasta que se consideró que se disponía de suficiente información estadística. Esta determinación se basó en la observación de que los picos en el espectro estaban bien conformados y se diferenciaban del fondo.

6.2.1. Caracterización de la eficiencia

Al igual que se hizo en la matriz sedimentaria, es necesario determinar una curva de eficiencia en el rango de energías de trabajo, [26, 1460]KeV. Para ello se utiliza una simulación Monte Carlo con *Geant4*, realizada y validada por el equipo del LRI-D, adaptada a la geometría C21 y a la nueva matriz. Estos factores, como ya se ha discutido, influyen de manera significativa en la eficiencia de detección.

Caracterización de la matriz

En este caso, la matriz obtenida es un residuo salino de gran masa, ya que de los 25 L evaporados para medir el residuo acuoso, se obtuvieron 135,053 g de sal. Según el estudio hidrológico [70], si consideramos que la composición química del agua en la Laguna Salina Grande es equivalente a la de las aguas salinas del sistema de Villafáfila, se puede afirmar que presenta un claro predominio de sodio (60–70 % de los cationes) y cloruros (55–65 % de los aniones), seguidos por magnesio (10–15 %) y sulfatos (20–30 %). El calcio y los bicarbonatos aparecen en proporciones menores (<10 %), como resultado de la sobresaturación y precipitación de carbonatos. La concentración total de sales disueltas en estas lagunas oscila entre 6 y 27 g/L, según [70]. En este estudio se ha obtenido una concentración de 6,12 g/L, lo que indica que la Laguna Salina Grande no se encuentra entre las más salinas del sistema, aunque presenta un valor absoluto elevado.

6.2.2. Análisis del espectro con software GALEA

Se procede al análisis del espectro mediante el software Galea, ya presentado en secciones anteriores. En este caso, la muestra, si bien es sólida, proviene de la evaporación de una muestra de agua, lo que arrojará diferentes resultados en los radionúclidos a los obtenidos para la medición de la matriz sedimentaria. Las emisiones que pueden detectarse siguen siendo debida a la radiactividad natural, y a los radionúclidos artificiales más comunes, todos ellos expuestos en la tabla 6.3.

Para el análisis del espectro con Galea se llevan a cabo los procesos, ya descritos en la sección 6.1.3: precalibración en energía, estimación del continuo, detección de picos, calibración de los parámetros de forma, búsqueda de picos, ajuste de los mismos y nivel de decisión. Obteniéndose el espectro de la imagen A.37.

6.2.3. Determinación de las actividades de los radionúclidos de interés

Se ha discutido en 6.1.3. cómo Galea calcula las actividades a través del área de los picos y gracias a la calibración en eficiencia del detector. En caso de emisión única se utiliza 3.9, mientras que en casos de emisión múltiple se tienen las expresiones recogidas en la ecuación 6.2. A continuación se discute como se ha determinado la actividad de cada radionúclido de interés.

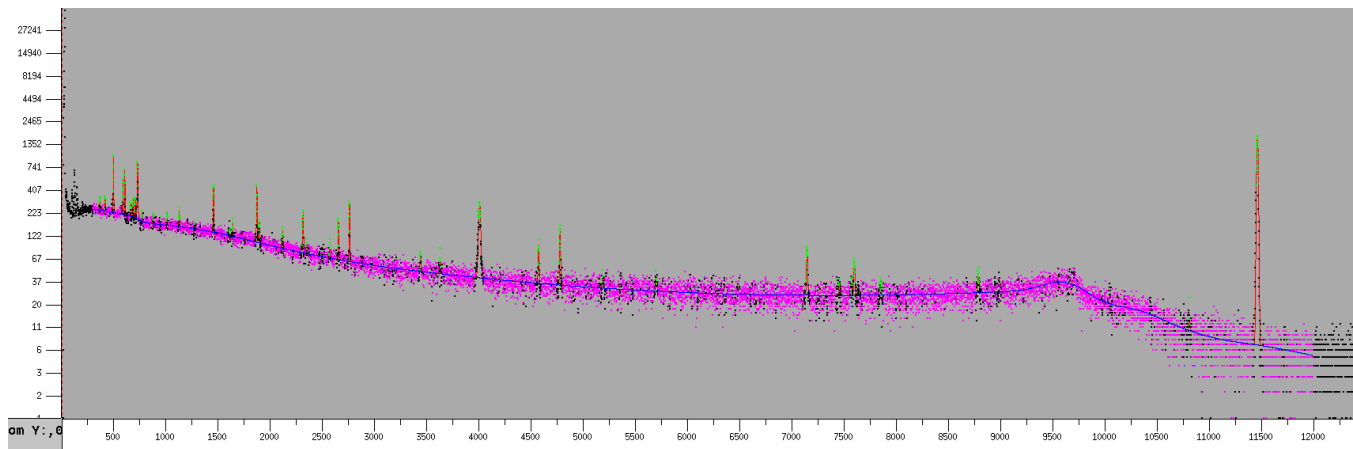


Figura 6.6: Espectro completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

○ ^{210}Pb , ^{40}K : Se determina su actividad a través de su emisión única a 46.54 KeV, 911.19KeV y 1460.82 keV respectivamente.

○ ^{238}U : no se detecta su emisión característica con lo que se asume equilibrio secular con ^{234}Th y ^{234m}Pa .

○ ^{235}U : en primer lugar se obtiene un valor inicial de la actividad a partir de la determinación de la del ^{238}U mediante su relación isotópica. En este caso, se obtiene un valor muy elevado para la actividad de ^{235}U que no concuerda con el resto de emisiones, por lo que se descarta. Su actividad se determina mediante el segundo método, descrito en el apartado 6.1.3, a través de las emisiones de 143,77 KeV y 185,72 KeV. En este caso, se ha optado por considerar la actividad de la línea de 143,77 KeV corregida por suma en coincidencia, disponible en el anexo A; tabla A.32, ya que de esta manera se obtiene una medida directa de la actividad que no se ve afectada por la relación isotópica, la cual parece no cumplirse, ni por la interferencia con la emisión del ^{226}Ra .

○ ^{226}Ra : se procede de la forma ya expuesta en 6.1.3. con la salvedad de que en este caso no se logra equilibrio secular con el ^{214}Pb . En su lugar se opta por tomar la actividad calculada por el segundo método, mediante la sustracción de las cuentas del ^{235}U (185,72 KeV) al pico de 186,21 KeV.

○ ^{234}U : su emisión principal a 53,20 KeV se ve afectada por la emisión a 53,22 KeV del ^{214}Pb . Afortunadamente, la actividad del ^{214}Pb puede determinarse de forma independiente. Para calcular la actividad del ^{234}U , basta con restar las cuentas debidas al fondo y la emisión del ^{214}Pb .

$$N_{214} = A_{214} \cdot I_{214} \epsilon_{214} \cdot t, \quad N_{234} = N - N_{\text{fondo}} - N_{214}, \quad \rightarrow A_{234} = \frac{N_{234}}{I_{234} \cdot \epsilon_{234} \cdot t}$$

○ ^{228}Ra : de nuevo se asume equilibrio secular con su hijo, ^{228}Ac que tiene tres emisiones principales, cuadro 6.3. Para determinar la actividad se hace la media ponderada entre estas tres, todas las emisiones del ^{228}Ac requieren de CSC, dado que en este caso interesa conocer la actividad exacta para calcular la dosis indicativa (ID), se aplican las correcciones recogidas en el anexo A; tabla A.32.

○ ^{224}Ra : en este caso se aplican las correcciones por CSC necesarias ya que interesa conocer la actividad exacta, no su tendencia. Para ello se utilizan las correcciones dadas en el anexo A; la tabla A.32. La actividad de ^{224}Ra se determina a partir de la media ponderada de las actividades de sus hijos ^{208}Tl , ^{212}Bi y ^{212}Pb .

6.3. Resultados de la medida del testigo VF2501 mediante espectrometría γ

En primer lugar se observa la relación entre la masa media acumulada bajo la sección (g/cm^2) y la profundidad de sedimento z , dado que presenta una relación lineal, figura A.29 en el anexo A, es posible utilizar en adelante la profundidad como referencia en las representaciones gráficas de los perfiles.

6.3.1. Perfiles de actividad del testigo VF2501

A continuación se tienen los perfiles de actividad específica, en función de la profundidad (z) y la masa acumulada (g/cm^2) para los radionúclidos de interés. En ellos es posible estudiar su comportamiento a lo largo del testigo.

Se muestra una comparativa entre ^{210}Pb , ^{214}Pb , ^{226}Ra , y a la derecha el perfil de ^{137}Cs , figura 6.7. Se observa que se ha logrado el equilibrio secular entre ^{226}Ra y ^{214}Pb por tener actividad compatible en todos los puntos, el ^{226}Ra queda ligeramente por encima del ^{214}Pb en la mayoría de puntos como es de esperar. La actividad de ^{226}Ra representada en el perfil corresponde al valor calculado mediante el segundo método descrito en la sección 6.13. Se opta por utilizar este valor ya que la actividad de ^{226}Ra obtenida a partir de su emisión directa presentaba un valor significativamente inferior, situándose por debajo de la actividad de ^{214}Pb en todos los puntos, por lo que se ha descartado. No obstante, este valor calculado para la actividad de ^{226}Ra está visiblemente afectado por la incertidumbre que conlleva este método, y dado que existe equilibrio secular con el ^{214}Pb se asume que la actividad de ^{226}Ra es igual a la de ^{214}Pb , la cual puede determinarse de forma mucho más exacta.

Se observa que únicamente las tres primeras secciones del testigo presentan $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$. Esta limitación reduce significativamente la capacidad de resolución cronológica, dado que solo se dispone de tres puntos útiles para la datación. Se decide finalizar las mediciones por espectrometría gamma en las secciones (12-13), ya que no se aporta nueva información para la datación. El perfil de ^{137}Cs se completa en la sección (8-9), figura 6.7 derecha, ya que a mayor profundidad no se llegó a conformar el pico de 661,66KeV.

El perfil de ^{210}Pb muestra dos comportamientos claramente diferenciados: en las primeras secciones se observa la típica caída exponencial de la actividad, propia de un aporte reciente de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ que se incorpora a la matriz sedimentaria y posteriormente decae según la ley radiactiva. A mayor profundidad, sin embargo, se detecta un comportamiento de la actividad específica invertido. Esto podría deberse a variaciones en la morfología de los granos y/o en la composición química a lo largo del sedimento [33], dado que los radionúclidos presentan mayor afinidad por las fracciones finas. El análisis químico del testigo revela diferencias notables en el contenido de SiO_2 y Fe_2O_3 entre las secciones superficiales y las más profundas, cuadro A.9, lo que confirma la heterogeneidad composicional del sedimento. Esta interpretación se ve respaldada por la presencia de una actividad específica invertida en los perfiles de los demás radionúclidos, figura 6.9.

El perfil de ^{137}Cs , a la derecha en la imagen 6.7 muestra el máximo que correspondería a la máxima deposición en 1963 a una profundidad de $z = 3$ cm, lo que indica que en los primeros 3 cm de sedimento están contenidos al menos 62 años; tras de sí se observa la característica caída de la actividad específica hasta que en $z = 5$ cm no se tienen valores significativos. Si se compara con el perfil ejemplo del capítulo 2, se observa una misma tendencia global aunque en este caso, debido a la pobre resolución temporal, no ha sido posible diferenciar los picos debidos a eventos recientes como los accidentes de Chernóbil (1986) o Fukushima (2011). No obstante, se observan concentraciones de actividad relativamente elevadas en comparación con la cola posterior al máximo global lo que indica aportes recientes. Asimismo, es posible identificar cierta migración del ^{137}Cs , ya que aparecen pequeños niveles de actividad en secciones más profundas al cese de la actividad nuclear. Esta migración puede afectar a todo el perfil y provocar que el máximo de 1963 aparezca desplazado en profundidad, por ello es necesario contrastar el máximo de ^{137}Cs con el *Bomb peak* mediante la medida independiente de ^{14}C en AMS.

En la siguiente figura, 6.8, se tiene un perfil comparativo entre las concentraciones de actividad de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ y ^{137}Cs , así como los perfiles completos de ^{210}Pb y ^{137}Cs . El perfil de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ obtenido corresponde a un tipo VII en la

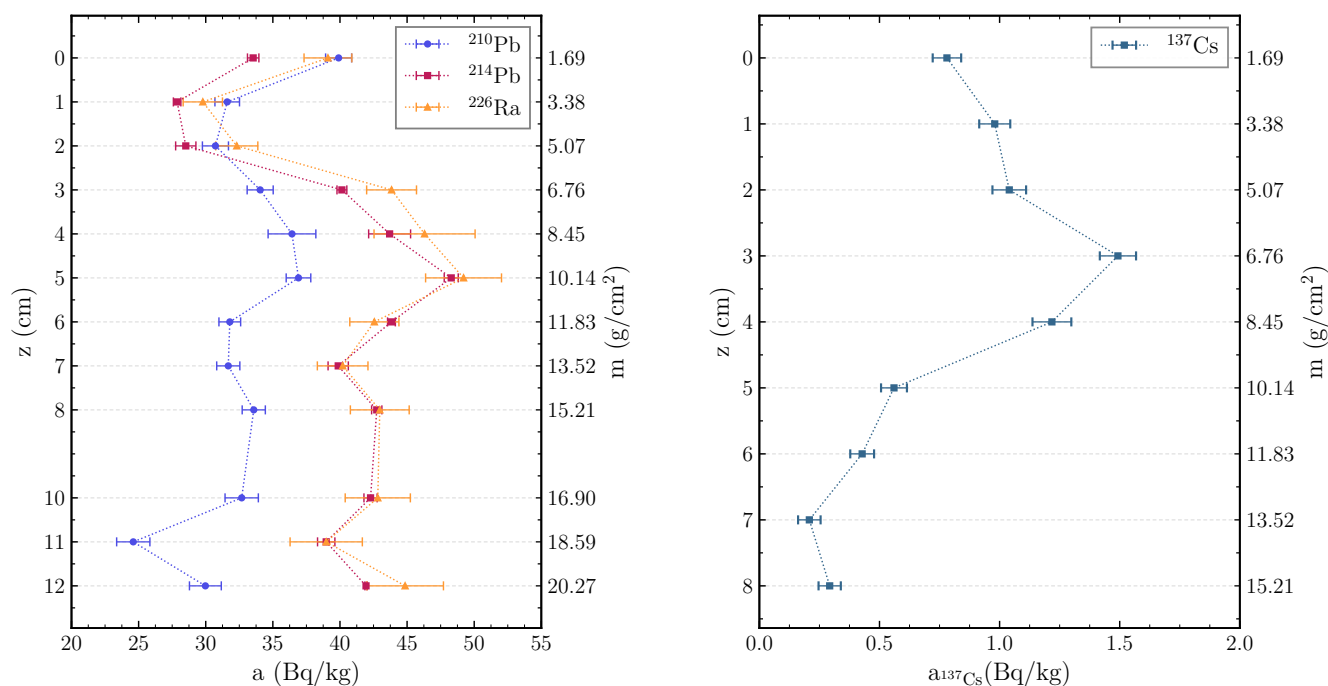


Figura 6.7: Izquierda perfiles de actividad específica (en Bq/Kg) de ^{210}Pb , ^{214}Pb , ^{226}Ra . Derecha perfil de actividad específica (en Bq/Kg) para ^{137}Cs . Todos ellos mostrados junto con la masa acumulada bajo la sección

clasificación expuesta por [33], caracterizado por actividades muy bajas en profundidad y un inventario reducido, en este caso limitado a solo tres puntos de exceso. Este patrón suele estar asociado a una acumulación neta moderna de sedimentos prácticamente nula o muy baja, lo que sugiere que el sistema ha estado dominado por procesos de erosión o por el aporte predominante de sedimentos gruesos con escasa capacidad para retener ^{210}Pb . Otra hipótesis plausible es la pérdida de parte del techo del testigo durante el muestreo. Esta sección, en contacto con el agua, pudo haber sido arrastrada al vaciar la vaina que contenía el sedimento, afectando a los primeros centímetros. En marismas intermareales, este tipo de perfiles se ha asociado con la pérdida de vegetación y la exposición del sustrato a la hidrodinámica variable, factores que favorecen tanto la exportación de las fracciones finas como la remoción del material superficial [33]. En el caso presente, el testigo proviene de un ecosistema lagunar estacional de fondo arenoso, carente de vegetación permanente y sujeto a una alternancia entre periodos de inundación y fases de sequía estival. Estas condiciones lo convierten en un ambiente funcionalmente análogo al de las marismas intermareales. Finalmente, en las secciones más profundas se observa una misma tendencia entre la cola del perfil de ^{137}Cs y el de ^{210}Pb . Esta convergencia no indica nuevos aportes atmosféricos, sino posiblemente procesos de migración post-deposicional, en los que el ^{137}Cs se redistribuye hacia capas inferiores. De este modo, ambos radionúclidos muestran tendencias convergentes que reflejan un entorno dinámico y poco estable, coherente con la interpretación global de un perfil tipo VII con bajo inventario y fuerte influencia erosiva.

Resulta de gran interés el estudio complementario de otros radionúclidos presentes en el testigo, como los uranios ^{238}U y ^{235}U y los radios ^{228}Ra y ^{224}Ra , también se incluye el ^{40}K , imagen 6.9. Los perfiles de ^{238}U y ^{235}U muestran una distribución relativamente constante, con ligeras oscilaciones en profundidad. Los valores del cociente isotópico $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ se mantienen próximos al valor esperado, lo que indica que estos radioisótopos no se han movilizado por disolución, adsorción o precipitación selectiva, sino que permanecen ligados a los minerales originales del sedimento. Esto respalda su asociación predominante con la fracción litófila¹ [89]. Asimismo, el perfil obtenido refuerza la hipótesis de una composición química variable a lo largo del sedimento, evidenciada por las alternancias en la actividad específica de los radioisótopos de uranio.

¹Se denomina *fracción litófila* a la porción del sedimento o roca constituida principalmente por minerales silicatados.

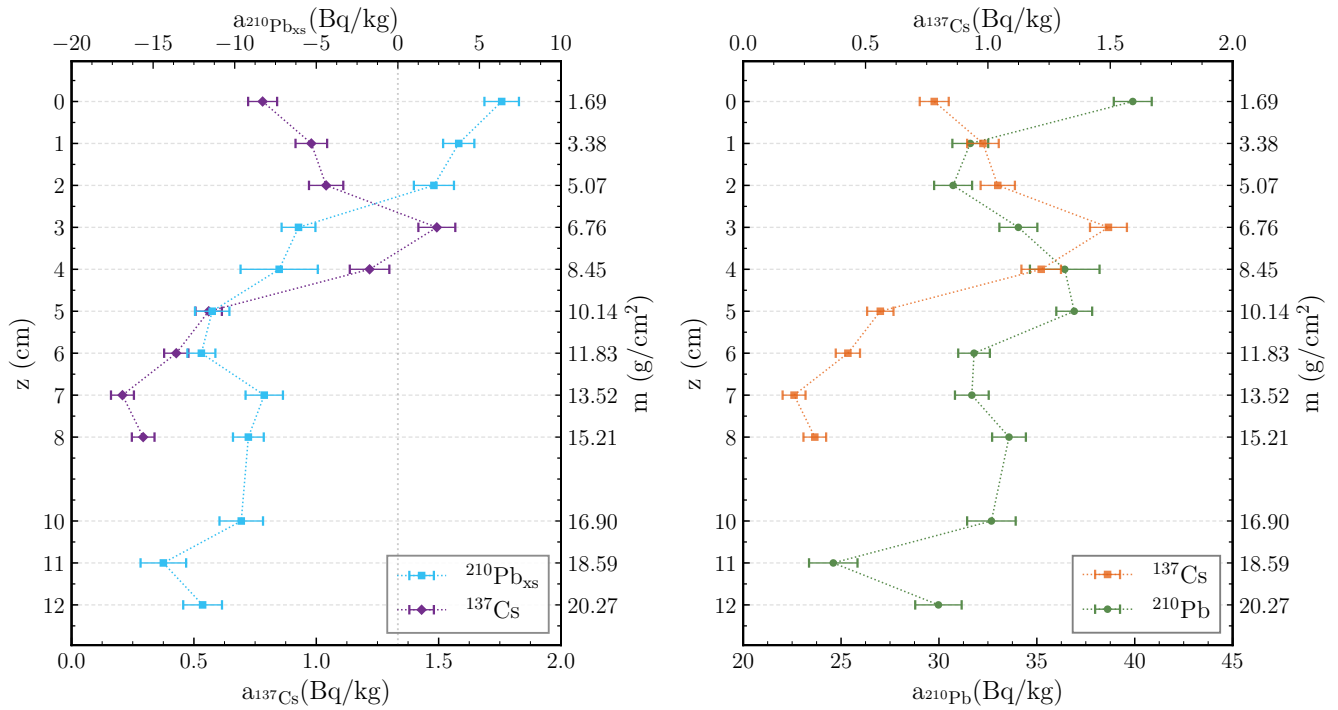


Figura 6.8: A la izquierda, perfil de actividad específica (en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ junto con el perfil de ^{137}Cs . El signo negativo indica un defecto de actividad, ya que se esperaría que, como mínimo, ^{226}Ra y ^{210}Pb estuvieran en equilibrio; sin embargo, se observa una deficiencia de ^{210}Pb . A la derecha, perfil comparativo de actividad específica (en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) entre ^{210}Pb y ^{137}Cs . Todos ellos mostrados junto con la masa acumulada bajo la sección.

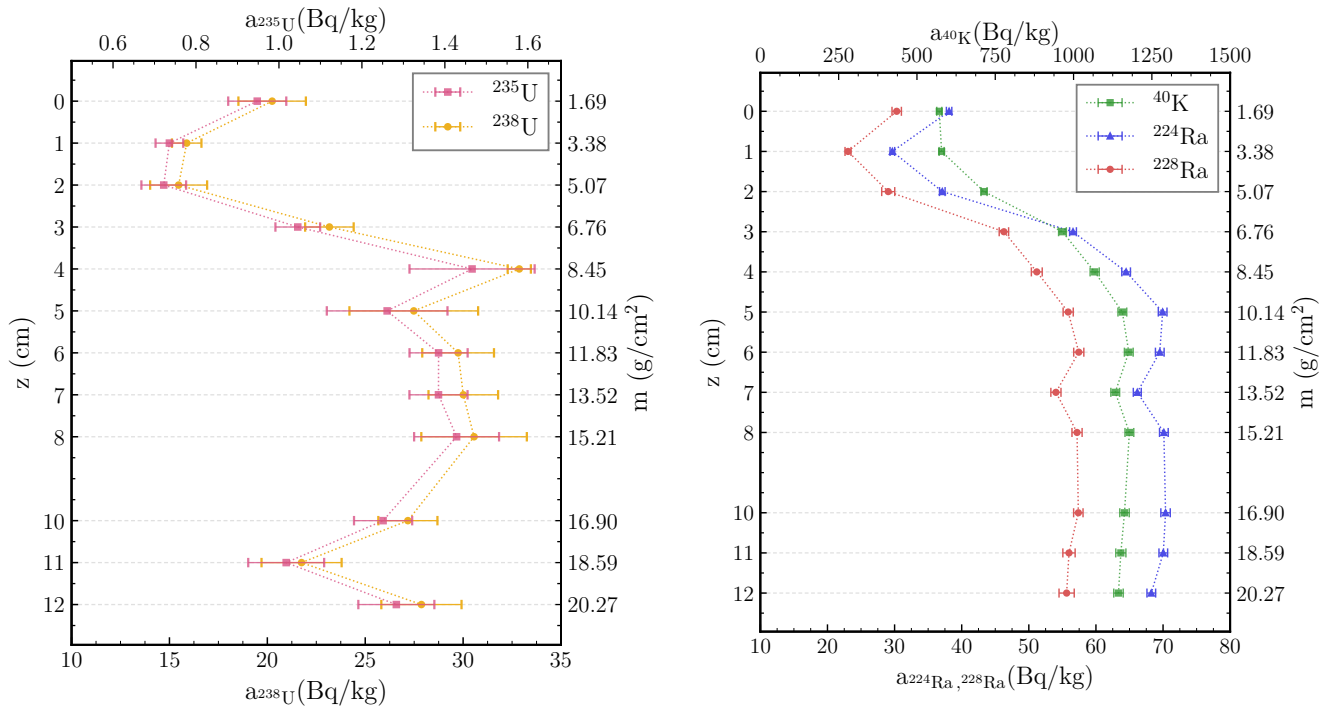


Figura 6.9: Izquierda perfiles de actividad específica de ^{238}U y ^{235}U . Derecha perfil de actividad específica de ^{224}Ra , ^{228}Ra y ^{40}K .

En el caso de ^{224}Ra y ^{228}Ra , los perfiles muestran un patrón paralelo, coherente con su origen en la serie del ^{232}Th , mientras que el ^{40}K mantiene concentraciones elevadas asociadas a feldespatos y micas [89]. Estos radionúclidos naturales se encuentran firmemente fijados en la matriz cristalina de los minerales litófilos del sedimento, por lo que no experimentan pérdidas ni migraciones significativas tras la deposición. Su estabilidad contrasta con el comportamiento más irregular observado en los perfiles de uranio, cuyos isótopos muestran una mayor variabilidad en profundidad debido a su sensibilidad a las condiciones redox: el uranio puede movilizarse bajo ambientes oxidantes, donde se encuentra en forma soluble U(VI) , y precipitar o adsorberse en fases reductoras como U(IV) [90]. Esta diferencia explica por qué el perfil de ^{224}Ra , ^{228}Ra y ^{40}K muestra una tendencia más constante mientras que el del uranio presenta oscilaciones marcadas a lo largo del testigo.

6.4. Resultados de la medida del testigo VF2501 mediante AMS

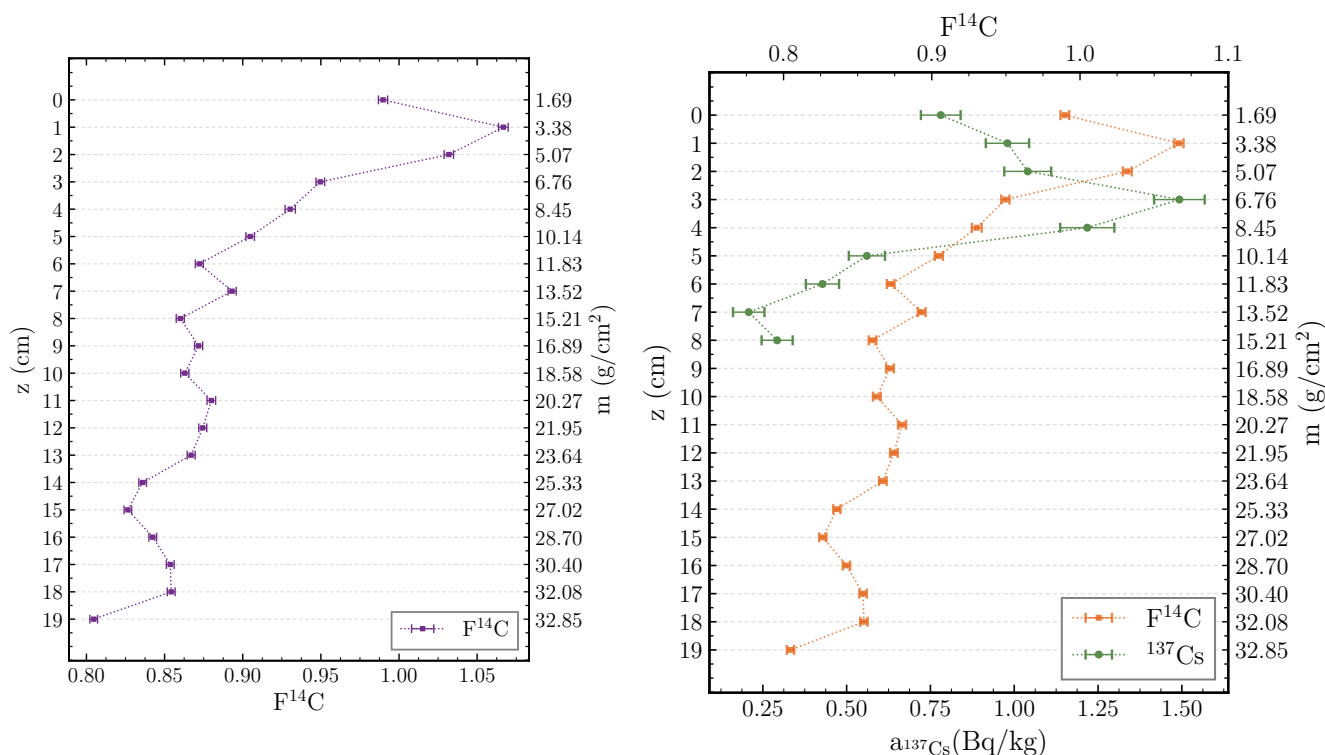


Figura 6.10: Izquierda perfil de $F^{14}\text{C}$. Derecha comparación del perfil de $F^{14}\text{C}$ con el perfil de actividad específica para ^{137}Cs .

Mediante la medida de AMS se obtiene la $F^{14}\text{C}$, fracción moderna corregida por fondo, fraccionamiento isotópico y normalizada, junto con la edad de ^{14}C ; valores que se recogen en el cuadro A.30 en el anexo A. Estos parámetros se definían en el capítulo 3.

Los valores obtenidos de $F^{14}\text{C}$ a lo largo del testigo muestran concentraciones próximas a la modernidad en las primeras secciones (0-2) y una posterior caída abrupta, con ligeras oscilaciones en profundidad, figura 6.10, sin un gradiente monótonico definido. Este comportamiento sugiere una tasa de acumulación muy baja y la posible remezcla postdeposicional del sedimento superficial, coherente con la dinámica hidrológica del sistema (alternancia entre fases de inundación y sequía).

La comparación entre $F^{14}\text{C}$ y la el perfil de actividad específica de ^{137}Cs , figura 6.10 derecha, pone de manifiesto dos aspectos relevantes: la presencia del *bomb peak* en torno a $z \approx 1$ cm, correspondiente al máximo atmosférico de ^{14}C y ^{137}Cs de los años sesenta, y un perfil de ^{137}Cs claramente alterado, con señal extendida hacia niveles más profundos. La localización tan somera del máximo de $F^{14}\text{C}$ sugiere una tasa de sedimentación muy reducida, lo que limita la resolución temporal del registro. Por otro lado, la penetración del ^{137}Cs a mayor profundidad indica una

migración postdeposicional. En conjunto, la baja tasa de acumulación, la remezcla del tramo somero y la movilidad del ^{137}Cs dificultan la obtención de un modelo edad–profundidad fiable. En la sección siguiente se discute esta posibilidad.

6.5. Resultados del análisis de muestra de aguas mediante espectrometría gamma e BEGe

Tras el cálculo de las actividades para la muestra de aguas mediante espectrometría gamma, se obtienen los resultados presentados en el cuadro 6.4. No se detectó $^{210}\text{Pb}_{xs}$ en el agua, lo cual concuerda con las mediciones realizadas en el sedimento. Esto sugiere que no se está depositando $^{210}\text{Pb}_{xs}$ de origen atmosférico, que su aporte es ínfimo o que la deposición se ve alterada por otros procesos.

Asimismo, se observa que el ^{226}Ra no se encuentra en equilibrio secular con el ^{214}Pb . Este desequilibrio podría explicarse por un cierre defectuoso de la geometría de medida que haya permitido pérdidas de ^{222}Rn . La geometría C21 posee mayor tamaño que la C11 lo que hace más complicado un sellado total.

Radionucleido	Actividad específica (mBq/L)
^{210}Pb	7,2(10)
^{214}Pb	7,47(18)
^{226}Ra	18,4(26)
^{137}Cs	0,2480(84)
^{40}K	1388(17)
^{238}U	72,3(22)
^{235}U	2,23(11)
^{234}U	212(64)
^{228}Ra	11,84(48)
^{224}Ra	6,17(17)

Cuadro 6.4: Actividad específica según radionuclídos en la muestra AS-ZA001_25 en mBq/L.

Se ha calculado la actividad de ^{235}U a través de la línea 143,77 KeV independiente al ^{226}Ra y utilizando la corrección pertinente por CSC. Se mide ^{137}Cs en agua, lo cual es previsible dado que este isótopo proviene de la atmósfera y posteriormente se deposita en los sedimentos. Es interesante observar que el ^{234}U se encuentra en una proporción $A_{234\text{U}}/A_{238\text{U}} = 2,935$ con su padre a pesar de que, según su semivida, deberían encontrarse en equilibrio secular. En este caso el equilibrio se rompe debido a factores físicos y químicos que se presentan durante el desarrollo de la serie del ^{238}U . El decaimiento α del ^{238}U al ^{234}Th proporciona suficiente energía de retroceso, al átomo de ^{234}Th como para romper los enlaces químicos que lo mantienen unido a la matriz. En ese momento, los átomos desplazados pueden recombinarse de nuevo en la matriz o ser arrastrados por el agua, en cuyo caso son desplazados. Otra causa posible del desequilibrio es la diferenciación química, como la formación de ^{234}U en estados de oxidación más altos que los átomos circundantes, lo que provoca que puedan disgregarse en fases distintas. En general, es común observar este desequilibrio en aguas [87].

6.6. Resultados de la datación absoluta del testigo VF2501

6.6.1. Resultados de la datación por ^{210}Pb

Se elige el modelo de datación más adecuado según las condiciones del testigo y los perfiles descritos. El perfil de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ tiene inventarios bajos y irregularidad en profundidad, limitando los modelos clásicos. El modelo CA es preliminar y limitado; se necesita calcular la constante $C = C(0)$ extrapolando datos de la relación lineal entre el logaritmo neperiano de la concentración y el espesor másico. Si los tres puntos disponibles siguen una tendencia

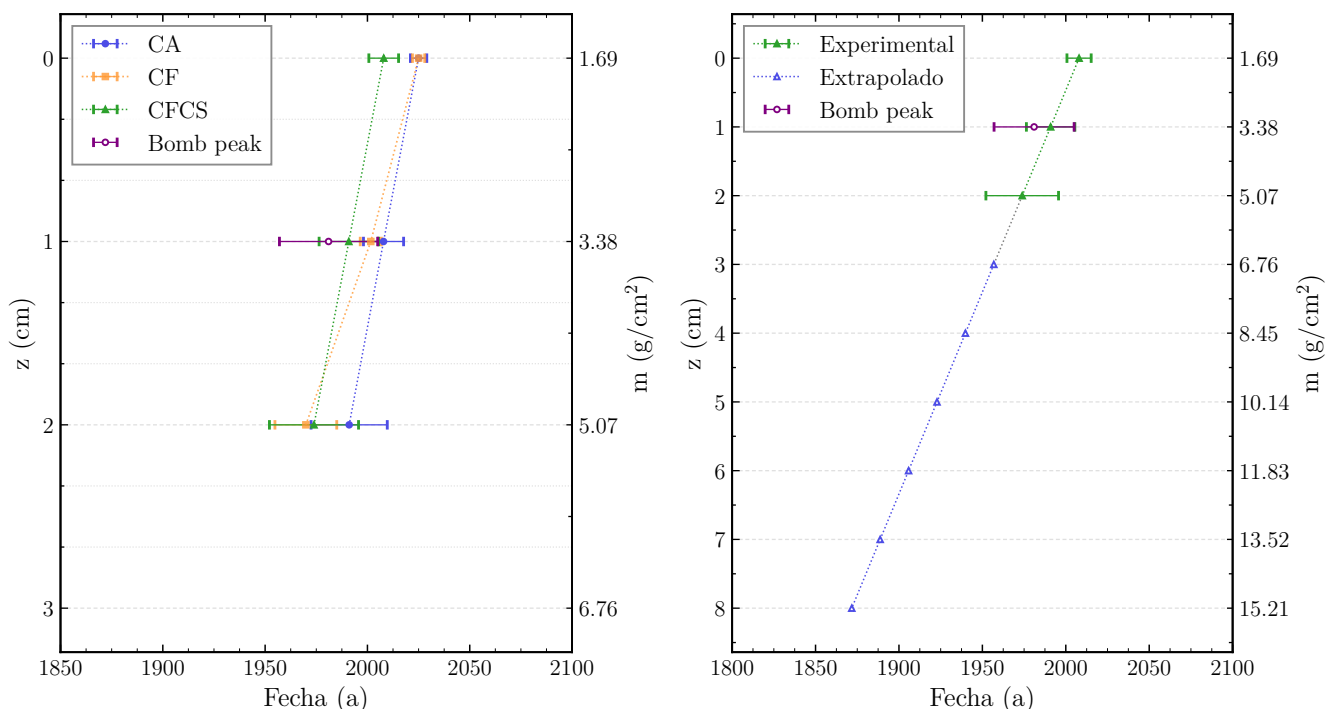


Figura 6.11: Izquierda, resultados para los modelos de datación mediante ^{210}Pb , en azul CA, en naranja CF y verde CFCS. Derecha, extrapolación mediante el modelo CFCS; ambas figuras se muestran en comparación con el Bomb peak calculado mediante AMS en morado.

lineal, es posible aplicar este modelo y el modelo CFCS; como se muestra en la figura A.30, en el anexo A los puntos sí siguen una tendencia lineal.

Ajuste:

$$y = -0,31(13) \cdot x + 2,38(34) \quad r^2 = 0,999945$$

El modelo CFCS es el más informativo, permitiendo estimar una tasa de acumulación másica media ($r_{CFCS} = 0,099(42)$ $\text{g cm}^2/\text{año}$), a partir de este dato y la densidad media del sedimento se puede calcular una tasa de sedimentación ($s_{CFCS} = 0,083(41)$ $\text{cm}/\text{año}$). La determinación de r permite extrapolar edades a secciones más profundas. Con pocos puntos útiles, la cronología es una primera aproximación, que se puede complementar por los datos arrojados mediante AMS. El modelo CF también es aplicable con el inventario completo de $^{210}\text{Pb}_{xs}$, pero ofrece información limitada con solo tres puntos, la tasa de sedimentación media estimada por este modelo es de ($s_{CF} = 0,0439(11)$ $\text{cm}/\text{año}$).

En la figura 6.11 izquierda, se muestran los resultados de la datación obtenidos mediante los modelos CA, CF y CFCS, también se recogen estos resultados en las tablas A.26, A.27 y A.28 en el anexo A. Los modelos se comparan con el horizonte cronológico del *Bomb peak* determinado por AMS, y todos ellos muestran una tendencia consistente en las secciones superficiales. Se confirma la condensación temporal en los primeros centímetros del testigo, lo que explica la baja resolución cronológica y afecta a todas las técnicas de datación. También se observa la alta incertidumbre en la edad debido al bajo inventario de $^{210}\text{Pb}_{xs}$. Sin embargo, los modelos de datación por ^{210}Pb establecen un marco temporal de referencia para las secciones superficiales. Como ya se ha comentado, es posible hacer una extrapolación utilizando el modelo CFCS, se muestra en la figura 6.11 derecha y en el cuadro A.28, donde los puntos experimentales corresponden a las secciones superficiales con señal de $^{210}\text{Pb}_{xs}$ (verde), mientras que los valores extrapolados (azul) permiten prolongar la cronología hacia capas más profundas del testigo. Debido a la falta de datos experimentales a mayores profundidades, sería prematuro considerar el modelo válido en capas más profundas, ya que podría estar ocultando un cambio de tendencia desconocido. Por lo tanto, la medición independiente del testigo mediante AMS será crucial para validar estos resultados.

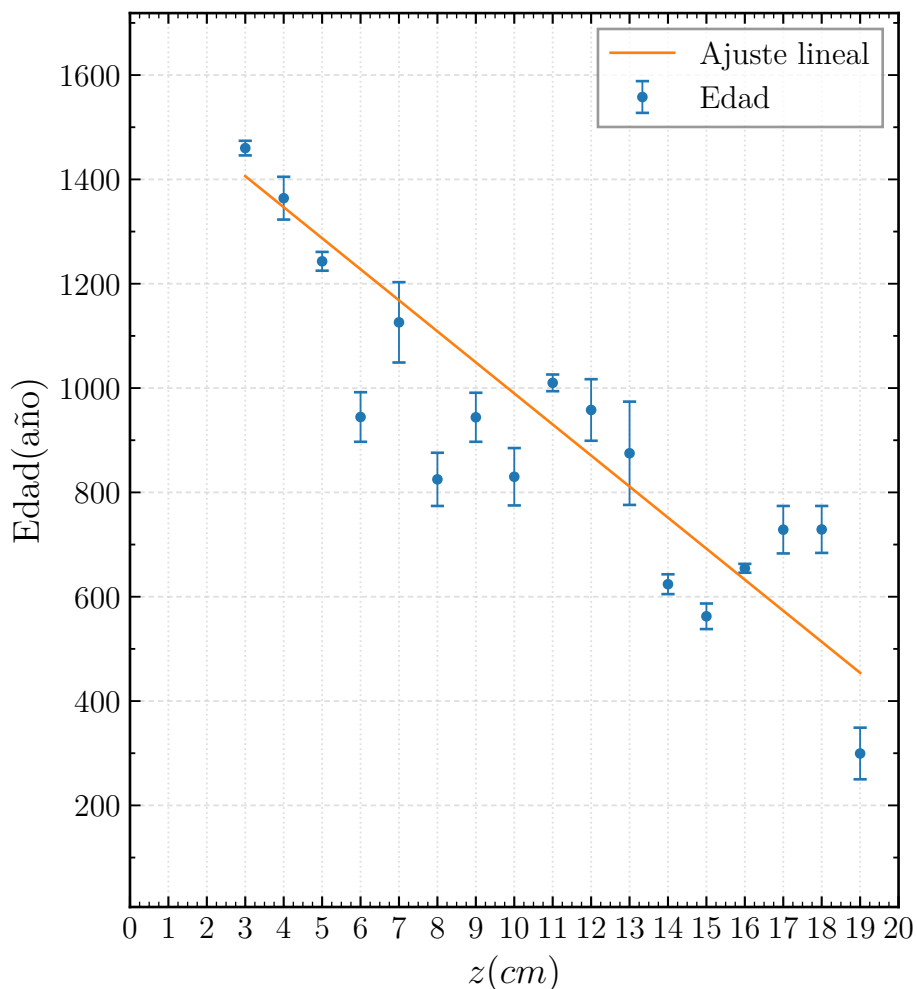
6.6.2. Resultados de la datación por ^{14}C utilizando OxCal

Figura 6.12: Regresión de edad calibrada mediante OxCal a 2σ frente a profundidad del testigo.

Las edades radiocarbónicas se obtuvieron a partir de las mediciones AMS, tabla A.30, y fueron calibradas mediante el programa OxCal empleando la curva de referencia atmosférica IntCal20. Se calcularon las edades correspondientes a cada profundidad utilizando un intervalo de confianza de 2σ . Los resultados que se muestran en la figura se presentan a partir del centímetro 3, ya que en los niveles superiores la curva de calibración asociada al *bomb peak* (Bomb21NH2) no permite resolver edades fiables; afortunadamente, este tramo superficial cuenta con el control cronológico independiente proporcionado por el ^{210}Pb .

A partir de las edades calibradas se realizó una regresión lineal ponderada por incertidumbre (edad frente a profundidad, figura 6.12).

Ajuste:

$$y = -59,5(10) \text{ año/cm} \cdot x + 1584(13) \text{ año} \quad r^2 = 0,749225 \quad s_{AMS} = 0,01681(28) \text{ cm/año}$$

Con el fin de estimar la tasa media de sedimentación y comparar con la estimada independientemente mediante ^{210}Pb con el fin de comprender el comportamiento del sistema. El ajuste muestra una pendiente alta, lo que indica una tasa de sedimentación (s_{AMS}) extremadamente baja, incluso menor a las obtenidas por ^{210}Pb , lo que es coherente con la longevidad y el carácter estacional de la laguna, donde los periodos de exposición y rehumectación limitan el aporte neto de material y favorecen la retrabajación del sedimento superficial.

6.6.3. Perspectiva global de los resultados de la datación del testigo VF2501

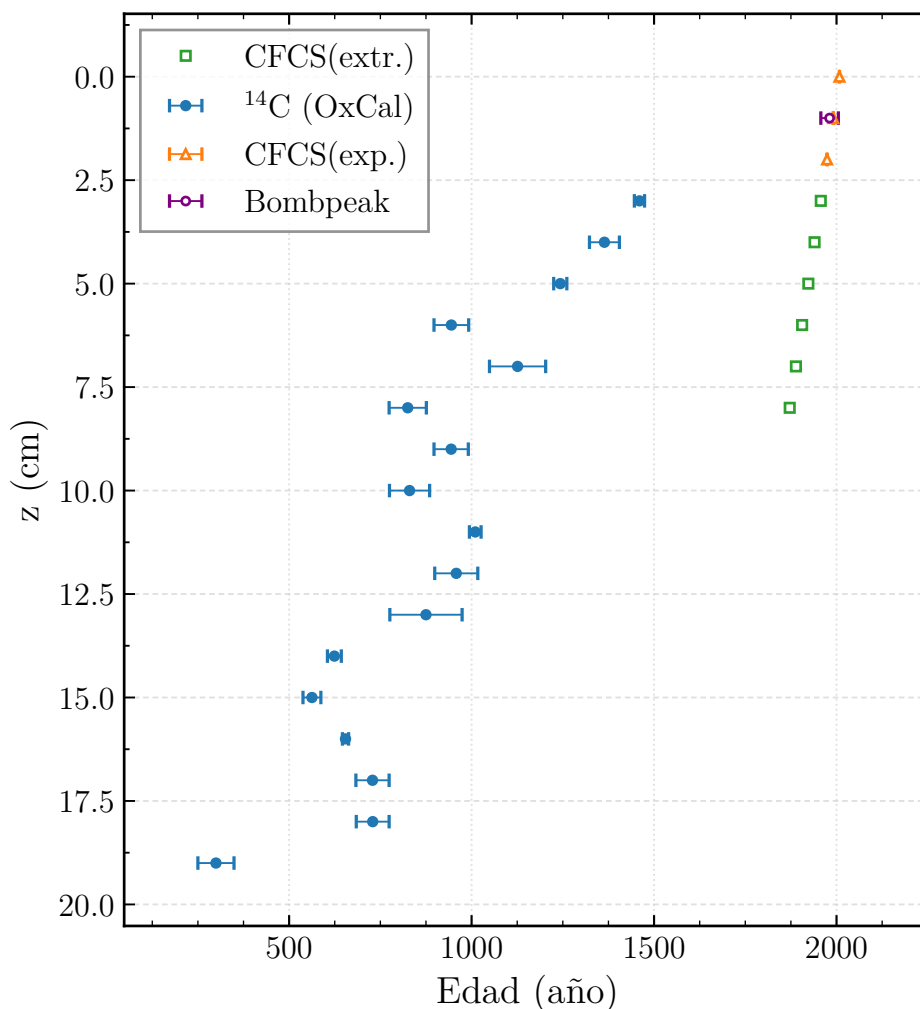


Figura 6.13: Representación de los resultados disponibles para la datación del testigo VF2501. En naranja los datos calculados mediante el modelo CFCS de datación por ^{210}Pb , en verde los puntos extrapolados mediante el modelo CFCS. En morado el Bomb peak determinado mediante F^{14}C . En azul datos para la edad de la sección determinados por AMS y calibrados mediante el programa OxCal.

En la figura 6.13 se presentan todos los resultados obtenidos para la datación del testigo. Se observa que las tasas de sedimentación difieren entre la zona más reciente, donde se dispone de los modelos basados en ^{210}Pb , y los niveles datados mediante ^{14}C , sin que se identifique una tendencia clara que permita establecer un modelo de edad unificado. Las edades extrapoladas a partir del modelo CFCS no coinciden con las obtenidas mediante AMS, lo que refuerza la idea de una acumulación irregular.

El perfil de ^{137}Cs , por su parte, aporta información limitada debido a la baja resolución temporal del registro y a la evidente migración de este radionúclido, evidenciada por el desplazamiento de su máximo respecto al observado en la F^{14}C .

Si se considera válida la tasa de sedimentación calculada a partir de las edades calibradas con OxCal ($s_{\text{AMS}} = 0,01681(28) \text{ cm a}^{-1}$), la sección correspondiente a $z = 3 \text{ cm}$ presenta una edad aproximada de 178 años. Este valor concuerda con el límite inferior del rango de edades estimado mediante ^{210}Pb , lo que explicaría la escasez de puntos con señal detectable de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en ese intervalo. Un estudio preliminar en la zona de las lagunas de Villafáfila determinó que, si se considera que hay evidencias de la existencia de las lagunas desde hace más de 5000 años, y

efectivamente dataciones mediante ^{14}C en la zona lo corroboran [74], y los sondeos que alcanzan el fondo de las mismas son de 1,5 m, se obtendría una tasa máxima promediada de 0,3 mm/año [72]; valor intermedio respecto a lo determinado en este estudio.

$$s_{\text{AMS}} = 0,01681(28) \text{ cm/año} < 0,03 \text{ cm/año} < s_{\text{CF}} = 0,0439(11) \text{ cm/año} < s_{\text{CFCS}} = 0,083(41) \text{ cm/año}$$

En este sistema, asumir una sedimentación constante no sería adecuado, pues se identifican dos tramos con distinta tasa de sedimentación. En el mismo estudio [72], al estimar la tasa de sedimentación a partir de la presencia de plásticos, se obtienen 0,125 y 0,25 cm/año: la primera es compatible con $s_{\text{CFCS}} = 0,083(41)$, mientras que la segunda apuntaría a episodios locales de acumulación más alta no capturados por el promedio.

Para trabajos futuros sería conveniente explorar ajustes mediante splines o modelos bayesianos que permitan definir una curva edad–profundidad continua. No obstante, resultaría especialmente importante incrementar la resolución de muestreo (secciones de menor espesor) a fin de mejorar la precisión temporal y la capacidad interpretativa del modelo cronológico.

Capítulo 7

Conclusiones

El estudio realizado en la Laguna Salina Grande ha permitido obtener una primera aproximación cronológica de los primeros 20 cm de sedimento mediante la datación por ^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C combinando las técnicas de espectrometría gamma y AMS.

El muestreo de sedimento y la posterior caracterización de las muestras mostraron que la tasa de sedimentación en este sistema es extremadamente lenta. Las mediciones de ^{210}Pb indicaron la presencia de únicamente tres secciones con señal detectable de plomo en exceso ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$), lo que implica que la mayor parte de dicho radionúclido decae en los primeros centímetros del testigo. Este resultado se ve reforzado por las edades derivadas del ^{14}C , que señalan una tasa de sedimentación muy baja, de aproximadamente 0,0168 cm/año, evidenciando que secciones de 1 cm no son insuficientes para resolver cronologías de detalle en este ambiente.

El perfil de ^{137}Cs , que habitualmente constituye un marcador cronológico eficaz, no aportó información útil en este caso, debido tanto a la migración postdeposicional del radionúclido como a la escasa resolución temporal, que impide identificar los picos asociados a eventos nucleares recientes.

En conjunto, los resultados confirman que la Laguna Salina Grande presenta una tasa de sedimentación baja e irregular y un comportamiento dinámico marcado por la alternancia de fases de inundación y exposición, las cuales favorecen la retrabajación del sedimento superficial y dificultan la preservación de una estratigrafía continua. A ello se suma una variabilidad en la composición química y en la textura del sedimento, evidenciada por los perfiles de actividad de los distintos radionúclidos analizados mediante espectrometría gamma.

A pesar de estas limitaciones, se ha conseguido establecer una primera aproximación cronológica del testigo, que constituye una base sólida para estudios futuros orientados a definir con mayor precisión la evolución sedimentaria y ambiental de la laguna.

En investigaciones posteriores será necesario desarrollar un modelo de edad que integre de forma coherente las diferentes líneas de evidencia (^{210}Pb , ^{137}Cs y ^{14}C) y aumentar la resolución de muestreo, con el fin de mejorar la definición temporal del registro sedimentario y avanzar en la comprensión de la evolución ambiental de la laguna.

Capítulo 8

Conclusions

The study conducted at Laguna Salina Grande has provided a first chronological approximation of the upper 20 cm of sediment through the dating of ^{210}Pb , ^{137}Cs , and ^{14}C , combining gamma spectrometry and AMS techniques.

Sediment sampling and subsequent characterization of the samples revealed that the sedimentation rate in this system is extremely slow. Measurements of ^{210}Pb indicated the presence of only three sections with a detectable signal of excess lead ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$), implying that most of this radionuclide decays within the uppermost centimeters of the core. This result is further supported by the ^{14}C -derived ages, which indicate a very low sedimentation rate of approximately $0.0168 \text{ cm yr}^{-1}$, demonstrating that 1 cm sections are insufficient to resolve high-resolution chronologies in this environment.

The ^{137}Cs profile, which is typically an effective chronological marker, did not provide useful information in this case due to both post-depositional migration of the radionuclide and the low temporal resolution, which prevents identification of peaks associated with recent nuclear events.

Overall, the results confirm that Laguna Salina Grande exhibits a very low sedimentation rate and a dynamic behavior characterized by alternating flooding and exposure phases. These processes promote reworking of the surface sediment and hinder the preservation of a continuous stratigraphy. Additionally, a marked variability in chemical composition and sediment texture is observed, as evidenced by the activity profiles of the various radionuclides analyzed through gamma spectrometry.

Despite these limitations, a first chronological framework for the core has been established, providing a solid basis for future studies aimed at more precisely defining the sedimentary and environmental evolution of the lagoon.

Future research should focus on developing an age–depth model that coherently integrates the different lines of evidence (^{210}Pb , ^{137}Cs , and ^{14}C) and on increasing the sampling resolution, in order to improve the temporal definition of the sedimentary record and advance the understanding of the lagoon's environmental evolution.

Bibliografía

- [1] Ferrer Soria, A. (2015). *Física nuclear y de partículas* (3ª ed. corregida y ampliada). Publicacions de la Universitat de Valencia. ISBN: 978-84-370-9645-2.
- [2] Wong, S. S. M. (1998). *Introductory Nuclear Physics* (2ª ed.). Wiley-VCH. ISBN: 978-0471239734.
- [3] Comité Nobel. (n.d.). Premio Nobel de Física 1903: Resumen. Nobel Prize. <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1903/summary/>
- [4] Greenwood, N. N., and Earnshaw, A. (1997). *Chemistry of the Elements* (2nd ed.). Butterworth-Heinemann, pp. 13–15.
- [5] Comité Nobel. (n.d.). Premio Nobel de Química 1911: Resumen. Nobel Prize. <https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/1911/summary/>
- [6] Comisión Nacional de Energía Nuclear. (n.d.). Irene Joliot-Curie y la radiactividad artificial. CSN. <https://www.csn.es/-/irene-joliot-curie-y-la-radiactividad-artificial>
- [7] Comité Nobel. (n.d.). Premio Nobel de Química 1935: Resumen. Nobel Prize. <https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/1935/summary/>
- [8] Knoll, G. F. (2010). *Radiation Detection and Measurement* (4th ed.). John Wiley & Sons.
- [9] Krane, K. S. (1987). *Introductory nuclear physics* (3ª ed.). Wiley. ISBN: 978-0471805533.
- [10] Gurney, R. W., & Condon, E. U. (1929). *Quantum mechanics and radioactive disintegration*. *Physical Review*, 33(2), 127–140. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.33.127>
- [11] Gamow, G. (1928). *Zur Quantentheorie des Atomkernes*. *Zeitschrift für Physik*, 51(3–4), 204–212. <https://doi.org/10.1007/BF01343196>
- [12] International Atomic Energy Agency. (s. f.). IAEA Live Chart of Nuclides [Base de datos]. <https://www-nds.iaea.org/relnsd/vcharthtml/VChartHTML.html>
- [13] Laboratoire National Henri Becquerel. (2008). Comments on evaluation of decay data: ^{137m}Ba LNHB/DDEP. https://www.lnhb.fr/nuclides/Ba-137m_tables.pdf
- [14] Maris, P., Vary, J. P., Navrátil, P., Ormand, W. E., Nam, H., & Dean, D. J. (2011). *Origin of the anomalous long lifetime of ^{14}C* . *Physical Review Letters*, 106(20), 202502. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.202502>
- [15] J. J. Sakurai & Jim Napolitano – *Modern Quantum Mechanics* (2ª ed., Addison–Wesley, 2011).
- [16] Consejo de Seguridad Nuclear. (1998). *Informe sobre el incidente radiológico de la acería Acerinox (Los Barrios, Cádiz)*. Madrid: CSN.
- [17] Consejo de Seguridad Nuclear. (2013). *Palomares: En el camino de la normalización radiológica (1966–2013)*. Madrid: CSN.

- [18] Mistry, P., et al. (2024). *Comparison of radiometric techniques for estimating recent OC sequestration rates in wetland sediments: ^{137}Cs and ^{210}Pb* . *Biogeosciences*, 21, 4699–4715. <https://doi.org/10.5194/bg-21-4699-2024>
- [19] Foucher, A., Chaboche, P.-A., Sabatier, P., & Evrard, O. (2021). *A worldwide meta-analysis (1977–2020) of sediment core dating using fallout radionuclides including ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$* . *Earth System Science Data*, 13, 4951–4966.
- [20] Lougheed, B. C., Ascough, P., Dolman, A. M., Löwemark, L., & Metcalfe, B. (2020). *Re-evaluating ^{14}C dating accuracy in deep-sea sediment archives*. *Geochronology*, 2(1), 17–31. <https://doi.org/10.5194/gchron-2-17-2020>
- [21] Chui, H., Wang, W., Li, S., Zhang, Y., & Zhao, H. (2024). *Radiocarbon chronology of lacustrine sediments from Lop Nur, northwestern China: Implications for late Holocene environmental change*. *Quaternary International*, 695–696, 19–30. <https://doi.org/10.1016/j.quaint.2024.01.019>
- [22] Groom, D. E., & Klein, S. R. (2021). *Passage of particles through matter*. In *Review of Particle Physics*. Particle Data Group. <https://pdg.lbl.gov/2021/reviews/rpp2021-rev-passage-particles-matter.pdf>
- [23] NaI(Tl) Scintillation Crystals, <https://luxiumsolutions.com/radiation-detection-scintillators/crystal-scintillators/naitl-scintillation-crystals>
- [24] BGO Scintillator Crystal, <https://luxiumsolutions.com/radiation-detection-scintillators/crystal-scintillators/bgo-bismuth-germanate>
- [25] Laboratoire National Henri Becquerel <http://www.lnhb.fr> Laraweb
- [26] Currie, L. A. (1968). *Limits for qualitative detection and quantitative determination: Application to radiochemistry*. *Analytical Chemistry*, 40(3), 586–593. <https://doi.org/10.1021/ac60259a007>
- [27] Comité Nobel. (n.d.). Premio Nobel de Química 1944: Otto Hahn - Datos. Nobel Prize. <https://www.nobelprize.org/prizes/chemistry/1944/hahn/facts/>
- [28] Scharff-Goldhaber, G., & Klaiber, G. S. (1946). *Spontaneous emission of neutrons from uranium*. *Physical Review*, 70(3-4), 229.
- [29] Koide, M., Goldberg, E. D., & Horibe, Y. (1972). *Lead-210 as a tracer for sediment accumulation*. *Earth and Planetary Science Letters*, 14(4), 442–446.
- [30] Geyh, M. A., & Schleicher, H. (1990). *Absolute Age Determination: Physical and Chemical Dating Methods*. Springer.
- [31] American Physical Society. (2024, enero). Boltwood and the age of the Earth. APS News. <https://www.aps.org/apsnews/2024/01/boltwood-earth-age>
- [32] Appleby, P. G., & Oldfield, F. (1994). *^{210}Pb -Lead dating of a modern period saltmarsh deposit from the Severn Estuary (Southwest Britain)*. *Marine Geology*, 116(3-4), 327–334.
- [33] Arias-Ortiz, A., Masqué, P., Garcia-Orellana, J., Serrano, O., Mazarrasa, I., Marbá, N., ... & Duarte, C. M. (2018). *Reviews and syntheses: ^{210}Pb -derived sediment and carbon accumulation rates in vegetated coastal ecosystem—setting the record straight*. *Biogeosciences*, 15(22), 6791–6818.
- [34] J.A. Sanchez-Cabeza and A.C. Ruiz-Fernández. *^{210}Pb sediment radiochronology: An integrated formulation and classification of dating models*. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 82:183–200, 2012. Environmental Records of Anthropogenic Impacts
- [35] López Lora, M. (2019). *Low-Energy Accelerator Mass Spectrometry of actinides (^{236}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{240}Pu) at the Centro Nacional de Aceleradores and its applications in oceanography*.
- [36] National Archives. (s.f.). Test Ban Treaty (1963). <https://www.archives.gov/milestone-documents/test-ban-treaty>

- [37] Libby, W. F. (1946). *Atmospheric Helium Three and Radiocarbon from Cosmic Radiation*. *Physical Review*, 69(11), 671â672.
- [38] Libby, W. F. (1949). *Age determinations by radiocarbon content: Checks with samples of known age*. *Science*, 109(2827), 227â228.
- [39] Rodríguez Álvarez, A. (2023). *Puesta a punto del método de datación por Carbono-14 en sedimentos mediante blancos sólidos en el Laboratorio de Radiaciones Ionizantes y Datación*.
- [40] Schuur, E. A. G., Druffel, E. R. M., & Trumbore, S. E. (Eds.). (2016). *Radiocarbon and climate change: Mechanisms, applications and laboratory techniques*. Springer.
- [41] Suess, H. E. (1955). *Radiocarbon Concentration in Modern Wood*. *Science*, 122(3166), 415-417
- [42] Friedlingstein, P., Jones, M. W., O'Sullivan, M., Andrew, R. M., Peters, G. P., Canadell, J. G., ... & Zheng, B. (2024). *Global Carbon Budget 2024*. *Earth System Science Data Discussions*
- [43] Usoskin, I. G., Solanki, S. K., Krivova, N. A., Hofer, B., Kovaltsov, G. A., Wacker, L., ... & Kromer, B. (2021). *Solar cyclic activity over the last millennium reconstructed from annual 14C data*. *Astronomy & Astrophysics*, 649, A141.
- [44] Scholz, D., & Hoffmann, D. (2008). *230Th/U-dating of fossil corals and speleothems*. *E&G Quaternary Science Journal*, 57(1/2), 52-76.
- [45] M. Baginova and P. Vojtyla and P.P. Povinec. *The neutron component of background of an HPGe detector operating in a surface laboratory*. *Applied Radiation and Isotopes*, 166:109422, 2020.
- [46] A.J. Khan, X. Li, D. K Haines, T.J. Homan, and T.M. Semkow. *Investigation of neutron shielding materials for low-background gamma spectrometry*. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 328(3):941– 950, 2021.
- [47] Romero Fuentes, D. (2024). *Determinación por simulación Montecarlo de la eficiencia y las correcciones por suma en coincidencia en detectores HPGe*.
- [48] Gorla, P., & the CUORE Collaboration. (2012). *The CUORE experiment: status and prospects*. *Journal of Physics: Conference Series*, 375, 042013.
- [49] Canberra Industries, Inc. (2003). *Germanium detectors user's manual* (Manual No. 9231358B). Canberra Industries.
- [50] Rivas Gómez, R. (2024) *Implementación y puesta a punto de un blindaje activo anti-muones adaptado al espectrómetro de rayos- γ Mazinger y aplicación a la datación por 210Pb y 137Cs de un testigo sedimentario de la laguna de Sobrado dos Monxes (Galicia, España)*
- [51] B. Quintana, C. Pedrosa, R. Bombín, S. Martín, J.C. Lozano, *Mazinger, a γ -ray spectrometry system of high efficiency and very low background for palaeoclimate applications*, *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 126, 2017, Pages 116-120, ISSN 0969-8043.
- [52] I. Radulescu, A.M. Blebea-Apostu, R.M. Margineanu, and N. Mocanu. *Background radiation reduction for a high-resolution gamma-ray spectrometer used for environmental radioactivity measurements*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 715:112â118, 2013
- [53] García-León, M. (2018). *Accelerator mass spectrometry (AMS) in radioecology*. *Journal of Environmental Radioactivity*, 186, 116-123.
- [54] Alvarez, L.W., Cornog, R., 1939. *^3He in helium*. *Phys. Rev.* 56, 379

- [55] Gove, H.E., Purser, K.H., Litherland, A.E., 2010. *Accelerator mass spectrometry (AMS) 1977e1987*. Nuc. Instrum. Meth. Phys. Res B268, xvii-xxii.
- [56] García-León, M. (2022). *Accelerator Mass Spectrometry (AMS)*. En M. García-León (Ed.), *Detecting Environmental Radioactivity* (pp. 547-574). Springer
- [57] Middleton, R. (1984). *A review of ion sources for accelerator mass spectrometry*. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 5(2), 193-199
- [58] Imao, H., Okuno, H., Kuboki, H., Yokouchi, S., Fukunishi, N., Kamigaito, O., ... & Yano, Y. (2012). *Charge stripping of U 238 ion beam by helium gas stripper*. Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams, 15(12), 123501.
- [59] Purser, K. H., Liebert, R. B., & Russo, C. J. (1980). MACS: *An accelerator-based radioisotope measuring system*. Radiocarbon, 22(3), 794-806.
- [60] Schulze-König, T., Seiler, M., Suter, M., Wacker, L., & Synal, H. A. (2011). *The dissociation of ^{13}CH and $^{12}\text{CH}_2$ molecules in He and N₂ at beam energies of 80-250 KeV and possible implications for radiocarbon mass spectrometry*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 269(1), 34-39.
- [61] M Suter H. A Synal, S Jacob. *New concepts for radiocarbon detection systems*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 161-163:29-36, 2000.
- [62] Guilhaus, M. (1995). *Principles and instrumentation in time-of-flight mass spectrometry*. Journal of Mass Spectrometry, 30(11), 1519-1532.
- [63] Bronk Ramsey, C. (2008). *Radiocarbon dating: revolutions in understanding*. Archaeometry, 50(2), 249-275.
- [64] Stuiver, M., & Reimer, P. J. (1986). *A computer program for radiocarbon age calibration*. Radiocarbon, 28(2B), 1022-1030.
- [65] Stuiver, M., & Reimer, P. J. (1993). *Extended 14C data base and revised CALIB 3.0 14C age calibration program*. Radiocarbon, 35(1), 215-230.
- [66] Van der Plicht, J. (1993). *The Groningen radiocarbon calibration program*. Radiocarbon, 35(1), 231-237.
- [67] Synal, H. A., Stocker, M., & Suter, M. (2007). *MICADAS: A new compact radiocarbon AMS system*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 259(1), 7-13.
- [68] Fahrni, S. M., Wacker, L., Synal, H. A., & Szidat, S. (2013). *Improving a gas ion source for 14C AMS*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 294, 320-327.
- [69] Döbeli, M., Kottler, C., Stocker, M., Weinmann, S., Synal, H.-A., Grajcar, M., & Suter, M. R. (2004). *Gas ionization chambers with silicon nitride windows for the detection and identification of low energy ions*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 219-220, 415-419.
- [70] Huerta, P., Armenteros, I., Recio, C., Carrasco-García, P., Rueda-Gualdrón, C., & Cidón-Trigo, A. (2021). *The origin of the saline waters in the Villafáfila lakes (NW Spain)*. A hydrogeological, hydrochemical, and geophysical approach. Science of The Total Environment, 789, 147909.
- [71] Armenteros, I., Huerta, P., Cidón-Trigo, A., Rueda-Gualdrón, M. C., Recio, C., & Martínez-Graña, A. (2019). *Hidrogeología del entorno de las Lagunas de Villafáfila (Zamora)*. Geogaceta, 66, 51-54.
- [72] Santisteban, J. I., García del Cura, M. A., Mediavilla, R., & Dabrio, C. J. (2003). *Estudio preliminar de los sedimentos recientes de las Lagunas de Villafáfila (Zamora)*. Geogaceta, 33, 51-54.

- [73] Fundación Patrimonio Natural. (s.f.). Reserva Natural Lagunas de Villafáfila. https://patrimonionatural.org/ficheros/villafafilaapdf221010_135549.pdf
- [74] López Saéz, J. A., Abel Schaad, D., Iriarte, E., Alba Sánchez, F., Pérez Díaz, S., Guerra Doce, E., ... & Abarquero Moras, F. J. (2017). *Una perspectiva paleoambiental de la explotación de la sal en las Lagunas de Villafáfila (Tierra de Campos, Zamora)*.
- [75] Boggs, S. (2009). *Principles of Sedimentology and Stratigraphy*. Pearson.
- [76] Moras, F. J. A., de Castro, G. D., & Doce, E. G. (2010). *Cuarenta siglos de explotación de sal en las lagunas de Villafáfila, Zamora, 2500 aC-1500 dC*. Junta de Castilla y León.
- [77] Sosa Nájera, S. (s.f.). *Palinomorfos*. Instituto de Geofísica, Universidad Nacional Autónoma de México. <https://www.geofisica.unam.mx/iframes/laboratorios/institucionales/paleolimnologia/tema-14-palinomorfos>
- [78] Junta de Castilla y León. (2005). *Boletín Oficial de Castilla y León, 19 de enero de 2005*. <https://bocyl.jcyl.es/boletines/2005/01/19/pdf/BOCYL-D-19012005-8.pdf>
- [79] Fundación Patrimonio Natural. (s.f.). Reserva natural Lagunas de Villafáfila. <https://patrimonionatural.org/espacios-naturales/reserva-natural/reserva-natural-lagunas-de-villafafila>
- [80] PNT-01.02.01-LRID. *Recepción y conservación de muestras de agua. Revisión 3.Mayo,2025*. David Borrego Alonso, Begoña Quintana Arnés.
- [81] Komada, T., Anderson, M. R., & Dorfmeier, C. L. (2008). *Carbonate removal from coastal sediments for the determination of organic carbon and its isotopic signatures, ¹³C and ¹⁴C: Comparison of fumigation and direct acidification by hydrochloric acid*. *Limnology and Oceanography: Methods*, 6(6), 254–262.
- [82] Rui Bao. *Influence of different acid treatments on the radiocarbon content spectrum of sedimentary organic matter determined by rpo/accelerator mass spectrometry*. *Radiocarbon*, 61, December 2018.
- [83] B. Quintana, F. Fernández. *Continuous component determination in γ -ray spectra, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 411, núm. 2, pp. 475–493, 1998.
- [84] B. Quintana, F. Fernández. *Gamma-ray Spectral Analysis with the COSP AJ Continuum Fitting Routine, Applied Radiation and Isotopes*, vol. 49, núm. 9, pp. 1235–1240, 1998
- [85] Santamaría Vicente, R. and Quintana Arnés, B. *Galea: analizador experto de líneas gamma*. Universidad de Salamanca, 2006.
- [86] Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB). LARA – Library of Alpha, Gamma and Electron Emissions. Disponible en: <http://www.lnhb.fr/Laraweb/index.php>
- [87] Edwards, K. W. (1968). *Isotopic analysis of uranium in natural waters by alpha spectrometry* (U.S. Geological Survey, Water-Supply Paper 1696-F). U.S. Geological Survey. <https://doi.org/10.3133/wsp1696F>
- [88] R.D. 3/2023, Boletín Oficial del Estado del 11 de enero de 2023, Sec1.,parte E, pag 4311.
- [89] Turekian, K. K., & Wedepohl, K. H. (1961). *Distribution of the elements in some major units of the Earth's crust*. *Geological Society of America Bulletin*, 72(2), 175–192. [https://doi.org/10.1130/0016-7606\(1961\)](https://doi.org/10.1130/0016-7606(1961))
- [90] Cumberland, S. A., Douglas, G., Grice, K., & Moreau, J. W. (2016). *Uranium mobility in organic matter-rich sediments: A review of geological and geochemical processes*. *Earth-Science Reviews*, 159, 160–185. <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2016.05.009>

Anexo A

Tablas e imágenes adicionales al capítulo

A.1. CAPÍTULO 5: PREPARACIÓN DE MUESTRAS

A.1.1. Imágenes preparación de muestras de sedimento para espectrometría gamma



Figura A.1: Izquierda, muestras en papel de aluminio introducidas en crisol de secado durante su estancia en estufa. Derecha, muestra seca. Imágenes propias.

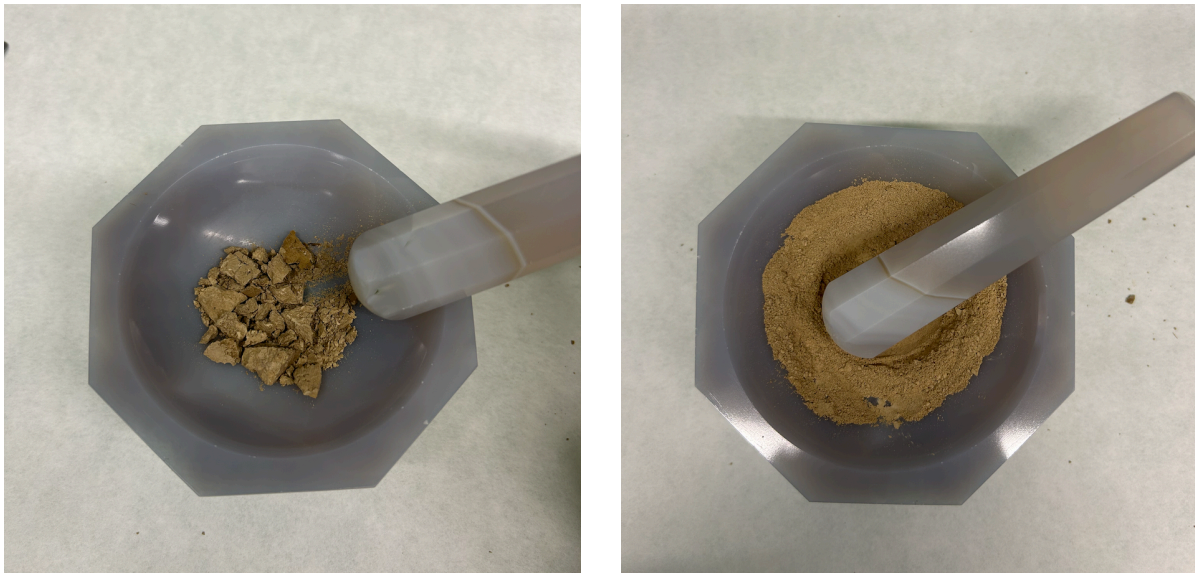


Figura A.2: *Proceso de disgregación y molido de sedimento mediante mortero de Agata. Imágenes propias.*

A.1.2. **Imágenes preparación de muestras de agua para espectrometría gamma**

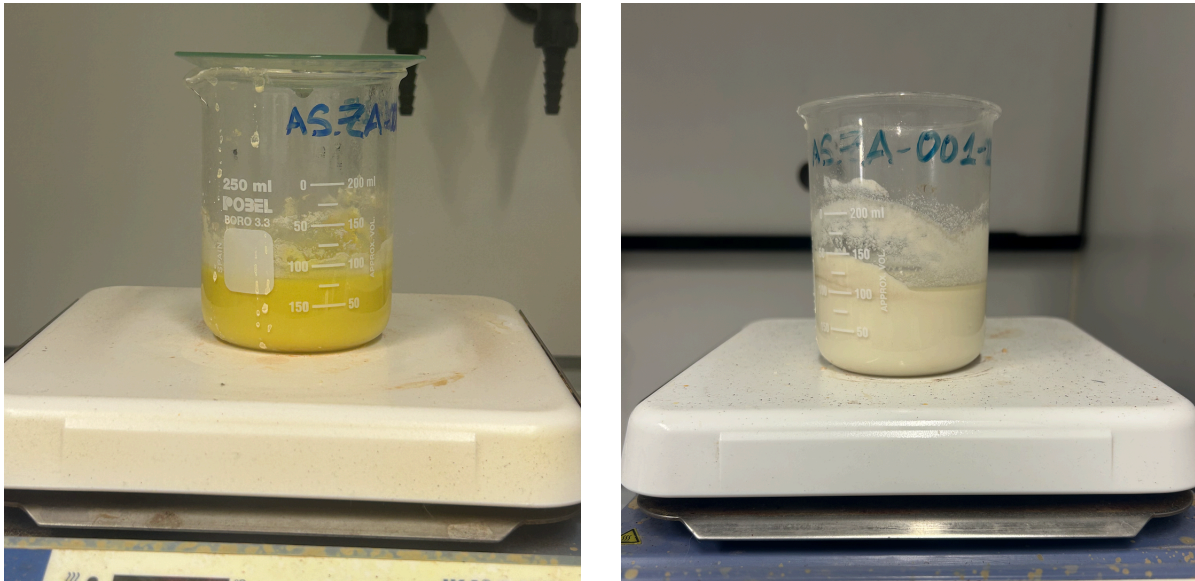


Figura A.3: *Izquierda, resto de muestra de agua tras evaporación. Derecha, resto de muestra de agua tras digestión acida. Imágenes propias.*

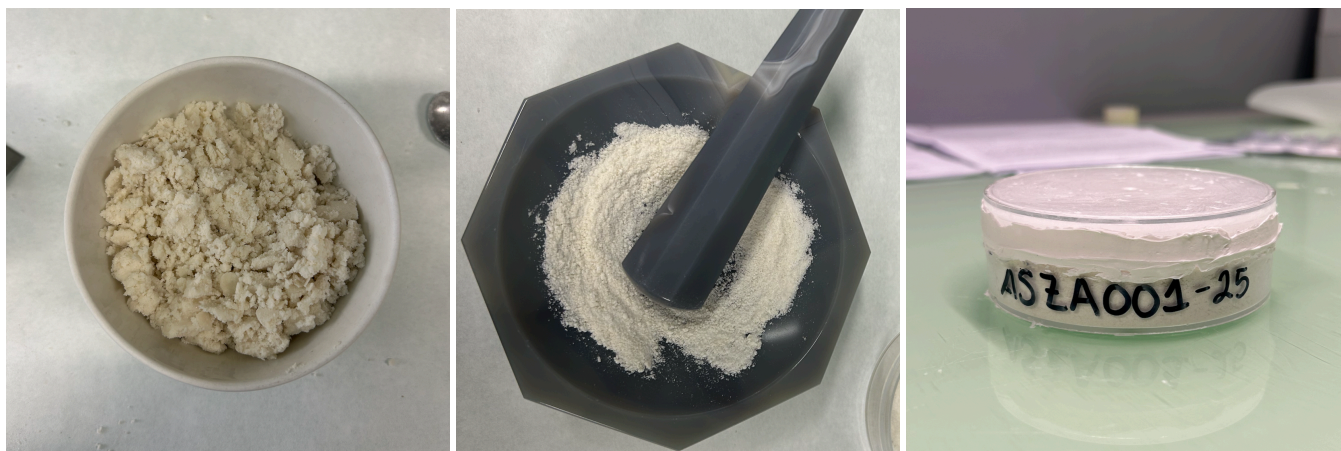


Figura A.4: De izquierda a derecha: muestra cristalina tras secado en estufa, molienda de sales, muestra sellada. Imágenes propias.

A.1.3. Imágenes de la preparación de muestras de sedimento para AMS

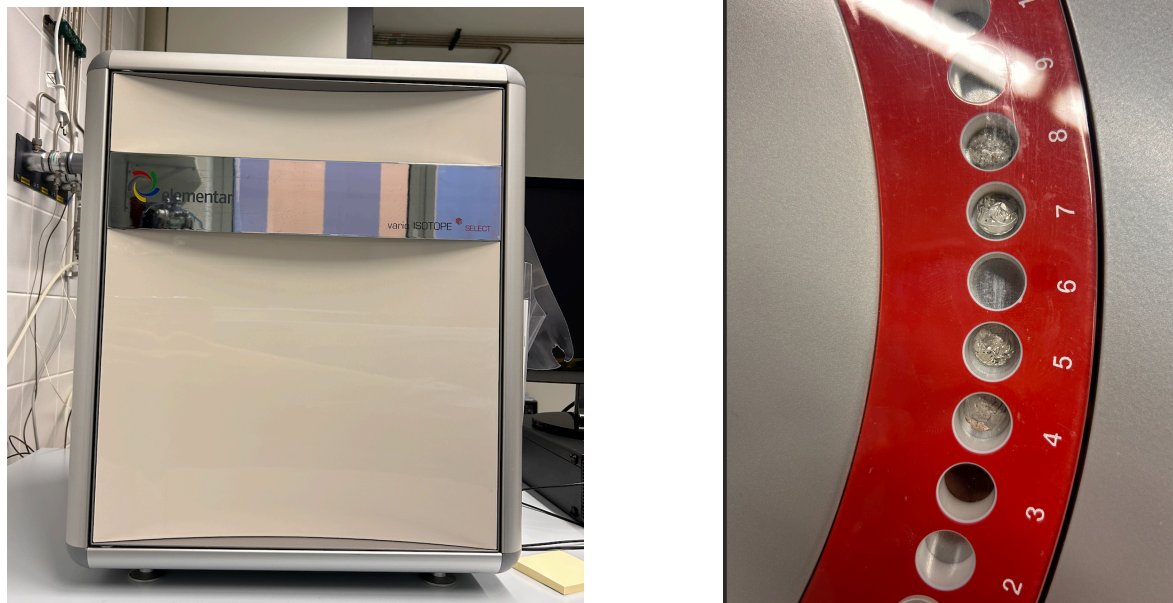


Figura A.5: A la izquierda VarioIsotope Select (Elementar). A la derecha carrusel de inserción de muestras. Imágenes propias.

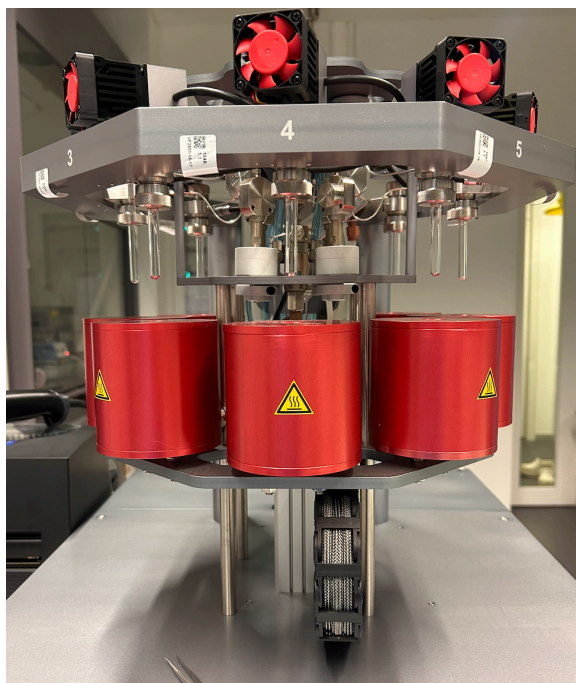


Figura A.6: Sistema AGE3 de ión plus. Imagen propia.

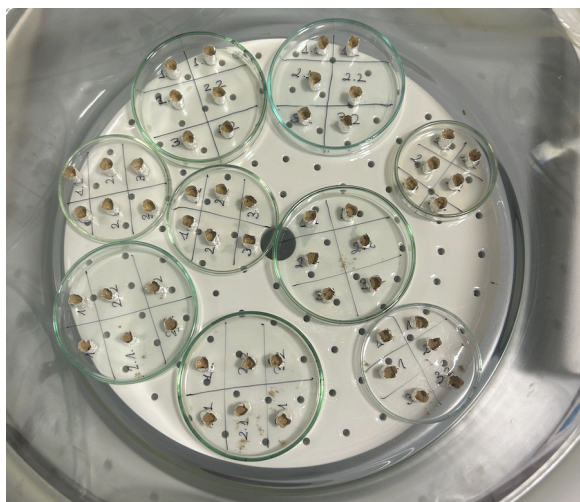


Figura A.7: Izquierda, muestras en el interior del desecador. Derecha, desecador lleno con HCl y sellado en el horno. Imágenes propias.

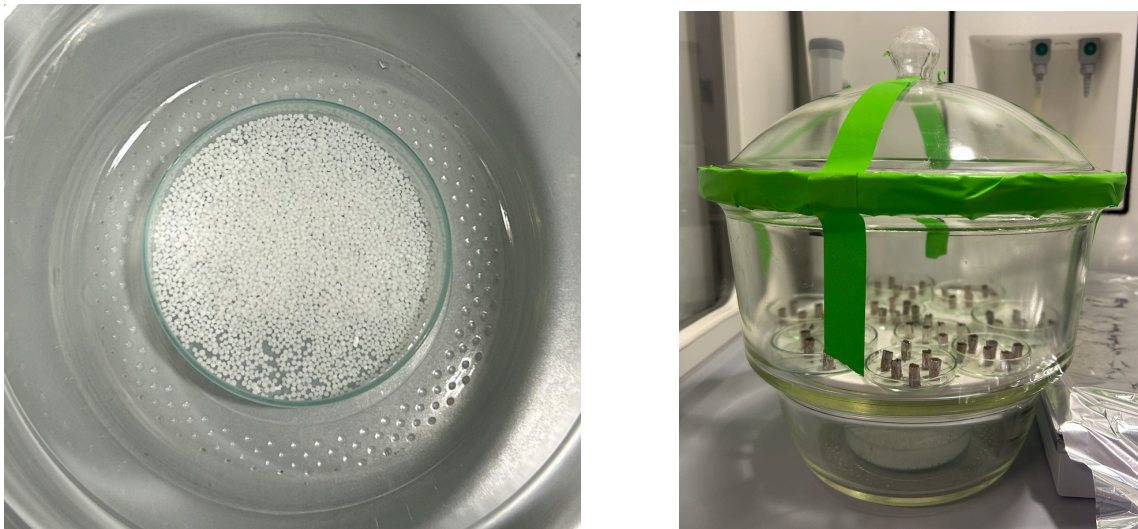


Figura A.8: Izquierda, placa Petri con fondo de NaOH. Derecha, desecador con NaOH y sellado. Imágenes propias.

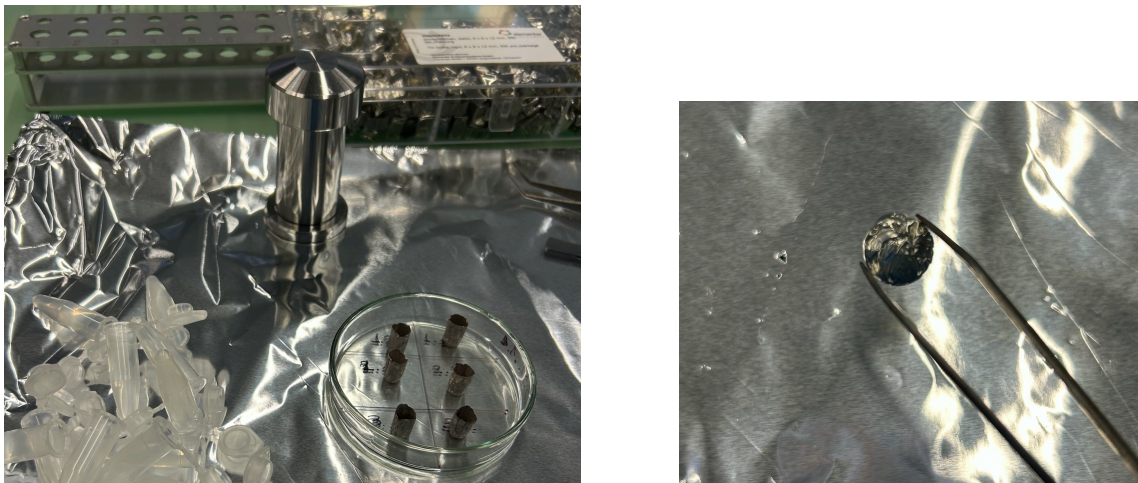


Figura A.9: Izquierda, muestras ya fumigadas, prensa y Eppendorf. Derecha pastilla reencapsulada y prensada. Imágenes propias.



Figura A.10: Comparación de muestra correctamente prensada con muestras que atascaron el carrusel del EA. Imagen propia.

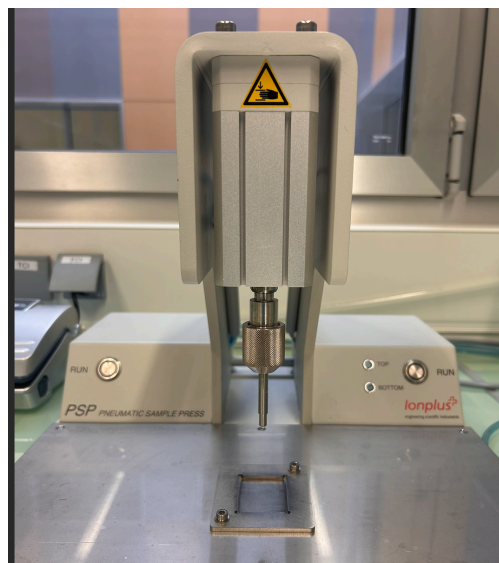
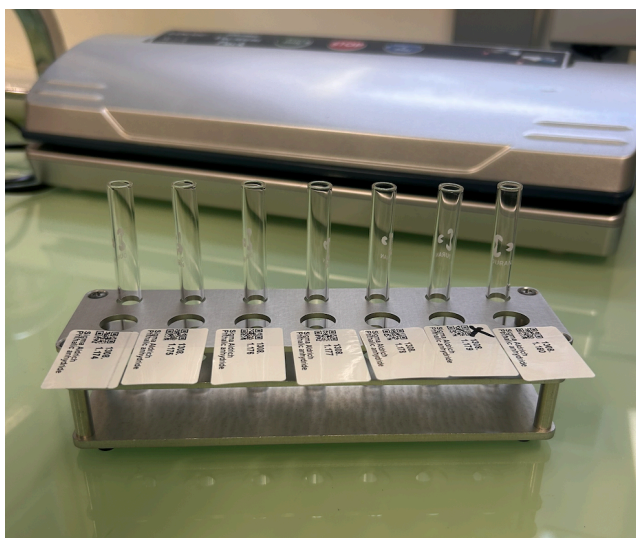


Figura A.11: Izquierda, muestras grafitizadas, cada una se encuentra dentro del tubo de vidrio correspondiente. Derecha, sistema neumático para el prensado de los cátodos de ion plus. Imágenes propias.

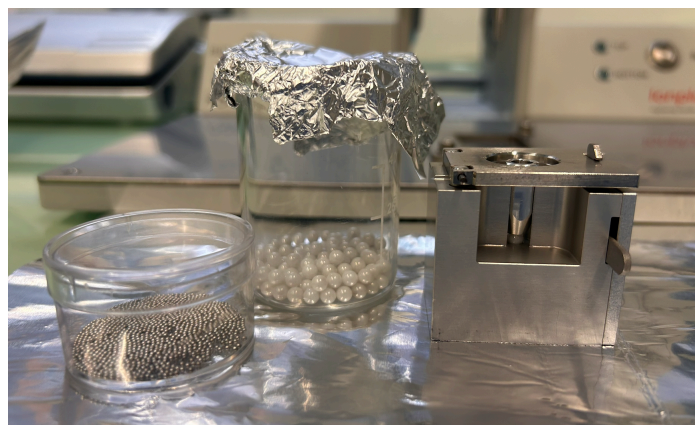


Figura A.12: Izquierda, esferas de prensado, sistema que inmoviliza el cátodo para su prensado, el cátodo se encuentra dentro. Derecha, muestras preparadas y envasadas al vacío esperando el momento de su medida.

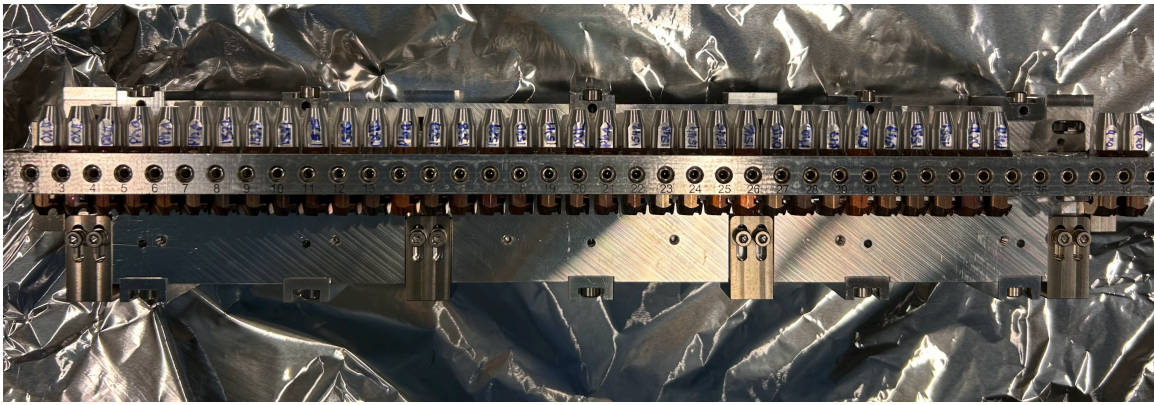


Figura A.13: Muestras ensambladas en el carrusel del acelerador MICADAS, listas para su medida. Imagen propia.

A.1.4. Preparación de muestras sedimentarias para espectrometría gamma

Identificación	Z (cm)	$m_H(g)$	$m_S(g)$	$m_{agua}(g)$	$m_H/m_S(g)$	%C
VF2501-0-1	0-1	29,428	26,691	2,737	1,102544(56)	0,000056
VF2501-1-2	1-2	25,055	22,318	2,737	1,122636(67)	0,000067
VF2501-2-3	2-3	27,995	25,258	2,737	1,108362(59)	0,000059
VF2501-3-4	3-4	31,340	28,603	2,737	1,095689(52)	0,000052
VF2501-4-5	4-5	32,823	30,086	2,737	1,090973(49)	0,000049
VF2501-5-6	5-6	34,396	31,659	2,737	1,086453(47)	0,000047
VF2501-6-7	6-7	33,883	31,146	2,737	1,087876(47)	0,000047
VF2501-7-8	7-8	31,042	28,305	2,737	1,096697(52)	0,000052
VF2501-8-9	8-9	34,687	31,950	2,737	1,085665(46)	0,000046
VF2501-9-10	9-10	30,971	28,234	2,737	1,096940(53)	0,000053
VF2501-10-11	10-11	35,147	32,410	2,737	1,084449(46)	0,000046
VF2501-11-12	11-12	32,842	30,105	2,737	1,090915(49)	0,000049
VF2501-12-13	12-13	30,756	28,019	2,737	1,097684(53)	0,000053
VF2501-13-14	13-14	32,761	30,024	2,737	1,091160(49)	0,000049
VF2501-14-15	14-15	33,769	31,032	2,737	1,088199(48)	0,000048
VF2501-15-16	15-16	33,922	31,185	2,737	1,087767(47)	0,000047
VF2501-16-17	16-17	35,895	33,158	2,737	1,082544(44)	0,000044
VF2501-17-18	17-18	36,041	33,304	2,737	1,082182(44)	0,000044
VF2501-18-19	18-19	35,096	32,359	2,737	1,084582(46)	0,000046
VF2501-19+	19+	11,686	8,949	2,737	1,30584(18)	0,00018
Incertidumbre	—	0,001	0,001	0,001	—	—

Cuadro A.1: Datos aportados del muestreo sobre la profundidad, masa húmeda (m_H), seca (m_S) y de agua (m_{agua}), relación masa húmeda - masa seca y el contenido en carbono de cada una de las secciones del testigo.

Identificación	m_H (g)	m_{s1} (g)	m_{s2} (g)	m_s (g)	m_{C11} (g)	m_{total} (g)	m_{sed} (g)	m_{14C} (g)	m_{resto} (g)
VF2501-0-1	29,428	25,533	25,525	25,525	8,082	26,654	18,572	2,997	2,765
VF2501-1-2	25,055	22,183	22,177	22,172	8,056	26,632	18,576	2,990	0,000
VF2501-2-3	27,995	24,443	24,418	24,412	8,082	26,635	18,553	3,000	1,823
VF2501-3-4	31,340	26,134	26,063	26,048	8,082	26,640	18,558	2,999	4,028
VF2501-4-5	32,823	27,016	26,647	26,611	8,082	26,641	18,559	2,998	4,700
VF2501-5-6	34,396	29,845	27,464	27,405	8,018	26,577	18,559	2,992	6,005
VF2501-6-7	33,883	27,544	27,049	26,985	8,090	26,648	18,558	2,997	5,517
VF2501-7-8	31,042	25,072	24,815	24,792	8,084	26,645	18,561	2,996	3,403
VF2501-8-9	34,687	28,390	27,859	27,807	8,114	26,668	18,554	2,995	6,351
VF2501-9-10	30,971	25,620	24,937	24,881	8,133	26,677	18,544	2,998	3,330
VF2501-10-11	35,147	28,632	28,154	28,110	8,122	26,698	18,576	2,995	6,544
VF2501-11-12	32,842	26,763	26,467	26,422	8,092	26,642	18,550	2,998	4,966
VF2501-12-13	30,756	25,238	24,955	24,926	8,200	26,657	18,457	3,008	3,539
VF2501-13-14	32,761	27,113	26,780	26,736	8,194	26,744	18,550	3,006	5,258
VF2501-14-15	33,769	28,069	27,885	27,863	8,113	26,646	18,533	3,002	6,454
VF2501-15-16	33,922	28,244	27,945	27,908	8,140	26,667	18,527	3,004	6,356
VF2501-16-17	35,895	30,348	30,190	30,156	8,140	26,693	18,553	2,999	8,631
VF2501-17-18	36,041	30,603	30,353	30,313	8,082	26,654	18,572	2,997	8,728
VF2501-18-19	35,096	29,943	29,387	29,303	8,149	26,693	18,544	3,004	7,731
VF2501-19+	11,686	9,936	9,903	9,890	8,036	16,479	8,443	1,509	0,000
Incertidumbre	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001

Cuadro A.2: Datos intermedios: masa húmeda (m_H), masas tras control de secados (m_{s1} , m_{s2}), masa seca (m_s), masa de la geometría (m_{C11}), masa total muestra y geometría, masa neta de sedimento (m_{sed}), masa reservada para el análisis por AMS (m_{14C}) masa sobrante (m_{resto}).

Identificación	Sellado	Equilibrio	h_1 (cm)	h_2 (cm)	h_3 (cm)	h_{med} (cm)	m_{sec} (g/cm ²)	ρ (g/cm ³)
VF2501-0-1	4/3/25	1/4/25	1,30	1,35	1,35	1,333(24)	1,691(43)	1,27(27)
VF2501-1-2	4/3/25	1/4/25	1,30	1,29	1,34	1,310(22)	1,691(39)	1,29(26)
VF2501-2-3	4/3/25	1/4/25	1,29	1,31	1,38	1,327(39)	1,689(70)	1,27(45)
VF2501-3-4	4/3/25	1/4/25	1,35	1,46	1,40	1,403(45)	1,689(81)	1,20(47)
VF2501-4-5	4/3/25	1/4/25	1,40	1,50	1,36	1,420(59)	1,689(106)	1,19(60)
VF2501-5-6	6/3/25	3/4/25	1,46	1,40	1,44	1,433(25)	1,689(45)	1,18(25)
VF2501-6-7	6/3/25	3/4/25	1,43	1,50	1,40	1,443(42)	1,689(76)	1,17(41)
VF2501-7-8	6/3/25	3/4/25	1,45	1,44	1,50	1,463(26)	1,690(47)	1,15(25)
VF2501-8-9	6/3/25	3/4/25	1,42	1,42	1,38	1,407(19)	1,689(34)	1,20(19)
VF2501-9-10	6/3/25	3/4/25	1,40	1,44	1,44	1,427(19)	1,688(34)	1,18(19)
VF2501-10-11	6/3/25	3/4/25	1,44	1,50	1,40	1,447(41)	1,691(74)	1,17(40)
VF2501-11-12	6/3/25	3/4/25	1,44	1,44	1,40	1,427(19)	1,689(34)	1,18(19)
VF2501-12-13	10/3/25	7/4/25	1,40	1,40	1,48	1,427(38)	1,680(68)	1,18(38)
VF2501-13-14	10/3/25	7/4/25	1,40	1,43	1,43	1,420(14)	1,689(26)	1,19(14)
VF2501-14-15	10/3/25	7/4/25	1,36	1,42	1,36	1,380(28)	1,687(51)	1,22(30)
VF2501-15-16	10/3/25	7/4/25	1,35	1,42	1,42	1,397(33)	1,686(60)	1,21(34)
VF2501-16-17	10/3/25	7/4/25	1,42	1,34	1,40	1,387(34)	1,689(61)	1,22(36)
VF2501-17-18	4/3/25	1/4/25	1,43	1,35	1,40	1,393(33)	1,691(60)	1,21(35)
VF2501-18-19	10/3/25	7/4/25	1,44	1,40	1,41	1,417(17)	1,688(31)	1,19(17)
VF2501-19+	10/3/25	7/4/25	0,89	0,80	0,86	0,850(37)	0,769(31)	0,90(48)
Incertidumbre	---	---	0,01	0,01	0,01	---	---	---

Cuadro A.3: Datos intermedios: fechas de sellado y equilibrio, medidas de las alturas de muestra en geometría (h_1, h_2, h_3), altura media (h_{med}), masa de la sección (m_{sec}), densidad aparente de las muestras (ρ).

A.1.5. Preparación de muestras de agua para espectrometría gamma

Identificación	$m_{\text{cristal}}(g)$	$m_H(g)$	$m_{s1}(g)$	$m_{s2}(g)$	$m_{s3}(g)$	$m_S(g)$	$m_{\text{agua}}(g)$	$m_H/m_S(g)$
ASZA001-25	129,71	189,71	171,10	168,31	167,38	166,32	23,39	1,140632(91)
Incertidumbre	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	—

Cuadro A.4: Datos aportados del muestreo, masa húmeda (m_H), seca (m_S) y de agua (m_{agua}), relación masa húmeda - masa seca.

Identificación	$m_H(g)$	$m_S(g)$	$m_m(g)$	$h_1(mm)$	$h_2(mm)$	$h_3(mm)$	$h_{\text{med}}(mm)$	$m(g/cm^2)$	$\rho(g/cm^3)$
ASZA001-25	189,71	166,32	153,053	19,54	20,12	19,92	19,86(24)	2,460(11)	1,2388(12)
Incertidumbre	0,01	0,01	0,01	0,02	0,02	0,02	—	—	—

Cuadro A.5: Datos: masa húmeda (m_H), seca (m_S) y masa de sales en geometría (m_m), alturas de muestra en geometría, altura media, masa de la sección, densidad de la muestra.

Identificación	Sellado	Equilibrio	$m_H(g)$	$m_S(g)$	$m_{c21}(g)$	$m_{\text{total}}(g)$	$m_{\text{muestra}}(g)$	$m_{\text{resto}}(g)$
ASZA001-25	14/08/2025	10/09/2025	189,71	166,32	37,390	190,443	153,053	13,27
Incertidumbre	—	—	0,01	0,01	0,001	0,001	0,001	0,01

Cuadro A.6: Datos intermedios: fechas de sellado y equilibrio, medidas de la masa de geometría, masa seca y masa muestra, el resto no era posible introducirlo en la geometría.

A.1.6. Preparación de muestras sedimentarias para medida por AMS

Identificación	Código muestra	m_{sub1} (mg)	m_{sub2} (mg)	$m_{muestra}$ (mg)
VF2501-0-1	1532.1.1	128,38	125,31	253,69
	1532.1.2	128,48	126,23	254,71
	1532.1.3	124,07	124,42	248,49
VF2501-1-2	1533.2.1	128,43	127,74	256,17
	1533.2.2	126,34	128,24	254,58
	1533.2.3	125,91	124,46	250,37
VF2501-2-3	1534.1.1	126,96	125,16	252,12
	1534.1.2	123,31	126,20	249,51
	1534.1.3	127,12	127,64	254,76
VF2501-3-4	1535.1.1	123,15	123,62	246,77
	1535.1.2	123,44	124,10	247,54
	1535.1.3	127,53	128,24	255,77
VF2501-4-5	1536.1.1	123,93	127,60	251,53
	1536.1.2	125,38	129,13	254,51
	1536.1.3	127,49	126,71	254,20
VF2501-5-6	1537.2.1	127,27	128,80	256,07
	1537.2.2	122,64	128,62	251,26
	1537.2.3	125,15	125,90	251,05
VF2501-6-7	1538.1.1	126,34	128,94	255,28
	1538.1.2	128,14	126,70	254,84
	1538.1.3	126,67	125,38	252,05
VF2501-7-8	1539.1.1	126,76	127,20	253,96
	1539.1.2	126,92	124,16	251,08
	1539.1.3	128,07	128,60	256,67
VF2501-8-9	1540.1.1	126,05	122,38	248,43
	1540.1.2	124,06	124,99	249,05
	1540.1.3	129,54	128,59	258,13
VF2501-9-10	1541.2.1	126,54	127,98	254,52
	1541.2.2	128,61	121,94	250,55
	1541.2.3	126,65	125,49	252,14
VF2501-10-11	1542.1.1	126,43	122,95	249,38
	1542.1.2	124,74	128,45	253,19
	1542.1.3	125,02	126,79	251,81
VF2501-11-12	1543.1.1	129,59	127,39	256,98
	1543.1.2	122,86	129,09	251,95
	1543.1.3	124,25	127,44	251,69
VF2501-12-13	1544.1.1	126,57	126,41	252,98
	1544.1.2	126,24	128,96	255,20
	1544.1.3	127,38	129,11	256,49
VF2501-13-14	1545.2.1	129,09	124,14	253,23
	1545.2.2	123,79	122,65	246,44
	1545.2.3	124,76	122,50	247,26
VF2501-14-15	1546.1.1	122,45	126,39	248,84
	1546.1.2	127,86	123,22	251,08
	1546.1.3	127,34	129,41	256,75
VF2501-15-16	1547.1.1	125,80	128,10	253,90
	1547.1.2	125,88	126,57	252,45
	1547.1.3	124,80	129,39	254,19
VF2501-16-17	1548.1.1	126,89	123,41	250,30
	1548.1.2	122,04	129,76	251,80
	1548.1.3	126,63	125,80	252,43
VF2501-17-18	1549.1.1	123,44	129,75	253,19
	1549.1.2	124,93	124,31	249,24
	1549.1.3	123,98	130,89	254,87
VF2501-18-19	1550.2.1	126,04	128,31	254,35
	1550.2.2	125,93	130,67	256,60
	1550.2.3	122,80	125,08	247,88
VF2501-19+	1550.1.1	130,48	121,53	252,01
	1550.1.2	123,39	123,52	246,91
	1550.1.3	121,26	130,60	251,86
Incertidumbre	—	0,01	0,01	0,01

Cuadro A.7: Se muestra el código de cada réplica y la masa de cada submuestra (m_{sub1} , m_{sub2}) así como la masa total de cada muestra $m_{muestra}$.

A.1.7. Preparación de muestras estandar y blancos

Identificación	Acetanilidas (mg)	Identificación	OXII (mg)	Identificación	Pha (mg)
A1	3,28	1002.6.47	5,25	1308.1.174	1,63
A2	1,92	1002.6.48	5,03	1308.1.175	1,77
A3	2,44	1002.6.49	5,30	1308.1.176	1,73
A4	2,23	1002.6.50	5,34	1308.1.177	1,59
A5	2,10	1002.6.51	5,43	1308.1.178	1,85
A6	3,03	1002.6.52	5,18	1308.1.179	1,59
A7	2,45	1002.6.53	5,56	1308.1.180	1,66
A8	2,19				
A9	3,07				
A10	2,02				
A11	2,06				
A12	2,44				
Incertidumbre	0,01	—	0,01	—	0,01

Cuadro A.8: Masas para acetanilida, ácido oxálico estandar y ácido ftálico.

A.2. CAPÍTULO 6: MARCHA EXPERIMENTAL Y RESULTADOS

A.2.1. Imágenes adicionales a la verificación de la eficiencia del pico 46,54 KeV

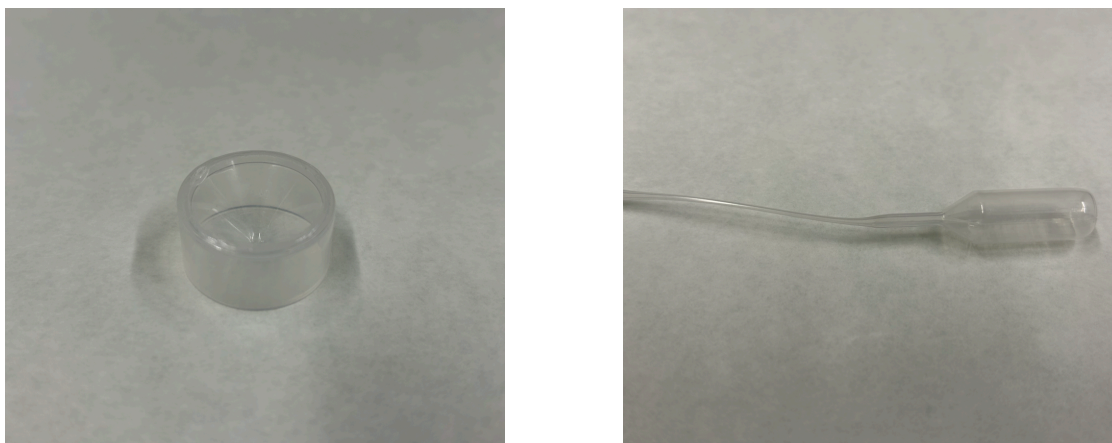


Figura A.14: Izquierda, recipiente plástico. Derecha, pignómetro. Imágenes propias.



Figura A.15: Izquierda, fuente marcada seca sin disgregar. Derecha, fuente marcada seca disgregada. Imágenes propias.

A.2.2. Resultados para el análisis químico de testigo sedimentario

Óxido	0–1 cm	4–5 cm	7–8 cm	Elemento	0–1 cm	4–5 cm	7–8 cm
Na ₂ O	0,65	1,01	1,39	Li	28,23	94,98	118,01
MgO	0,41	0,38	0,51	S	405,26	213,21	192,81
Al ₂ O ₃	5,78	8,68	10,84	V	28,70	95,45	113,44
P ₂ O ₅	0,07	0,10	0,10	Cr	23,61	74,95	86,03
K ₂ O	2,15	3,00	3,33	Co	5,79	14,56	16,42
CaO	1,21	0,59	0,40	Ni	12,65	33,96	35,23
TiO ₂	0,38	0,61	0,72	Cu	12,39	24,28	27,31
MnO	0,05	0,07	0,06	Zn	338,86	205,72	167,95
Fe ₂ O ₃	1,74	5,41	6,35	As	11,73	22,47	24,65
SiO ₂	54,06	39,63	34,29	Rb	88,95	42,12	45,24
M.V.	3,61	8,41	9,58	Sr	200,25	134,97	121,21
unidades	%	%	%	unidades	(ppm)	(ppm)	(ppm)
				Elemento	0–1 cm	4–5 cm	7–8 cm
				Zr	129,13	103,59	122,14
				Cd	0,06	0,12	0,15
				Sb	0,97	2,01	2,19
				Cs	3,56	7,63	8,83
				Ba	540,26	532,25	596,46
				Pb	28,68	36,44	38,72
				Th	8,82	6,54	8,11
				U	2,18	2,14	2,46
				unidades	(ppm)	(ppm)	(ppm)

Cuadro A.9: Resultados de composición química (óxidos, %) y elementos traza (ppm, bloques I y II) de las muestras.

A.2.3. Eficiencia MC con parafina según energía para el sistema Mazinger

Eficiencia VF2501-0-1		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.159581	0.00354660
40.090	0.211562	0.00518924
46.539	0.237515	0.00432564
59.541	0.266152	0.00167027
88.035	0.278110	0.00382107
122.062	0.263294	0.00199677
136.475	0.252993	0.00400962
165.858	0.226456	0.00200701
218.120	0.183941	0.00278470
391.699	0.102647	0.00088987
440.450	0.0916340	0.00125916
514.005	0.0794367	0.00067139
661.658	0.0631917	0.00049443
834.849	0.0518045	0.00009442
898.043	0.0486878	0.00025228
1115.546	0.0403558	0.00011447
1173.227	0.0387069	0.00015409
1332.499	0.0347348	0.00013792

Cuadro A.10: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-1-2		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.159314	0.00354067
40.090	0.211300	0.00518283
46.539	0.237174	0.00431945
59.541	0.265756	0.00166785
88.035	0.277781	0.00381657
122.062	0.262982	0.00199445
136.475	0.252724	0.00400537
165.858	0.226245	0.00200516
218.120	0.183785	0.00278235
391.699	0.102584	0.00088933
440.450	0.0915762	0.00125837
514.005	0.0793857	0.00067097
661.658	0.0631500	0.00049411
834.849	0.0517781	0.00009439
898.043	0.0486617	0.00025215
1115.546	0.0403429	0.00011444
1173.227	0.0387092	0.00015410
1332.499	0.0347192	0.00013787

Cuadro A.11: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-2-3		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160745	0.00357242
40.090	0.212910	0.00522224
46.539	0.238871	0.00435026
59.541	0.267643	0.00167940
88.035	0.279585	0.00384124
122.062	0.264601	0.00200652
136.475	0.254205	0.00402876
165.858	0.227494	0.00201612
218.120	0.184682	0.00279587
391.699	0.103052	0.00089334
440.450	0.0919193	0.00126307
514.005	0.0796707	0.00067334
661.658	0.0633646	0.00049576
834.849	0.0519203	0.00009457
898.043	0.0487851	0.00025276
1115.546	0.0404551	0.00011471
1173.227	0.0388134	0.00015448
1332.499	0.0347962	0.00013815

Cuadro A.12: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-3-4		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160408	0.00356493
40.090	0.212482	0.00521176
46.539	0.238535	0.00434414
59.541	0.267207	0.00167674
88.035	0.279191	0.00383585
122.062	0.264316	0.00200440
136.475	0.253877	0.00402357
165.858	0.227153	0.00201313
218.120	0.184488	0.00279294
391.699	0.102937	0.00089235
440.450	0.0918373	0.00126194
514.005	0.0796117	0.00067285
661.658	0.0633174	0.00049539
834.849	0.0518916	0.00009453
898.043	0.0487582	0.00025263
1115.546	0.0404269	0.00011464
1173.227	0.0387858	0.00015438
1332.499	0.0347750	0.00013807

Cuadro A.13: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-4-5		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160592	0.00356902
40.090	0.212742	0.00521813
46.539	0.238740	0.00434787
59.541	0.267505	0.00167856
88.035	0.279452	0.00383942
122.062	0.264490	0.00200569
136.475	0.254110	0.00402725
165.858	0.227389	0.00201520
218.120	0.184603	0.00279468
391.699	0.103020	0.00089307
440.450	0.0919047	0.00126286
514.005	0.0796427	0.00067311
661.658	0.0633449	0.00049561
834.849	0.0519116	0.00009455
898.043	0.0487771	0.00025272
1115.546	0.0404488	0.00011469
1173.227	0.0387987	0.00015443
1332.499	0.0347896	0.00013812

Cuadro A.14: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-5-6		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160785	0.00357330
40.090	0.212950	0.00522321
46.539	0.238968	0.00435201
59.541	0.267724	0.00167990
88.035	0.279689	0.00384265
122.062	0.264684	0.00200714
136.475	0.254276	0.00402987
165.858	0.227556	0.00201667
218.120	0.184719	0.00279643
391.699	0.103074	0.00089354
440.450	0.0919437	0.00126340
514.005	0.0796883	0.00067349
661.658	0.0633780	0.00049586
834.849	0.0519384	0.00009459
898.043	0.0487909	0.00025279
1115.546	0.0404542	0.00011471
1173.227	0.0388216	0.00015451
1332.499	0.0348026	0.00013817

Cuadro A.15: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-6-7		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160942	0.00357678
40.090	0.213125	0.00522751
46.539	0.239120	0.00435477
59.541	0.267894	0.00168094
88.035	0.279889	0.00384540
122.062	0.264828	0.00200821
136.475	0.254443	0.00403251
165.858	0.227682	0.00201777
218.120	0.184808	0.00279777
391.699	0.103118	0.00089391
440.450	0.0919787	0.00126388
514.005	0.0797077	0.00067365
661.658	0.0633910	0.00049596
834.849	0.0519631	0.00009462
898.043	0.0488071	0.00025287
1115.546	0.0404743	0.00011475
1173.227	0.0388369	0.00015456
1332.499	0.0348066	0.00013818

Cuadro A.16: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-7-8		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.161153	0.00358147
40.090	0.213428	0.00523494
46.539	0.239463	0.00436101
59.541	0.268269	0.00168324
88.035	0.280253	0.00385038
122.062	0.265107	0.00201030
136.475	0.254690	0.00403641
165.858	0.227956	0.00202018
218.120	0.184978	0.00280033
391.699	0.103211	0.00089470
440.450	0.0920610	0.00126500
514.005	0.0797602	0.00067408
661.658	0.0634283	0.00049625
834.849	0.0519911	0.00009465
898.043	0.0488480	0.00025307
1115.546	0.0404842	0.00011478
1173.227	0.0388509	0.00015462
1332.499	0.0348260	0.00013825

Cuadro A.17: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-8-9		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160437	0.00356557
40.090	0.212527	0.00521285
46.539	0.238577	0.00434492
59.541	0.267269	0.00167711
88.035	0.279260	0.00383680
122.062	0.264371	0.00200480
136.475	0.253945	0.00402464
165.858	0.227209	0.00201362
218.120	0.184516	0.00279337
391.699	0.102958	0.00089254
440.450	0.0918523	0.00126215
514.005	0.0796153	0.00067288
661.658	0.0633223	0.00049543
834.849	0.0518973	0.00009454
898.043	0.0487653	0.00025266
1115.546	0.0404306	0.00011465
1173.227	0.0387920	0.00015440
1332.499	0.0347826	0.00013810

Cuadro A.18: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-10-11		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160873	0.00357525
40.090	0.213056	0.00522582
46.539	0.239113	0.00435465
59.541	0.267886	0.00168090
88.035	0.279916	0.00384577
122.062	0.264847	0.00200836
136.475	0.254438	0.00403244
165.858	0.227711	0.00201802
218.120	0.184819	0.00279794
391.699	0.103132	0.00089403
440.450	0.0919980	0.00126414
514.005	0.0797143	0.00067370
661.658	0.0633917	0.00049597
834.849	0.0519645	9.462e-05
898.043	0.0488125	0.00025290
1115.546	0.0404744	0.00011475
1173.227	0.0388373	0.00015457
1332.499	0.0348102	0.00013820

Cuadro A.19: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-11-12		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.160745	0.00357242
40.090	0.212910	0.00522224
46.539	0.238871	0.00435026
59.541	0.267643	0.00167940
88.035	0.279585	0.00384124
122.062	0.264601	0.00200652
136.475	0.254205	0.00402876
165.858	0.227494	0.00201612
218.120	0.184682	0.00279587
391.699	0.103052	0.00089334
440.450	0.0919193	0.00126307
514.005	0.0796707	0.00067334
661.658	0.0633646	0.00049576
834.849	0.0519203	9.457e-05
898.043	0.0487851	0.00025276
1115.546	0.0404551	0.00011471
1173.227	0.0388134	0.00015448
1332.499	0.0347962	0.00013815

Cuadro A.20: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

Eficiencia VF2501-12-13		
E(KeV)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.161202	0.00358255
40.090	0.213323	0.00523236
46.539	0.239244	0.00435702
59.541	0.267904	0.00168101
88.035	0.279788	0.00384402
122.062	0.264747	0.00200761
136.475	0.254351	0.00403105
165.858	0.227600	0.00201705
218.120	0.184759	0.00279702
391.699	0.103091	0.00089367
440.450	0.0919473	0.00126345
514.005	0.0797023	0.00067360
661.658	0.0633869	0.00049593
834.849	0.0519407	9.459e-05
898.043	0.0488070	0.00025287
1115.546	0.0404546	0.00011471
1173.227	0.0388220	0.00015451
1332.499	0.0348008	0.00013816

Cuadro A.21: Eficiencias MC con parafina con sus incertidumbres asociadas.

A.2.4. Espectros del testigo VF2501 analizados mediante el programa Galea

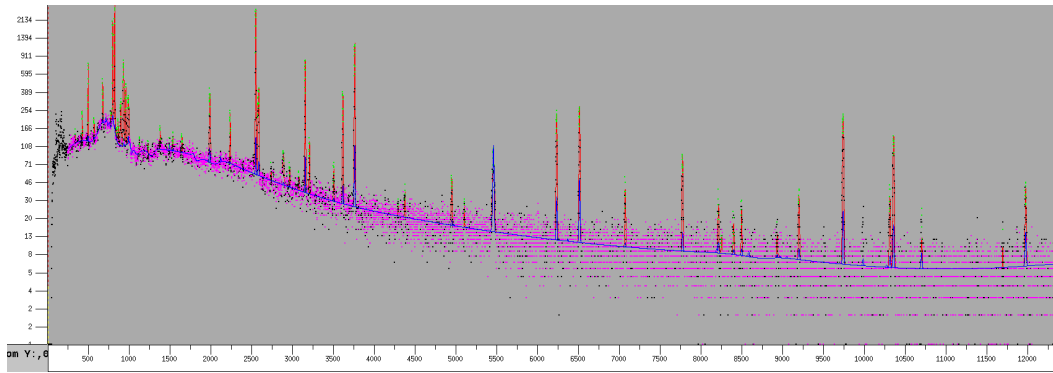


Figura A.16: Espectro VF2501-0-1 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

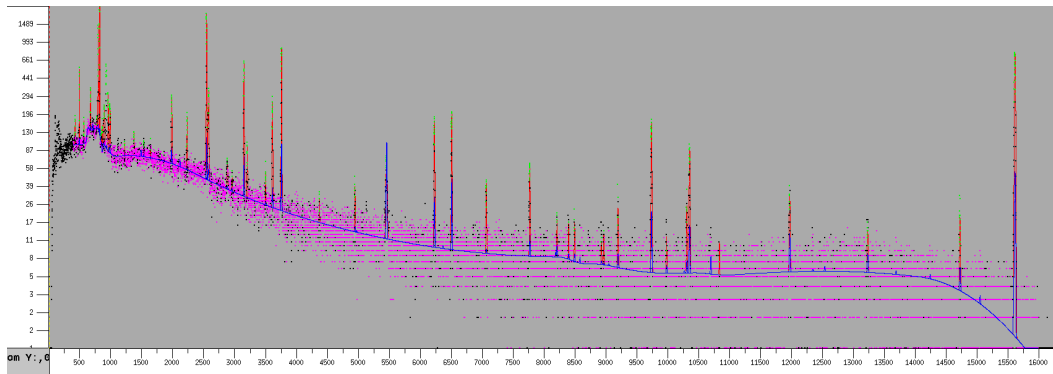


Figura A.17: Espectro VF2501-1-2 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

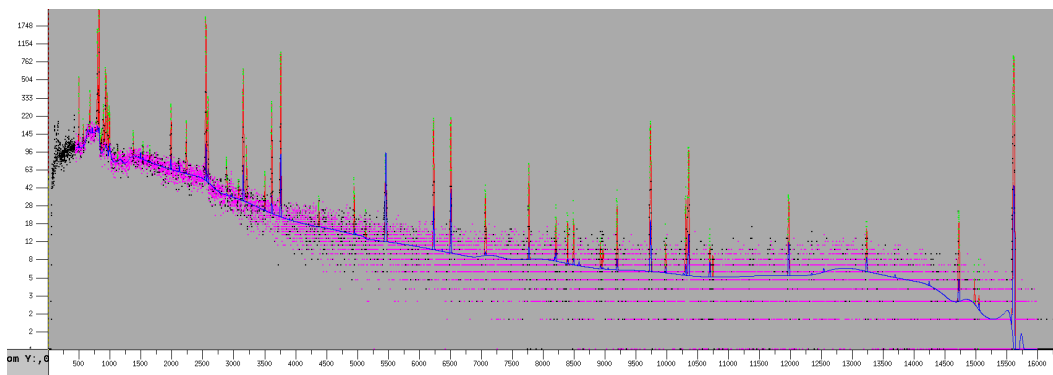


Figura A.18: Espectro VF2501-2-3 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

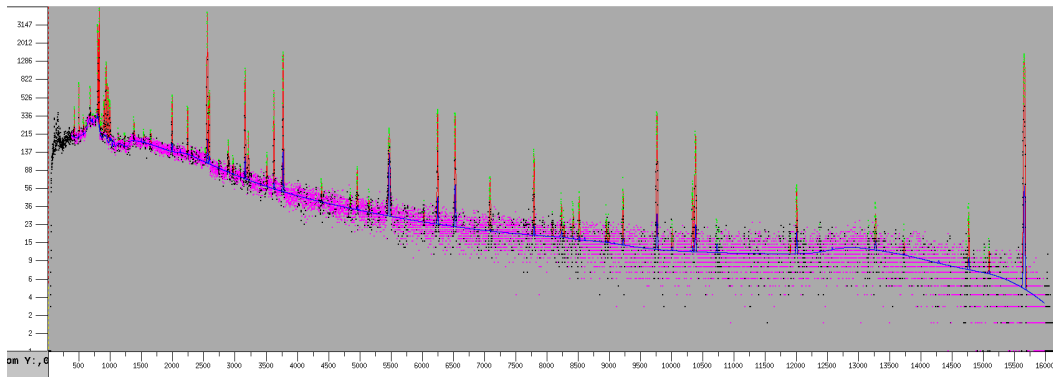


Figura A.19: Espectro VF2501-3-4 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

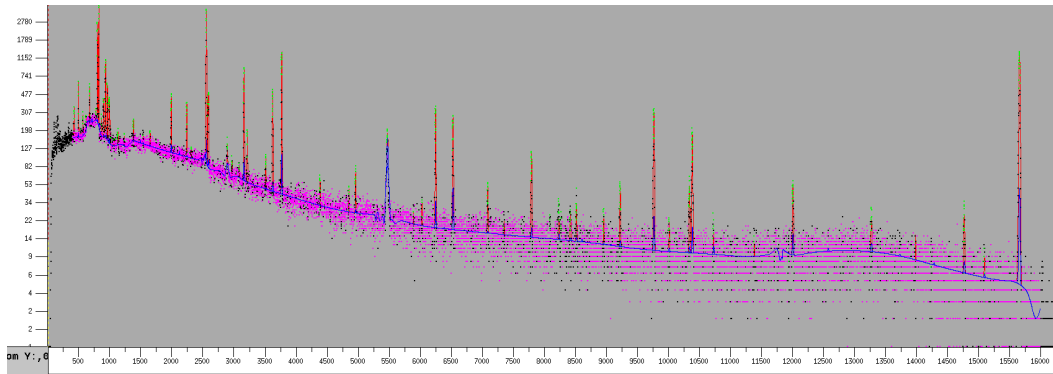


Figura A.20: Espectro VF2501-4-5 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

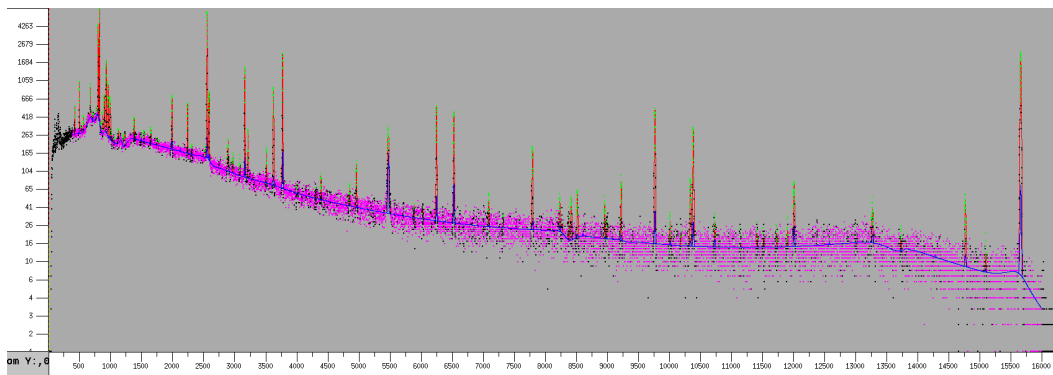


Figura A.21: Espectro VF2501-5-6 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

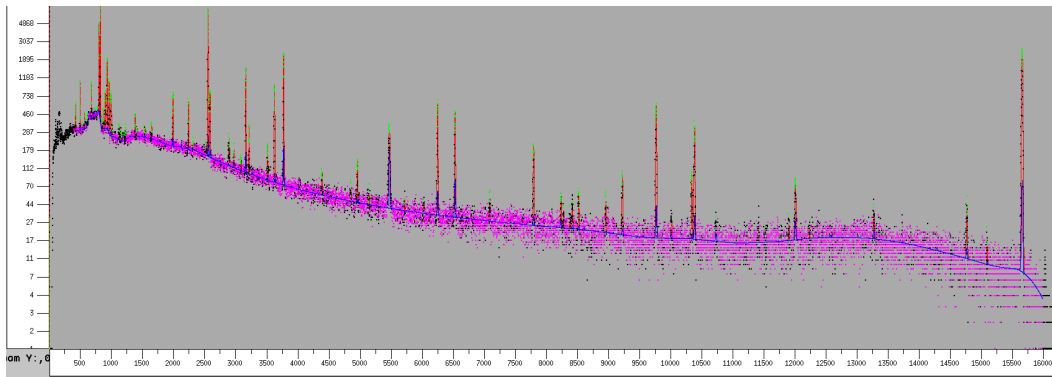


Figura A.22: Espectro VF2501-6-7 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

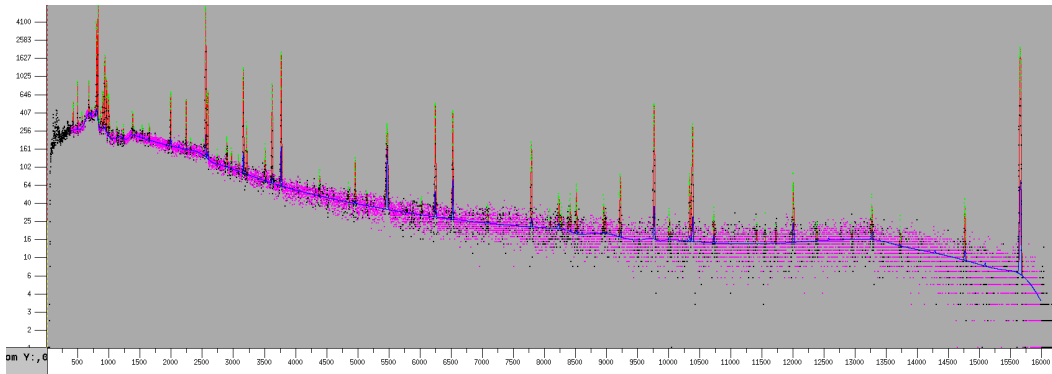


Figura A.23: Espectro VF2501-7-8 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

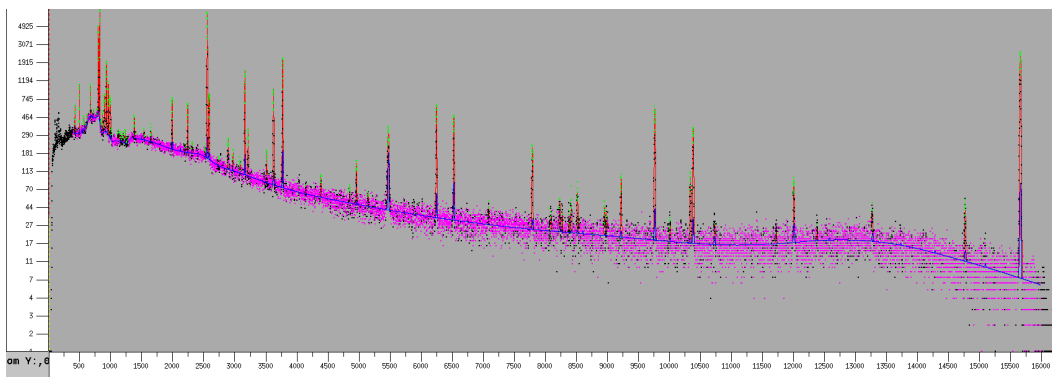


Figura A.24: Espectro VF2501-8-9 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

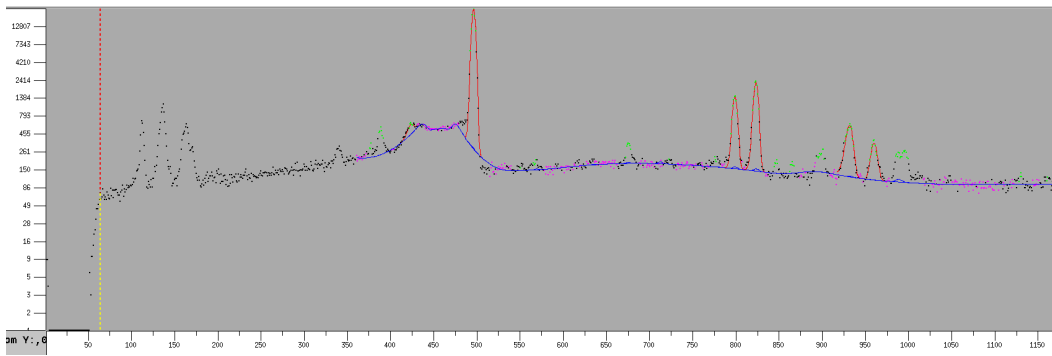


Figura A.25: Espectro VF2501-8-9-Marcado, detalle del pico de 46,54 KeV. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

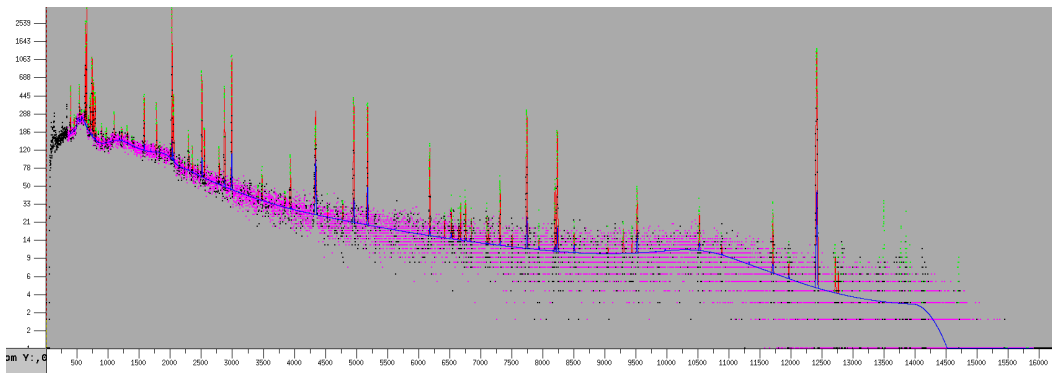


Figura A.26: Espectro VF2501-10-11 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

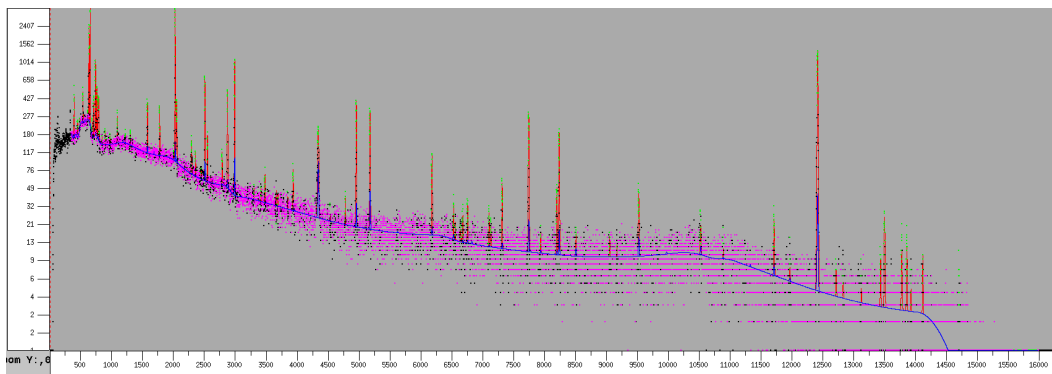


Figura A.27: Espectro VF2501-11-12 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

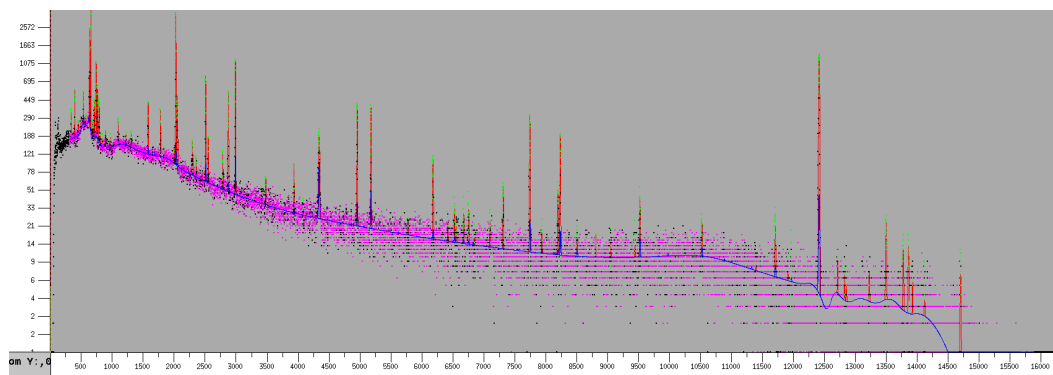


Figura A.28: Espectro VF2501-12-13 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

A.2.5. Resultados de la medida del testigo VF2501 por espectrometría gamma

Identificación	Tiempo (s)	^{210}Pb (Bq)	^{214}Pb (Bq)	^{226}Ra (Bq)	^{137}Cs (Bq)
VF2501-0-1	418962	0,741(18)	0,6228(79)	0,726(33)	0,0145(11)
VF2501-1-2	368448	0,587(17)	0,5177(52)	0,553(27)	0,0182(12)
VF2501-2-3	341496	0,570(18)	0,529(14)	0,599(29)	0,0193(13)
VF2501-3-4	443623	0,632(18)	0,7450(68)	0,814(35)	0,0277(14)
VF2501-4-5	345696	0,676(33)	0,811(29)	0,859(70)	0,0226(15)
VF2501-5-6	525962	0,685(17)	0,8962(97)	0,913(53)	0,0104(10)
VF2501-6-7	594442	0,590(15)	0,8135(50)	0,790(34)	0,00794(92)
VF2501-7-8	529628	0,588(16)	0,740(14)	0,746(35)	0,00386(87)
VF2501-8-9	606053	0,623(16)	0,7930(71)	0,797(41)	0,00543(86)
VF2501-10-11	261020	0,606(23)	0,7840(91)	0,794(45)	—
VF2501-11-12	252566	0,457(23)	0,724(12)	0,724(50)	—
VF2501-12-13	264331	0,556(22)	0,778(15)	0,832(53)	—

Cuadro A.22: Medidas de la actividad de radionúclidos de interés.

Identificación	Tiempo (s)	^{40}K (Bq)	^{238}U (Bq)	^{235}U (Bq)	^{228}Ra (Bq)	^{224}Ra (Bq)
VF2501-0-1	418962	10,61(15)	0,376(32)	0,0176(13)	0,563(13)	0,708(75)
VF2501-1-2	368448	10,75(15)	0,295(14)	0,01367(62)	0,4284(83)	0,5511(64)
VF2501-2-3	341496	13,25(18)	0,287(27)	0,0134(10)	0,539(18)	0,6885(80)
VF2501-3-4	443623	17,90(23)	0,430(23)	0,0194(10)	0,859(13)	1,0501(94)
VF2501-4-5	345696	19,81(27)	0,610(11)	0,0272(38)	0,950(65)	1,197(12)
VF2501-5-6	525962	21,45(26)	0,510(61)	0,0234(27)	1,0368(14)	1,298(12)
VF2501-6-7	594442	21,83(26)	0,552(34)	0,0257(13)	1,066(14)	1,290(12)
VF2501-7-8	529628	21,03(26)	0,557(33)	0,0257(13)	1,003(14)	1,228(11)
VF2501-8-9	606053	21,86(26)	0,567(50)	0,0265(19)	1,061(14)	1,301(12)
VF2501-10-11	261020	21,56(28)	0,504(28)	0,0232(13)	1,064(13)	1,305(13)
VF2501-11-12	252566	21,28(30)	0,404(38)	0,0189(17)	1,040(17)	1,301(12)
VF2501-12-13	264331	21,21(28)	0,517(38)	0,0238(17)	1,032(21)	1,266(12)

Cuadro A.23: Medidas de la actividad de radionúclidos de interés.

Identificación	²¹⁰ Pb (Bq/kg)	²¹⁴ Pb (Bq/kg)	²²⁶ Ra (Bq/kg)	²¹⁰ Pb _{xs} (Bq/kg)	¹³⁷ Cs (Bq/kg)
VF2501-0-1	39,90(97)	33,53(43)	39,1(18)	6,4(11)	0,781(59)
VF2501-1-2	31,60(92)	27,87(28)	29,8(15)	3,7(10)	0,980(65)
VF2501-2-3	30,72(97)	28,51(75)	32,3(16)	2,2(12)	1,040(70)
VF2501-3-4	34,06(97)	40,14(37)	43,8(19)	—	1,493(75)
VF2501-4-5	36,42(178)	43,70(156)	46,3(38)	—	1,218(81)
VF2501-5-6	36,91(92)	48,29(52)	49,2(28)	—	0,560(54)
VF2501-6-7	31,79(81)	43,84(29)	42,6(18)	—	0,428(50)
VF2501-7-8	31,68(86)	39,87(75)	40,2(19)	—	0,208(47)
VF2501-8-9	33,58(86)	42,74(38)	43,0(22)	—	0,293(46)
VF2501-10-11	32,6(12)	42,28(49)	42,8(24)	—	—
VF2501-11-12	24,6(12)	38,98(65)	39,0(27)	—	—
VF2501-12-13	29,9(12)	41,94(10)	44,9(29)	—	—

Cuadro A.24: Actividades específicas de radionúclidos de interés.

Muestra	⁴⁰ K (Bq/kg)	²³⁸ U (Bq/kg)	²³⁵ U (Bq/kg)	²²⁸ Ra (Bq/kg)	²²⁴ Ra (Bq/kg)
VF2501-0-1	571,3(81)	20,25(172)	0,95(07)	30,31(70)	38,12(40)
VF2501-1-2	578,7(81)	15,88(75)	0,736(33)	23,06(45)	29,67(34)
VF2501-2-3	714,2(97)	15,5(15)	0,722(54)	29,05(97)	37,11(42)
VF2501-3-4	965(12)	23,2(12)	1,05(05)	46,29(70)	56,58(51)
VF2501-4-5	1067(15)	32,9(06)	1,47(20)	51,19(350)	64,50(65)
VF2501-5-6	1156(14)	27,4(33)	1,261(145)	55,87(75)	69,94(65)
VF2501-6-7	1176(14)	29,7(18)	1,385(70)	57,44(75)	69,51(65)
VF2501-7-8	1133(14)	30,0(18)	1,385(70)	54,04(75)	66,2(65)
VF2501-8-9	1178(14)	30,6(27)	1,428(102)	57,18(75)	70,12(65)
VF2501-10-11	1162(15)	27,2(15)	1,251(70)	57,38(70)	70,37(70)
VF2501-11-12	1151(16)	21,7(20)	1,017(92)	55,99(92)	70,04(65)
VF2501-12-13	1143(15)	27,8(20)	1,283(92)	55,6(11)	68,25(65)

Cuadro A.25: Actividades específicas de radionúclidos de interés.

A.2.6. Comportamiento lineal espesor másico frente a profundidad

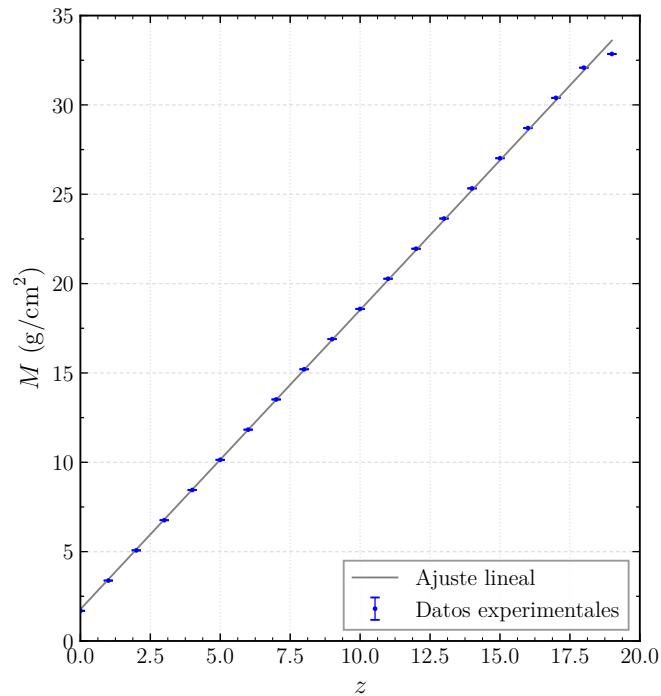


Figura A.29: Representación del espesor másico, o masa media acumulada bajo la sección (M), frente a la profundidad (z).

A.2.7. Resultados modelos de datación por ^{210}Pb

MODELO CA	
Edad estimada	
VF2501-0-1	0(4) años
VF2501-1-2	17(9) años
VF2501-2-3	34(18) años

Cuadro A.26: Resultados integrados de depósito, flujo, edad y tasa de acumulación.

MODELO CRS	
Depósito total de ^{210}Pb	20,8(32) Bq/m ²
Flujo	0,6485(54) Bq/m ² año
Edad estimada experimental	
VF2501-0-1	0(3) años
VF2501-1-2	23(5) años
VF2501-2-3	55(15) años
Tasa de acumulación de masa	
VF2501-0-1	0,05271(29) g/cm ² año
VF2501-1-2	0,05272(29) g/cm ² año
VF2501-2-3	0,05266(29) g/cm ² año

Cuadro A.27: Resultados integrados de depósito, flujo, edad y tasa de acumulación.

MODELO CFCS	
Actividad específica C_0	10,82(3,72) Bq/kg
Tasa de acumulación	0,099(0,042) g /cm ² año
Flujo	1,07(59) Bq/m ² año
Edad estimada experimental	
VF2501-0-1	17(7) años
VF2501-1-2	34(14) años
VF2501-2-3	51(21) años
Edad estimada por extrapolación	
VF2501-3-4	69(29)años
VF2501-4-5	86(36)años
VF2501-5-6	103(43)años
VF2501-6-7	120(76)años
VF2501-7-8	137(50)años
VF2501-8-9	154(65) años

Cuadro A.28: Resultados integrados de depósito, flujo, edad y tasa de acumulación.

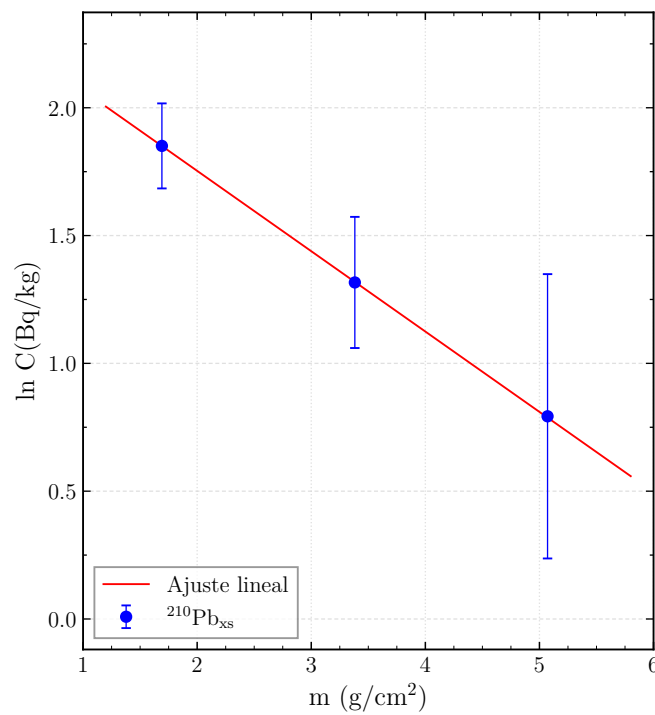


Figura A.30: Representación del logaritmo neperiano de la concentración frente a espesor másico, ajuste lineal ponderado por su incertidumbre.

A.2.8. Resultados análisis del testigo VF2501 y muestras estandar mediante EA

No.	Weight [mg]	Name	Method	N Area	C Area	N [%]	C [%]	C/N ratio	N Factor	C Factor	N Blank	C Blank	Memo	Info	Date	Time
1	1.0000	RunIn	G_80s	1 327	0	2.82	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cnp	09.10.2025 0...	
2	1.0000	RunIn	G_80s	95	0	0.16	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cnp,...	09.10.2025 1...	
3	1.0000	RunIn	G_80s	64	0	0.09	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cnp,...	09.10.2025 1...	
4	1.0000	Blank	G_80s	52	23	0.00	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	52	23			09.10.2025 1...	
5	1.0000	Blank	G_80s	60	0	0.00	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	60	0			09.10.2025 1...	
6	1.0000	Blank	G_80s	0	16	0.00	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	0	16			09.10.2025 1...	
7	2.0200	acetanilide	G_80s	10 260	49 954	10.36	71.09	6.8620	0.9865	1.0007	38	0			09.10.2025 1...	
8	2.0600	acetanilide	G_80s	10 330	50 422	10.36	71.09	6.8620	0.9992	1.0107	38	0			09.10.2025 1...	
9	2.4400	acetanilide	G_80s	10 697	52 147	10.36	71.09	6.8620	1.1428	1.1563	38	0			09.10.2025 1...	
10	1.0000	RunIn	G_80s	80	0	0.12	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cnp,...	09.10.2025 1...	
11	1.0000	RunIn	G_80s	52	0	0.06	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cnp,...	09.10.2025 1...	
12	126.5700	First-1544.1.1	G_80s	6 348	25 310	0.11	0.61	5.6609	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
13	126.4100	1544.1.1	G_80s	5 871	23 009	0.10	0.55	5.5495	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
14	1.0000	RunIn	G_80s	86	18	0.14	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Nu,Cu	09.10.2025 1...	
15	123.7900	First-1545.2.2	G_80s	5 900	22 601	0.10	0.56	5.4213	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
16	122.6500	1545.2.2	G_80s	5 793	22 490	0.10	0.56	5.4938	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
17	1.0000	RunIn	G_80s	30	25	0.00	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Cu	09.10.2025 1...	
18	127.8600	First-1546.1.2	G_80s	5 511	21 337	0.09	0.51	5.4697	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
19	123.2200	1546.1.2	G_80s	5 494	20 495	0.10	0.50	5.2622	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
20	1.0000	RunIn	G_80s	81	15	0.13	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Nu,Cu	09.10.2025 1...	
21	125.8800	First-1547.1.2	G_80s	5 215	18 706	0.09	0.45	5.0427	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
22	126.5700	1547.1.2	G_80s	5 399	18 875	0.09	0.45	4.9166	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
23	1.0000	RunIn	G_80s	53	27	0.07	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Nu,Cu	09.10.2025 1...	
24	122.0400	First-1548.1.2	G_80s	4 717	16 371	0.08	0.40	4.8538	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
25	129.7600	1548.1.2	G_80s	5 140	18 611	0.09	0.43	5.0904	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
26	1.0000	RunIn	G_80s	39	12	0.03	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Nu,Cu	09.10.2025 1...	
27	123.9800	First-1549.1.3	G_80s	4 836	18 726	0.08	0.46	5.4470	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
28	130.8900	1549.1.3	G_80s	4 304	16 698	0.07	0.38	5.4327	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
29	1.0000	RunIn	G_80s	77	197	0.12	0.00	0.0000	1.0428	1.0559	38	0		Nu,Cu	09.10.2025 1...	
30	125.9300	First-1550.2.2	G_80s	4 997	17 841	0.09	0.43	5.0104	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	
31	130.6700	1550.2.2	G_80s	4 865	17 485	0.08	0.40	5.0404	1.0428	1.0559	38	0			09.10.2025 1...	

Figura A.31: Resultado de la preparación de muestras sedimentarias mediante EA. El código de equivalencia de las muestras se detallaba en tabla A.7.

No.	Weight [mg]	Name	Method	N Area	C Area	N [%]	C [%]	C/N ratio	N Factor	C Factor	N Blank	C Blank	Memo	Info	Date	Time
1	1.0000	Runin	G_80s	223	0	0.39	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp,...	08.10.2025 1...	
2	1.0000	Runin	G_80s	53	0	0.04	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp,...	08.10.2025 1...	
3	1.0000	Runin	G_80s	70	28	0.08	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Nu,Cu	08.10.2025 1...	
4	126.3400	First-1533.2.2	G_80s	2 572	12 844	0.04	0.28	6.8935	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
5	128.2400	First-1533.2.2	G_80s	55	0	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp,...	08.10.2025 1...	
6	125.9100	1533.2.2	G_80s	4 560	23 439	0.07	0.53	7.2515	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
7	1.0000	Runin	G_80s	28	0	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp	08.10.2025 1...	
8	122.6400	First-1537.2.2	G_80s	6 614	26 786	0.11	0.62	5.7244	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
9	128.6200	1537.2.2	G_80s	6 340	26 017	0.10	0.57	5.7968	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
10	1.0000	Runin	G_80s	51	13	0.04	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Nu,Cu	08.10.2025 1...	
11	126.7600	First-1539.1.1	G_80s	5 994	23 716	0.10	0.53	5.5751	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
12	127.2800	1539.1.1	G_80s	6 437	25 523	0.10	0.57	5.5970	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
13	1.0000	Runin	G_80s	0	19	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Nnp,...	08.10.2025 1...	
14	126.0500	First-1540.1.1	G_80s	6 135	26 405	0.10	0.60	6.0830	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
15	122.3800	1540.1.1	G_80s	6 721	26 517	0.11	0.62	5.5744	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
16	1.0000	Runin	G_80s	13	25	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cu	08.10.2025 1...	
17	126.5400	First-1541.2.1	G_80s	5 997	24 670	0.10	0.55	5.8028	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
18	127.9800	1541.2.1	G_80s	6 295	24 661	0.10	0.55	5.5249	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
19	1.0000	Runin	G_80s	51	27	0.04	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Nu,Cu	08.10.2025 1...	
20	126.4300	First-1542.1.1	G_80s	5 810	25 042	0.09	0.56	6.0844	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
21	122.9500	1542.1.1	G_80s	6 811	28 228	0.11	0.65	5.8652	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
22	1.0000	Runin	G_80s	33	14	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cu	08.10.2025 1...	
23	129.5900	First-1543.1.1	G_80s	6 808	27 562	0.11	0.61	5.7257	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
24	127.3900	1543.1.1	G_80s	6 552	26 702	0.10	0.60	5.7599	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	

Figura A.32: Resultado de la preparación de muestras sedimentarias mediante EA. El código de equivalencia de las muestras se detallaba en tabla A.7.

No.	Weight [mg]	Name	Method	N Area	C Area	N [%]	C [%]	C/N ratio	N Factor	C Factor	N Blank	C Blank	Memo	Info	Date	Time
1	1.0000	Runin	G_80s	697	0	1.27	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
2	1.0000	Runin	G_80s	63	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
3	1.0000	Runin	G_80s	12 635	0	25.78	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
4	124.0700	First-1532.1.3	G_80s	3 010	16 387	0.05	0.38	7.7639	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
5	124.5200	1532.1.3	G_80s	2 983	16 810	0.05	0.39	8.0484	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
6	1.0000	Runin	G_80s	45	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
7	128.4300	First-1533.1.1	G_80s	2 345	12 107	0.04	0.26	7.2960	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
8	127.7400	1533.1.1	G_80s	2 537	13 118	0.04	0.29	7.3259	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
9	1.0000	Runin	G_80s	102	0	0.05	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp,...	07.10.2025 1...	
10	1.0000	Runin	G_80s	91	17	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 1...	
11	126.9600	First-1534.1.1	G_80s	3 939	18 138	0.06	0.41	6.5535	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
12	125.1600	1534.1.1	G_80s	4 043	18 204	0.07	0.42	6.4053	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
13	1.0000	Runin	G_80s	100	13	0.04	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Nu,Cu	07.10.2025 1...	
14	123.1500	First-1535.1.1	G_80s	94	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
15	123.6200	1535.1.1	G_80s	10 184	42 251	0.17	0.98	5.8193	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
16	1.0000	Runin	G_80s	46	21	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 1...	
17	123.9300	First-1536.1.1	G_80s	5 650	23 166	0.09	0.54	5.8525	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
18	127.6000	1536.1.1	G_80s	6 223	24 980	0.10	0.57	5.7351	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
19	1.0000	Runin	G_80s	71	15	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 1...	
20	127.2700	First-1537.1.1	G_80s	6 703	26 981	0.11	0.62	5.7591	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
21	128.8000	1537.1.1	G_80s	6 022	24 495	0.09	0.55	5.8108	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 2...	
22	1.0000	Runin	G_80s	73	25	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 2...	
23	126.3400	First-1538.1.1	G_80s	6 773	28 038	0.11	0.64	5.9284	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 2...	
24	128.9400	1538.1.1	G_80s	6 371	25 856	0.10	0.58	5.8027	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 2...	

Figura A.33: Resultado de la preparación de muestras sedimentarias mediante EA. El código de equivalencia de las muestras se detallaba en tabla A.7.

No.	Weight [mg]	Name	Method	N Area	C Area	N [%]	C [%]	C/N ratio	N Factor	C Factor	N Blank	C Blank	Memo	Info	Date	Time
1	1.0000	RunIn	G_80s	1 537	15	3.05	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cu	08.10.2025 1...	
2	1.0000	RunIn	G_80s	82	14	0.10	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Nu,Cu	08.10.2025 1...	
3	1.0000	RunIn	G_80s	30	0	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp	08.10.2025 1...	
4	1.0000	Blank	G_80s	12	12	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	12	12			08.10.2025 1...	
5	1.0000	Blank	G_80s	51	21	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	51	21			08.10.2025 1...	
6	1.0000	Blank	G_80s	74	0	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	74	0			08.10.2025 1...	
7	2.4500	acetanilide	G_80s	12 687	60 790	10.44	70.32	6.7327	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
8	2.1900	acetanilide	G_80s	10 815	52 808	9.96	68.06	6.8359	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
9	3.0700	acetanilide	G_80s	15 735	76 587	10.36	71.09	6.8620	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
10	1.0000	RunIn	G_80s	27	0	0.00	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Cnp	08.10.2025 1...	
11	1.0000	RunIn	G_80s	90 712	0	181.81	0.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0		Npe,...	08.10.2025 1...	
12	5.2500	1002.6.47	G_80s	112	35 021	0.03	19.10	610.9701	0.9757	0.9808	46	0		Nu	08.10.2025 1...	
13	5.0300	1002.6.48	G_80s	18	33 448	0.00	19.02	0.0000	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
14	5.3000	1002.6.49	G_80s	52	35 121	0.01	18.97	2355.93...	0.9757	0.9808	46	0		Nu	08.10.2025 1...	
15	5.3400	1002.6.50	G_80s	53	35 447	0.01	19.01	2267.14...	0.9757	0.9808	46	0		Nu	08.10.2025 1...	
16	5.4300	1002.6.51	G_80s	38	36 020	0.00	19.00	0.0000	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
17	5.1800	1002.6.52	G_80s	14	24 551	0.00	13.45	0.0000	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	
18	5.5600	1002.6.53	G_80s	28	36 048	0.00	18.57	0.0000	0.9757	0.9808	46	0			08.10.2025 1...	

Figura A.34: Resultado de la preparación de muestras de ácido Oxálico mediante EA.

No.	Weight [mg]	Name	Method	N Area	C Area	N [%]	C [%]	C/N ratio	N Factor	C Factor	N Blank	C Blank	Memo	Info	Date	Time
1	1.0000	RunIn	G_80s	1 573	32	3.07	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 1...	
2	1.0000	RunIn	G_80s	12 644	9	25.80	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cu	07.10.2025 1...	
3	1.0000	RunIn	G_80s	98	21	0.04	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Nu,Cu	07.10.2025 1...	
4	1.0000	Blank	G_80s	126	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	126	0			07.10.2025 1...	
5	1.0000	Blank	G_80s	71	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	71	0			07.10.2025 1...	
6	1.0000	Blank	G_80s	88	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	88	0			07.10.2025 1...	
7	2.2300	acetanilide	G_80s	11 365	55 291	10.36	71.09	6.8620	0.9879	0.9949	95	0			07.10.2025 1...	
8	2.1000	acetanilide	G_80s	10 575	51 261	10.36	71.09	6.8620	1.0004	1.0129	95	0			07.10.2025 1...	
9	3.0300	acetanilide	G_80s	15 435	74 595	10.36	71.09	6.8620	0.9846	0.9944	95	0			07.10.2025 1...	
10	1.0000	RunIn	G_80s	105	0	0.05	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp,...	07.10.2025 1...	
11	1.0000	RunIn	G_80s	71	0	0.00	0.00	0.0000	0.9910	1.0008	95	0		Cnp	07.10.2025 1...	
12	1.6300	1308.1.174	G_80s	109	36 554	0.04	65.58	1791.01...	0.9910	1.0008	95	0		Nu	07.10.2025 1...	
13	1.7700	1308.1.175	G_80s	113	38 979	0.04	64.48	1687.53...	0.9910	1.0008	95	0		Nu	07.10.2025 1...	
14	1.7300	1308.1.176	G_80s	64	40 008	0.00	67.74	0.0000	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
15	1.5900	1308.1.177	G_80s	74	35 987	0.00	66.16	0.0000	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
16	1.8500	1308.1.178	G_80s	88	41 113	0.00	65.13	0.0000	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	
17	1.5900	1308.1.179	G_80s	97	14 632	0.02	26.08	1159.19...	0.9910	1.0008	95	0		Nu	07.10.2025 1...	
18	1.6600	1308.1.180	G_80s	70	36 595	0.00	64.46	0.0000	0.9910	1.0008	95	0			07.10.2025 1...	

Figura A.35: Resultado de la preparación de ácido ftálico mediante EA

A.2.9. Posición de muestras en el carrusel del AMS MICADAS

Posición	Identificación	Tipo	CO ₂ (μg)
2	1002.6.53	oxa2	993
3	1002.6.47	oxa2	982
4	1002.6.51	oxa2	993
5	1308.1.180	bl	990
6	1308.1.178	bl	985
7	1308.1.177	bl	990
8	1532.1.3	sample	967
9	1533.2.2	sample	986
10	1534.1.1	sample	986
11	1535.1.1	sample	988
12	1536.1.1	sample	998
13	1002.6.50	oxa2	985
14	1308.1.176	bl	993
15	1537.2.2	sample	998
16	1538.1.1	sample	997
17	1539.1.1	sample	988
18	1540.1.1	sample	986
19	1541.2.1	sample	989
20	1002.6.49	oxa2	997
21	1308.1.175	bl	990
22	1542.1.1	sample	992
23	1543.1.1	sample	988
24	1544.1.1	sample	992
25	1545.2.2	sample	983
26	1546.1.2	sample	998
27	1002.6.48	oxa2	972
28	1308.1.174	bl	985
29	1547.1.2	sample	990
30	1548.1.2	sample	996
31	1549.1.3	sample	996
32	1550.2.2	sample	990
33	1551.1.1	sample	999
34	1002.6.52	oxa2	708
35	1308.1.179	bl	414

Cuadro A.29: Ordenación de las muestras en el carrusel del sistema MICADAS, se combinan muestras de ácido Oxálico con ftálicos (bl) y las muestras a medir.

A.2.10. Resultados de la medida del testigo VF2501 mediante AMS y OxCal

Identificación	Edad ^{14}C	$F^{14}\text{C}$	OxCal $t_{min}(2\sigma)$	OxCal $t_{max}(2\sigma)$	Edad_med
VF2501-0-1	83(24)	0,9898(29)	1694	1955	1825 (131)
VF2501-1-2	-519(23)	1,0668(31)	1957	2006	1982 (25)
VF2501-2-3	-252(23)	1,0319(30)	1956	2014	1985 (29)
VF2501-3-4	415(23)	0,9496(28)	1446	1474	1460 (14)
VF2501-4-5	580(28)	0,9304(33)	1323	1405	1364 (41)
VF2501-5-6	804(24)	0,9048(27)	1225	1261	1243 (18)
VF2501-6-7	1.098(23)	0,8723(26)	897	992	945 (48)
VF2501-7-8	907(23)	0,8932(26)	1049	1203	1126 (77)
VF2501-8-9	1.211(24)	0,8600(26)	774	876	825 (51)
VF2501-9-10	1.102(24)	0,8718(26)	897	991	944 (47)
VF2501-10-11	1.184(24)	0,8629(26)	775	885	830 (55)
VF2501-11-12	1.028(25)	0,8799(27)	994	1026	1010 (16)
VF2501-12-13	1.078(23)	0,8744(26)	899	1017	958 (59)
VF2501-13-14	1.147(24)	0,8670(25)	776	974	875 (99)
VF2501-14-15	1.439(24)	0,8360(25)	605	643	624 (19)
VF2501-15-16	1.531(24)	0,8265(24)	538	587	563 (25)
VF2501-16-17	1.378(24)	0,8424(25)	646	663	655 (9)
VF2501-17-18	1.271(24)	0,8536(25)	683	774	729 (46)
VF2501-18-19	1.266(24)	0,8542(25)	684	774	729 (45)
VF2501-19+	1.746(24)	0,8047(25)	250	349	300 (50)

Cuadro A.30: Tabla con columna adicional de valores con error, y Edad_med con su desviación (Sigma) entre paréntesis.

OxCal v4.4.4 Bronk Ramsey (2021); r0.2 Post-bomb atmospheric NH2 curve (Hua et al 2021, Reimer et al 2020)

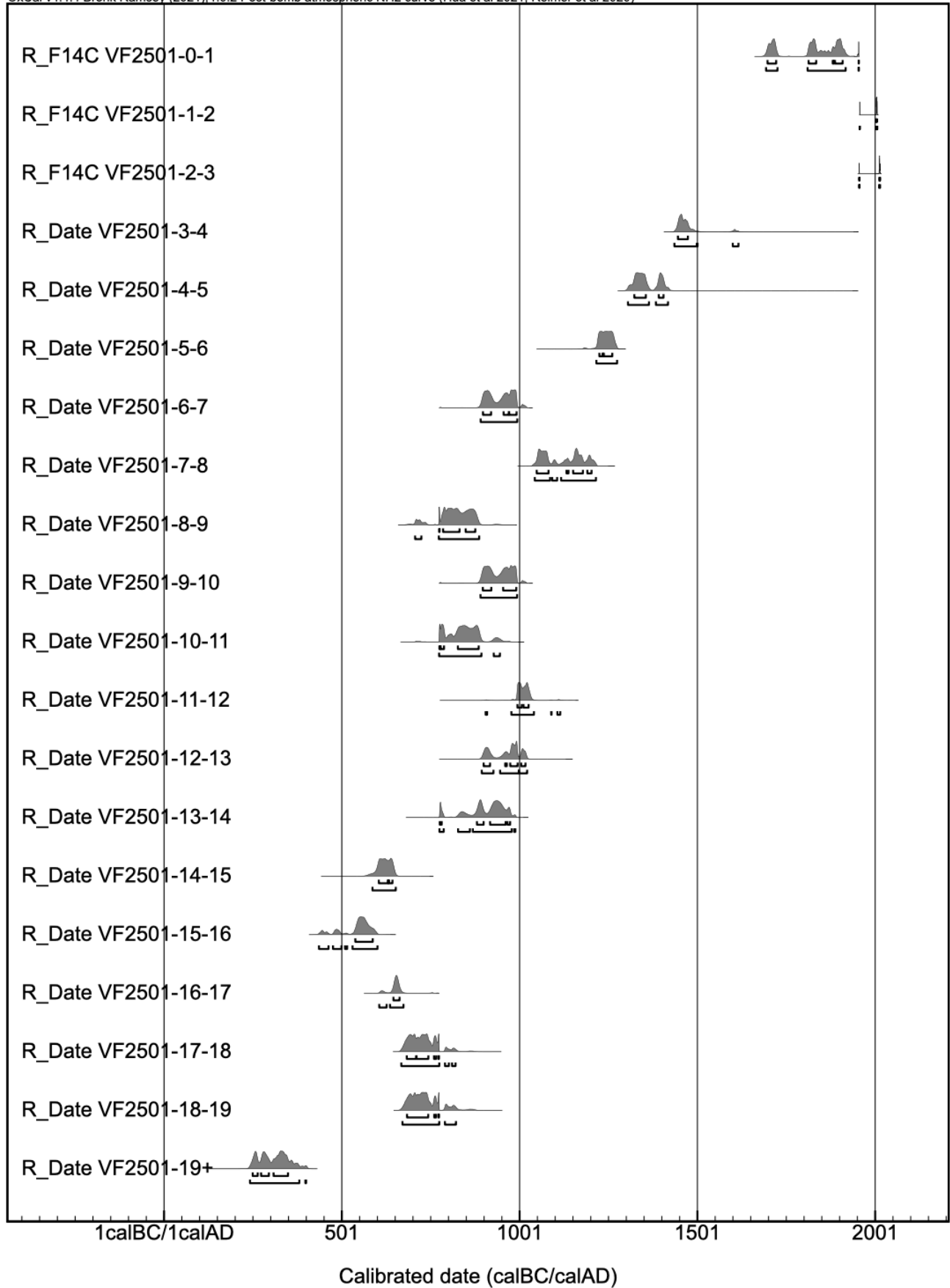


Figura A.36: Resultados de la calibración de edades mediante OxCal.

A.2.11. Eficiencia MC con parafina según energía muestra de aguas sistema BEGe

Eficiencia AS-ZA001_25		
E(Kev)	Eficiencia	Incertidumbre
32.062	0.0567673	0.00126644
40.090	0.0865430	0.00212876
46.539	0.1037950	0.00189803
59.541	0.1247060	0.00080350
88.035	0.1375440	0.00189896
122.062	0.1334270	0.00102802
136.475	0.1285910	0.00204575
165.858	0.1164560	0.00104121
218.120	0.0955347	0.00145159
391.699	0.0541373	0.00047385
440.450	0.0485153	0.00066951
514.005	0.0419803	0.00035943
661.658	0.0335323	0.00026662
834.849	0.0276238	0.00006299
898.043	0.0260791	0.00014002
1115.546	0.0216649	0.00006994
1173.227	0.0208086	0.00008906
1332.499	0.0187090	0.00007989
1836.070	0.0140414	0.00006512

Cuadro A.31: Eficiencias medidas con sus incertidumbres asociadas.

A.2.12. Espectro de muestra de aguas analizados mediante el programa Galea

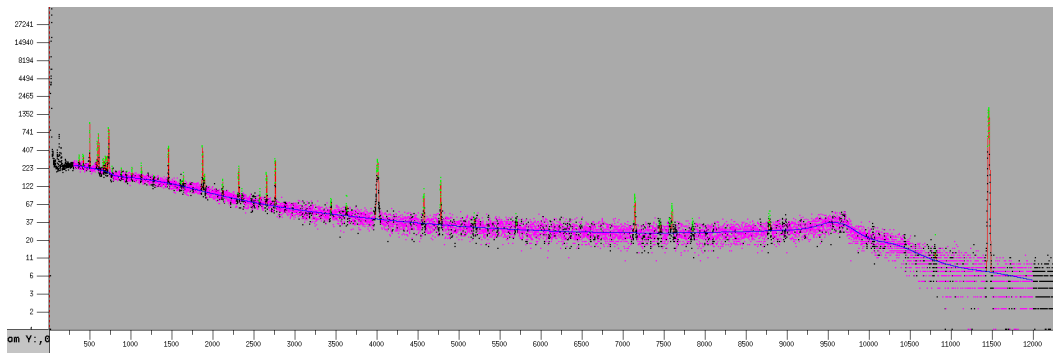


Figura A.37: Espectro VF2501-7-8 completo en Galea tras la identificación y ajuste de picos. En azul el fondo continuo y los picos de fondo. En rosa los puntos asignados al fondo, en verde los puntos identificados como picos, en rojo el ajuste de cada pico, en negro puntos que no participan en el ajuste. Imagen propia.

A.2.13. Correcciones por suma en coincidencia (CSC)

Radionucleido	Emisión	corrección por CSC
²²⁸ Ac	911,20 KeV	1,0675(78)
²²⁸ Ac	968,96 KeV	1,0745(88)
²²⁸ Ac	338,32 KeV	1,0852(72)
²⁰⁸ Tl	583,19 KeV	1,2303(68)
²¹² Bi	727,33 KeV	1,0496(95)
²³⁵ U	143,77 KeV	1,0182(59)

Cuadro A.32: Corrección por CSC para C21 en BEGe.

A.2.14. Resultados del análisis de aguas por espectrometría gamma

Muestra	²¹⁰ Pb (Bq)	²¹⁴ Pb (Bq)	²²⁶ Ra (Bq)	¹³⁷ Cs (Bq)
AS-ZA001_25	0,179(26)	0,1867(46)	0,460(66)	0,0062(21)

Muestra	²¹⁰ Pb (mBq/L)	²¹⁴ Pb (mBq/L)	²²⁶ Ra (mBq/L)	¹³⁷ Cs (mBq/L)
AS-ZA001_25	7,2(1,0)	7,47(18)	18,4(2,64)	0,2480(84)

Cuadro A.33: Actividad y concentración de actividad medida en mBq/L de radionúclidos de interés.

Muestra	⁴⁰ K (Bq)	²³⁸ U (Bq)	²³⁵ U (Bq)	²³⁴ U (Bq)	²²⁸ Ra (Bq)	²²⁴ Ra (Bq)
AS-ZA001_25	34,7(43)	1,808(55)	0,0557(27)	5,3(1,6)	0,296(12)	0,1542(43)

Muestra	⁴⁰ K (mBq/L)	²³⁸ U (mBq/L)	²³⁵ U (mBq/L)	²³⁴ U (mBq/L)	²²⁸ Ra (mBq/L)	²²⁴ Ra (mBq/L)
AS-ZA001_25	1388,0(17,2)	72,3(2,2)	2,23(11)	212,0(64,0)	11,84(48)	6,17(17)

Cuadro A.34: Actividad y concentración de actividad medida en mBq/L de radionúclidos de interés.

Muestra	⁴⁰ K (Bq)	²³⁸ U (Bq)	²³⁵ U (Bq)	²³⁴ U (Bq)	²²⁸ Ra (Bq)	²²⁴ Ra (Bq)
AS-ZA001_25	34,7(43)	1,808(55)	0,0557(27)	5,3(1,6)	0,296(12)	0,1542(43)

Muestra	⁴⁰ K (mBq/L)	²³⁸ U (mBq/L)	²³⁵ U (mBq/L)	²³⁴ U (mBq/L)	²²⁸ Ra (mBq/L)	²²⁴ Ra (mBq/L)
AS-ZA001_25	1388,0(17,2)	72,3(2,2)	2,23(11)	212,0(64,0)	11,84(48)	6,17(17)

Cuadro A.35: Actividad y concentración de actividad medida en mBq/L de radionúclidos de interés.

A.2.15. Coeficientes de dosis

	Parámetro	$C_i(der)$	Unidad
Natural	U 238	3,0	Bq/L
	U 234	2,8	Bq/L
	Ra 226	0,5	Bq/L
	Ra 228	0,2	Bq/L
	Pb 210	0,2	Bq/L
	Po 210	0,1	Bq/L
Artificial	C 14	240	Bq/L
	Sr 90	4,9	Bq/L
	Pu 239	0,6	Bq/L
	Pu 240	0,6	Bq/L
	Am 241	0,7	Bq/L
	Co 60	40	Bq/L
	Cs 134	7,2	Bq/L
	Cs 137	11	Bq/L
	I 131	6,2	Bq/L

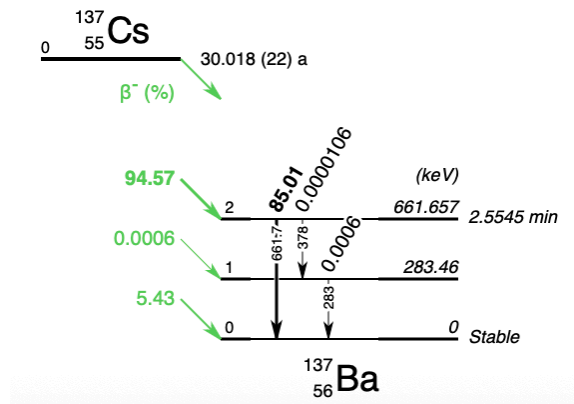
Cuadro A.36: Coeficientes de dosis recogidos en la tabla A del anexo III del Real Decreto 783/2001, de 6 de julio [88].

Anexo B

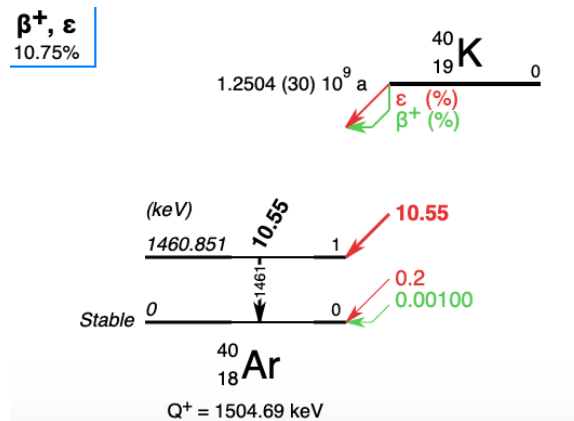
Esquemas de desintegración de interés

B.0.1. No natural

☐ ^{137}Cs

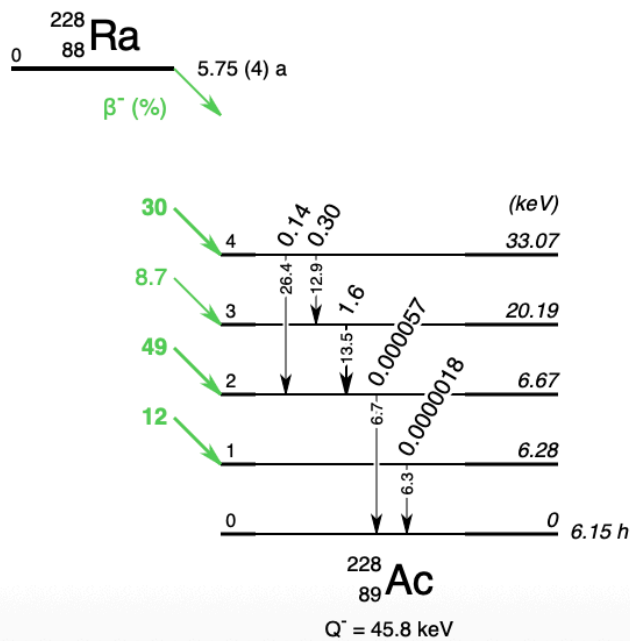


☐ ^{40}K

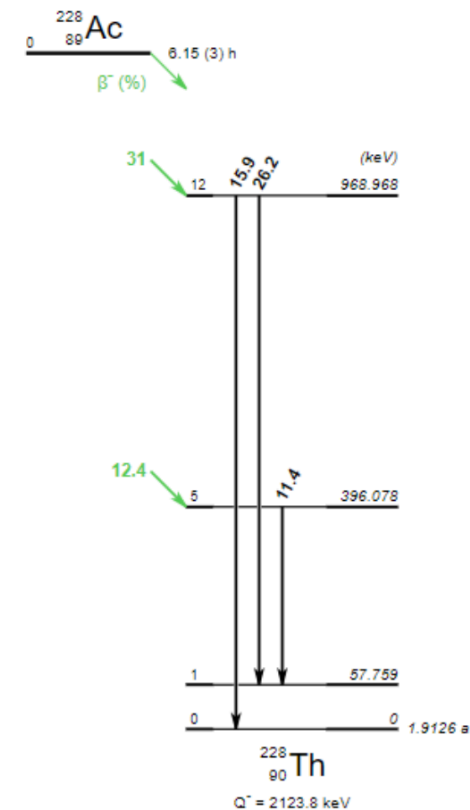


B.0.2. Serie 4n (^{232}Th)

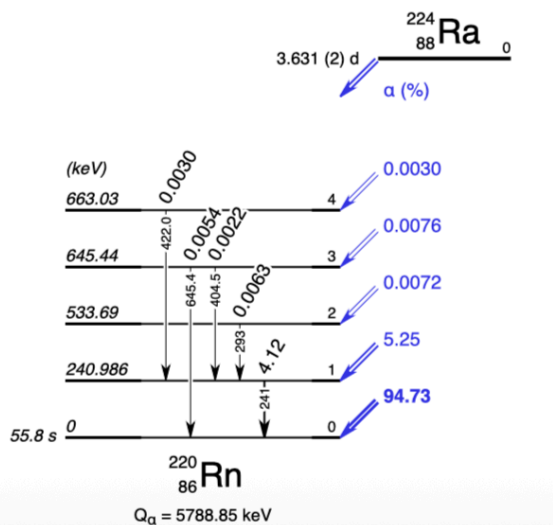
^{228}Ra



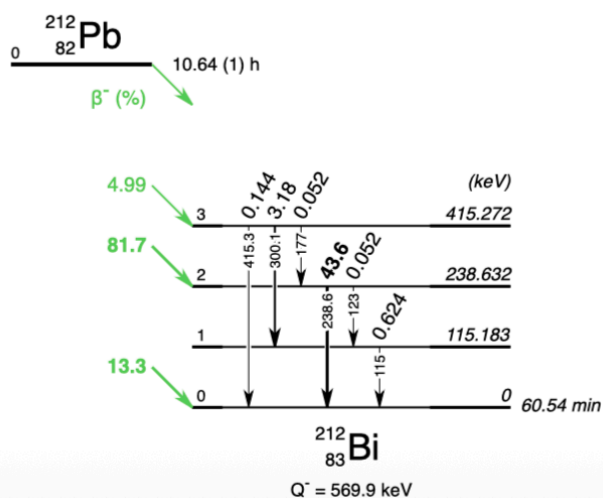
^{228}Ac



^{224}Ra

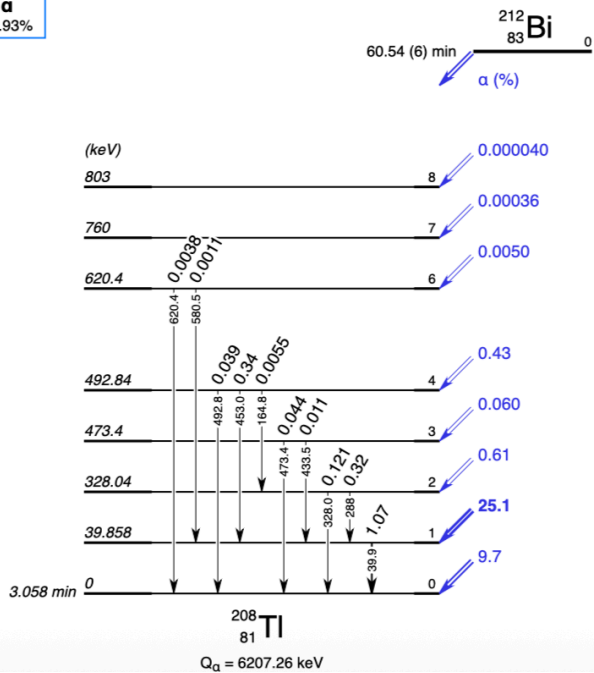


^{212}Pb

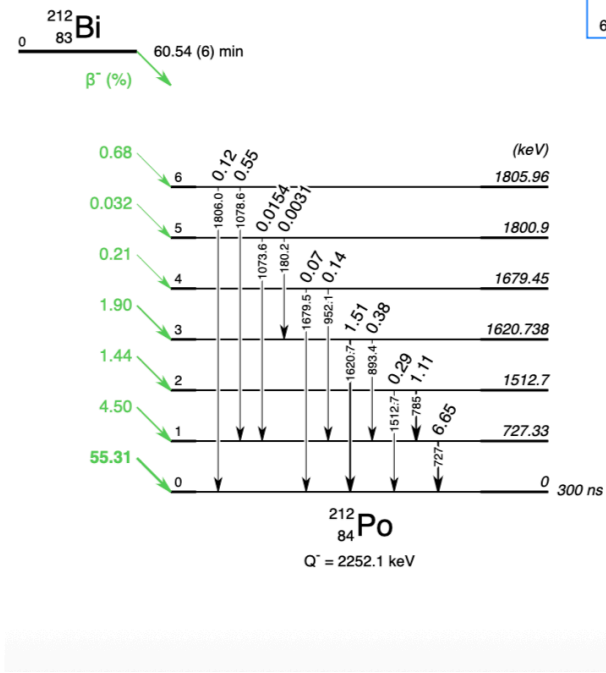


^{212}Bi

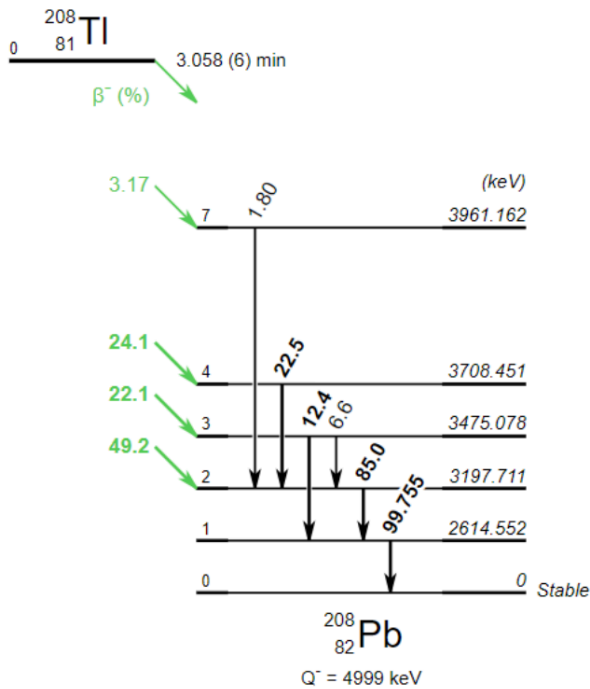
α
15.93%



β^-
64.07%

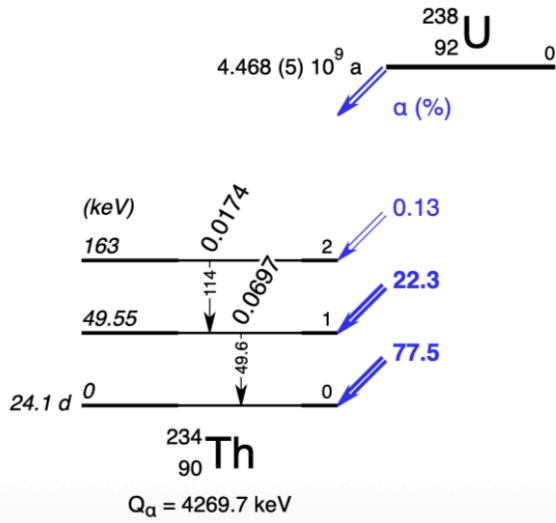


^{208}Tl

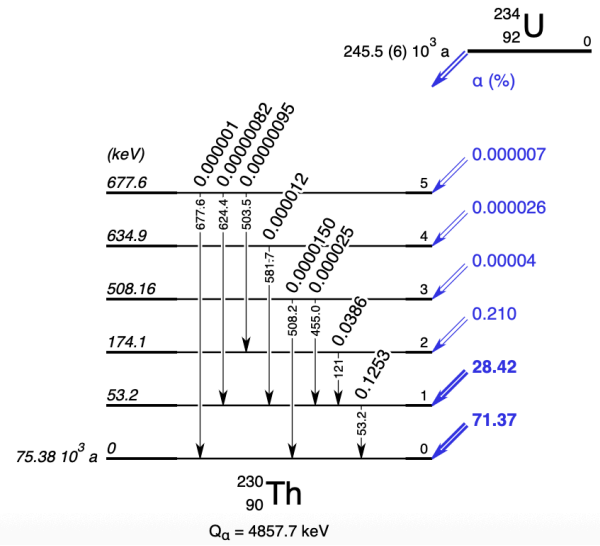


B.0.3. Serie 4n+2 (^{238}U)

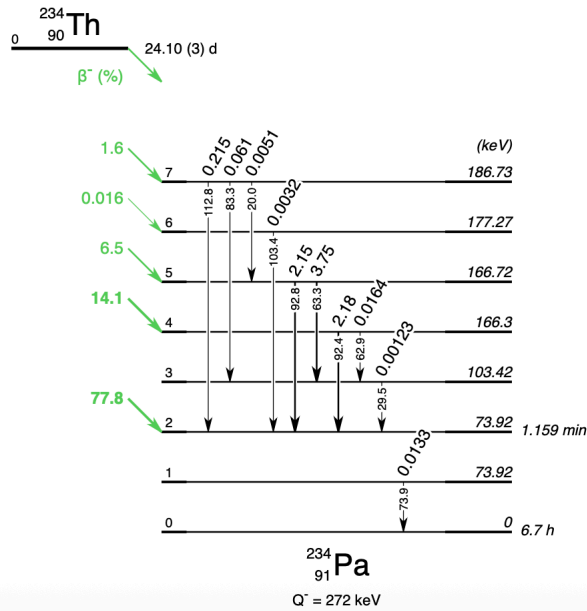
^{238}U



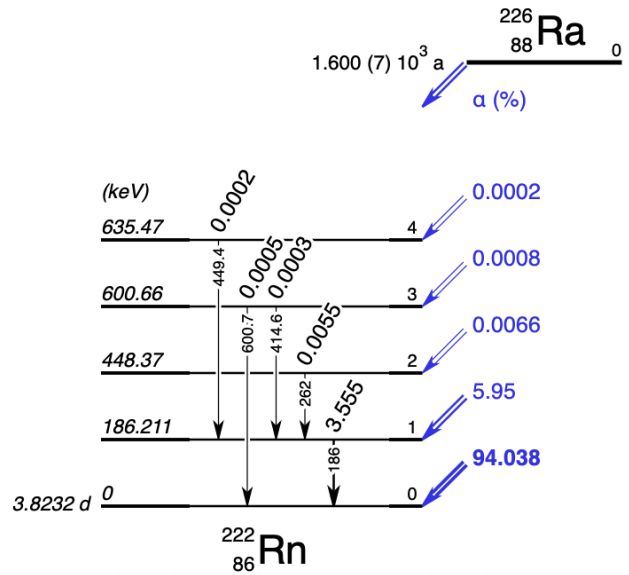
^{234}U



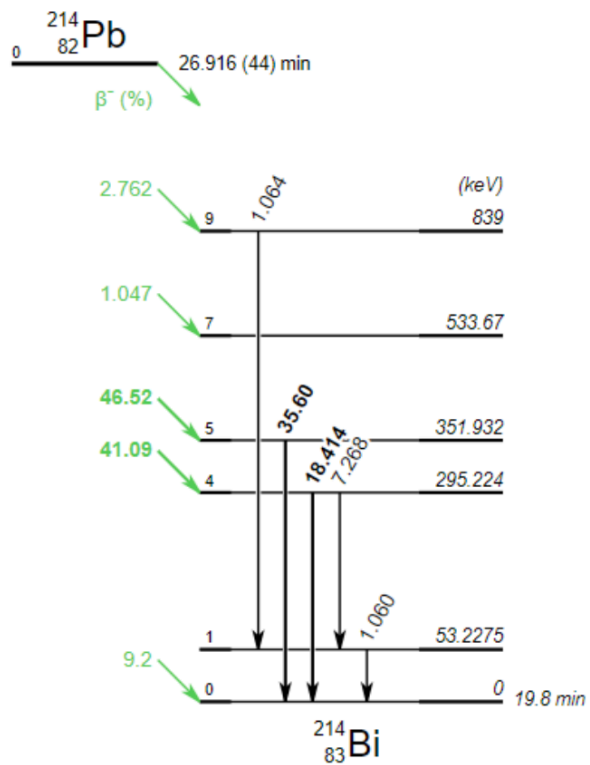
^{234}Th



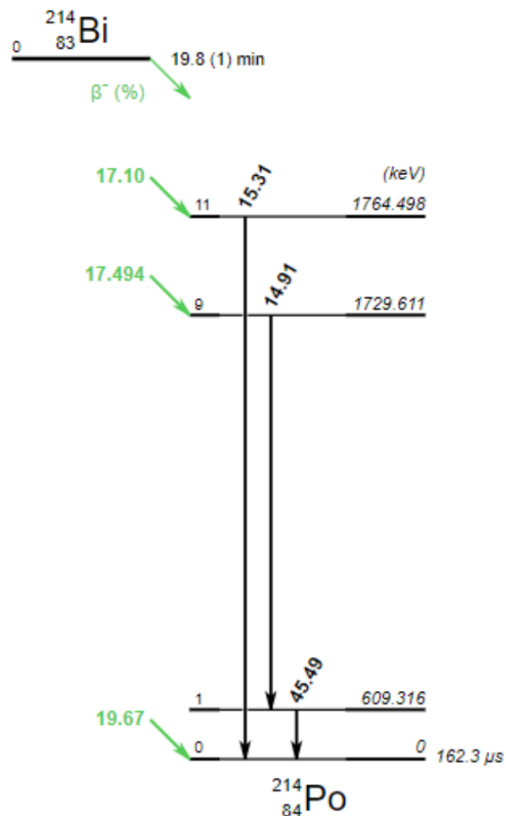
^{226}Ra



☐ ^{214}Pb

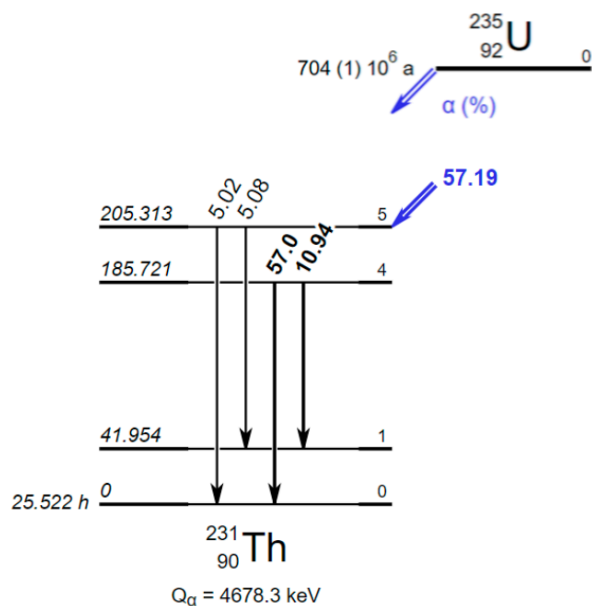


☐ ^{214}Bi



B.0.4. Serie 4n+3 (^{235}U)

☐ ^{235}U



Anexo C

Cálculo de la dosis indicativa del agua de la Laguna Salina Grande

Con los datos para la actividad específica (Bq/mL) obtenidos mediante el análisis por espectrometría gamma, es posible realizar el cálculo de la dosis indicativa (DI), que se define en [88] como la dosis efectiva comprometida en un año por la ingesta de agua de consumo. Se calcula sumando las contribuciones de cada radionucleido i detectado, considerando un consumo anual de 730 L de agua (2 L diarios). Las expresiones para el cálculo:

$$DI = 0,1mSv \cdot \sum_i \frac{C_i(med)}{C_i(der)}, \quad \sigma_{DI} = 0,1mSv \cdot \sqrt{\sum_i \frac{\sigma_{C_i}^2(med)}{C_i(der)}}, \quad (C.1)$$

donde $C_i(med)$ es la concentración de actividad medida en Bq/L, y $C_i(der)$ es la concentración de actividad derivada, también medida en Bq/L; pueden consultarse en el anexo A, tabla A.36. Si la DI calculada es inferior al límite de $0,1mSv$ se considera apta para el consumo.

Los radionucleidos que se consideran en la DI son los naturales de las series del U y del Ra (^{238}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb y, cuando se determina por espectrometría alfa, ^{210}Po) y, si aparecen, antropogénicos como ^{137}Cs , ^{90}Sr o ^{60}Co . Se excluyen de la DI 3H , ^{40}K , ^{222}Rn y sus descendientes de vida corta (^{214}Pb , ^{214}Bi) porque tienen un tratamiento paramétrico propio y/o no reflejan una exposición estable por ingestión dado que el ^{222}Rn es volátil y muy variable a lo largo del sistema de suministro, sus hijos efímeros dependen directamente de él, 3H se usa como indicador específico de posibles aportes artificiales, y ^{40}K se omite dado que el organismo mantiene una concentración de K prácticamente constante que no es sensible a la ingesta de agua. La DI integra los radionucleidos cuya presencia en el agua proporciona una estimación coherente de la exposición por ingestión, mientras que los anteriores se gestionan mediante parámetros independientes.

Dado que el análisis se realiza mediante espectrometría gamma, no es posible determinar con precisión la actividad del ^{210}Po , hijo segundo del ^{210}Pb . Una hipótesis conservadora sería asumir que la actividad del ^{210}Po no supera la de su progenitor, al no existir aportes externos de este radionúclido. Esto nos permite establecer una cota superior: $A_{210Pb} \geq A_{210Po}$. Si para el cálculo se toma como referencia la igualdad, se obtiene una estimación de la ID que será ligeramente superior a su valor real. Aplicando estos criterios el resultado obtenido para para la DI:

$$DI = 0,0303(39)mSv < 0,1mSv$$

Desde el punto de vista radiológico el agua es apta para consumo humano.