
Concentración en Actividad de ^{137}Cs , ^{40}K , ^{232}Th , ^{226}Ra en Depósitos de Desecho del Beneficio de Minerales en el Estado de Zacatecas

**Benjamín Leal, Fernando Mireles, Leopoldo Quirino,
Ignacio Dávila, Francisco Ramírez**

Unidad Académica de Estudios Nucleares de la Universidad Autónoma de Zacatecas
Ap. Postal 579C, Zacatecas, Zac, CP 98068, México
bleal@einstein.reduaz.mx

Leonardo Soto

Facultad de física de la Universidad de La Habana, Cuba
lsoto@infomed.sld.cu

Resumen

La necesidad de reportar los cambios en los radionúclidos contenidos en la corteza terrestre, o los depositados por las pruebas atómicas alrededor del mundo, se hace clara al observar la utilización de material de desecho de las minas. Con el fin de cuantificar la concentración en actividad se reúnen una serie de muestras de desechos en minas de los municipios de Zacatecas, Fresnillo, Guadalupe y Veta Grande del estado de Zacatecas, México. El análisis se realizó por espectrometría gamma con un detector de HPGe con una resolución de 1.9 keV correspondiente a una energía de 1.33 MeV calibrado en eficiencia y energía por medio de un estándar multinúclido certificado en actividad con geometría idéntica a la de las muestras. Los tiempos de conteo son de 80000 segundos, con la finalidad de reducir las incertidumbres relativas y definir bien las regiones de interés. La actividad de ^{226}Ra y ^{232}Th se obtiene a través del ^{214}Bi y ^{228}Ac respectivamente, también se midió la concentración en actividad del ^{40}K y el ^{137}Cs en unidades de $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$.

1. INTRODUCCIÓN

Al existir evidencia que muestra una asociación entre la radiación ionizante y los efectos a la salud^[1], es conveniente identificar los diversos niveles de radiación geográficamente distribuidos que puedan afectar de una manera directa al ser humano. Del mapeo de zonas se puede obtener información variada como la actividad de radionúclidos naturales y/o hechos por el hombre^[2], la manera en la cual se distribuyen, el nivel de radiación de fondo debida a varios procesos geológicos o a cualquier influencia artificial.

Las fuentes de exposición externa más importantes son los rayos cósmicos y la radiación gamma terrestre^[3]. Ésta última se deriva esencialmente del ^{40}K y de los radionúclidos que provienen de las series de decaimiento radiactivo del ^{226}Ra y ^{232}Th en la corteza del planeta. Depósitos de carbón, mica, gas natural, monazita^[2] frecuentemente tienen altas concentraciones de uranio y torio, al propiciarse el equilibrio con su progenie debe considerarse la emanación del gas radón y su inhalación por parte de los mineros y de la población. Para sustancias radiactivas naturales la concentración de la actividad específica establecida como límite es de $1 \text{ kBq} \cdot \text{kg}^{-1}$ de los principales isótopos en equilibrio (IAEA 1996)^[4]

2. SISTEMA DE DETECCIÓN

El equipo utilizado para la investigación de radiactividad gamma natural de la Unidad Académica de Estudios Nucleares UAEN, de la Universidad Autónoma de Zacatecas UAZ, cuenta con las siguientes características^[5]:

- Detector de HPGe modelo GMX-25190-P-Plus
- Preamplificador modelo 237N con un filtro para alto voltaje modelo 138
- Amplificador espectroscópico Ortec serie 673
- Fuente de alto voltaje Ortec serie 659
- Tarjeta multicanal TRUMP de 2K
- Gamma Vision 32 Programa
- Blindaje de bajo fondo graduado en Z.

El detector^[5] de HPGe es un cilindro de 52.5 milímetros de diámetro por 62.5 milímetros de alto, montado en su criostato de 30 litros de nitrógeno líquido. Su voltaje de operación es de 2000 Volts negativos y tiene una resolución (FWHM) de 1.9 keV en la energía gamma de 1332 keV del ^{60}Co con una razón pico a Compton^[6] de 30.6:1

2.1. Calibración En Eficiencia Del Detector

La calibración en eficiencia se realizó utilizando una porción del estándar multinúclido certificado en actividad^[7], número de serie **MULTLM479**. La actividad total de la fuente es de $32.84 \text{ kBq} \pm 3.2 \%$ con un nivel de confianza del 99%. El estándar multinúclido fue aforado a un volumen de 500 mL con agua destilada.

Los datos utilizados en el trabajo fueron tomados de reportes hechos con el mismo sistema^[8].

La Figura 1 muestra los puntos y la curva de ajuste con su ecuación (1) que se utilizó para la obtención de la eficiencia de detección con la utilización del estándar multinúclido para cada energía encontrada en las muestras

$$Y = -0.0008478 + \frac{11.6504}{X} - \frac{494.11432}{X^2} \quad (1)$$

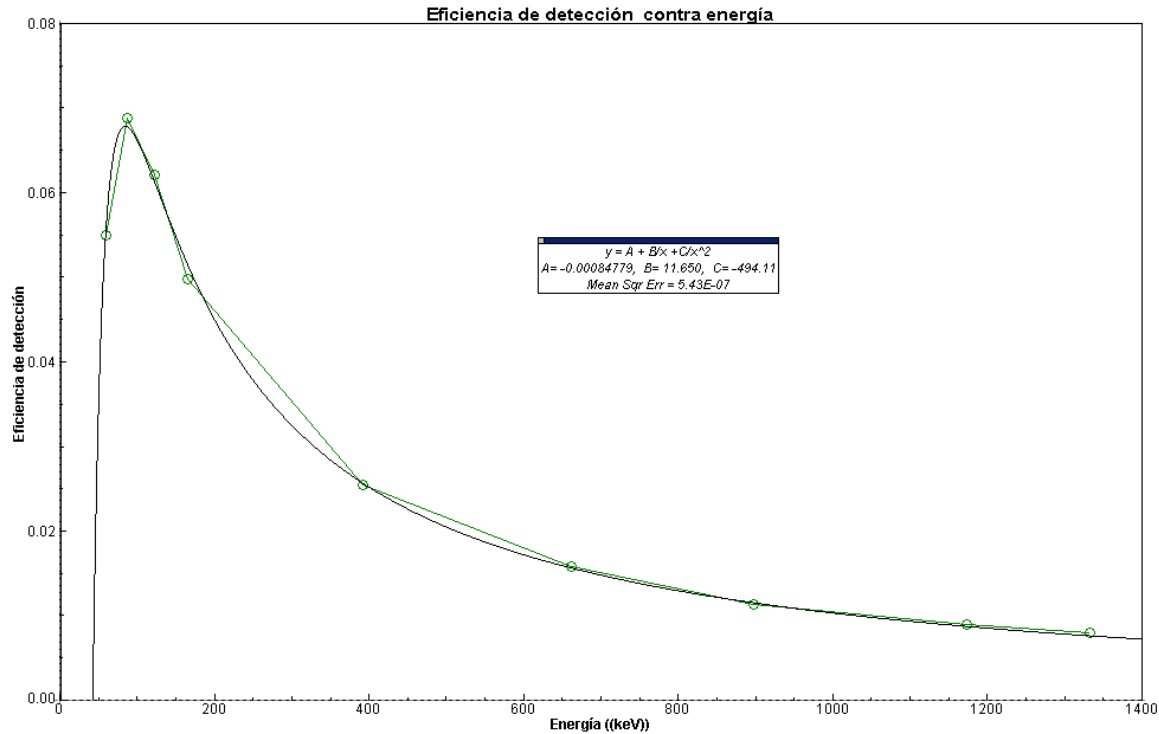


Figura 1. Gráfica de eficiencia contra energía y su ajuste teórico

3. ACTIVIDAD MÍNIMA DETECTABLE

En la determinación de los niveles de radiación de muestras ambientales una de las dificultades es medir bajos niveles en las tasas de desintegración, si con ello consideramos las fluctuaciones estadísticas de la radiación de fondo es necesario definir y establecer parámetros que delimiten un buen marco de referencia confiable.

Se ha mostrado que el límite crítico de detección^[9] (L_D) para la espectrometría de rayos gamma está dada por:

$$L_D = k^2 + 2k[B + \sigma^2(B)]^{1/2} \quad (2)$$

En donde K es la abscisa de la distribución normal estandarizada que corresponde al nivel de probabilidad seleccionado, para un límite de confianza del 95% tal constante es igual a 1.645; B son cuentas debidas al fondo bajo el foto pico de interés; $\sigma^2(B)$ varianza de B .

La ecuación (2) se deriva de asumir una distribución normal para el fondo y que las probabilidades de falso positivo o falso negativo sean igual.

Otro parámetro muy útil es la Actividad Mínima Detectable^[10] (AMD), definida como la cantidad mas pequeña de radionúclido que pueda ser determinada confiablemente dadas las condiciones específicas de la medición espectral, que no se debe a la fluctuación estadística de las mediciones

Para calcular la (AMD)^[9] se recurre a la siguiente ecuación:

$$AMD = k^2 + 2L_D = 2.71 + 4.653\sigma_{BKG} \quad (3)$$

con un límite de confianza del 95%,

La radiactividad medida en una muestra puede ser considerada lineal con respecto a la cantidad de la muestra, y la concentración en actividad puede ser obtenida en unidades de ($Bq \cdot kg^{-1}$). Por otra parte, la AMD no es proporcional a la cantidad de la muestra, y por lo tanto no puede ser considerada linealmente con respecto a la AMD. Por lo que no hay bases para definir la cantidad física: “concentración de AMD”.

De la ecuación (3) se obtiene la Tabla I, que contiene los datos de las actividades mínimas detectables en los fotopicos de interés.

Tabla I. Actividad Mínima Detectable del sistema

Energía (keV)	AMD $Bq \cdot kg^{-1}$	$C_{nBKG} \pm \sigma_{BKG}$ Cuentas
609.32	0.76	1489 \pm 95
661.66	0.44	104 \pm 80
911.07	1.44	1311 \pm 74
1460.75	3.68	11073 \pm 108

3.1. Muestreo y Preparación de Muestras.

Las muestras fueron obtenidas no del interior de la mina, sino de las presas que contienen Jales. De cada una de los depósitos se recolectan dos muestras, que fueron tamizadas para obtener gránulos de mismo diámetro promedio. Las muestras fueron obtenidas de los siguientes lugares: 1.-Presa de Jales Monarca; 2.-Presa de Jales de la Compañía Peñoles en la comunidad de Francisco I. Madero; 3.-Presa de Jales de Barones; 4.-Presa de Jales de Veta Grande; 5.- Presa de Jales del Pedernalillo; 6.- Presa de Jales de la Compañía Peñoles en Fresnillo. Todos ellos localizados en los municipios de Zacatecas, Veta Grande, Guadalupe y Fresnillo respectivamente.

Cada una de las muestras fue secada a una temperatura de 100°C por un tiempo de 72 horas, y después colocadas dentro de un contenedor marinelli de 0.5 litros. Almacenadas por un periodo de 4 semanas para que se alcanzara el equilibrio secular entre ^{226}Ra , ^{222}Rn y su respectiva progenie^[11].

3.2. Análisis de la concentración en actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K y ^{137}Cs en las muestras

De las energías correspondientes al ^{214}Bi (609.32 keV) relacionado al ^{226}Ra , ^{137}Cs (661.66 keV), ^{228}Ac (911.07 keV) relacionado al ^{232}Th y ^{40}K (1460.75 keV) y por medio de la ecuación (1) se estimaron las eficiencias que han de ser sustituidas en la ecuación (4):

$$A = \frac{C_n}{\varepsilon \cdot f \cdot T_c \cdot w} \quad (4)$$

Donde: A es la concentración en actividad de la muestra en ($Bq \cdot kg^{-1}$); C_n son las cuentas netas; f es la fracción de decaimiento y T_c es el tiempo de conteo en (s) y w es el peso neto de la muestra en (kg).

De la ecuación (4) se obtiene la Tabla II que contiene la concentración en actividad de cada muestra y para cada radionúclido con su incertidumbre total. En la Tabla III se puede ver la comparación con el valor promedio mundial.

Tabla II. Concentración en actividad de las diferentes muestras en (Bq kg⁻¹)

Muestra	Lugar	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	²³² Th	⁴⁰ K
JBA1	Barones ¹	3.94±0.38	NM	1.56±0.17	339.02±5.60
JBA2	Barones ¹	4.11±0.4	NM	0.57±0.07	521.46±8.04
JBO1	Bote ¹	4.85±0.45	NM	2.94±0.29	229.81±3.84
JBO2	Bote ¹	14.58±1.16	NM	6.12±0.56	331.47±5.36
JMA1	F Madero ¹	28.12±2.06	0.5±0.46	4.26±0.40	26.86±0.51
JMA2	F Madero ¹	29.73±2.17	NM	4.63±0.43	31.93±0.61
JPE1	Pedernalillo ²	13.19±1.1	0.91±0.83	13.18±1.12	598.78±9.29
JPE2	Pedernalillo ²	11.22±0.94	0.83±0.85	9.10±0.80	518.61±8.00
JVG1	Veta Gde ³	4.64±0.45	NM	0.83±0.09	452.08±7.22
JVG2	Veta Gde ³	3.83±0.38	NM	0.47±0.05	450.08±7.17
JFR1	Fresnillo ⁴	7.97±0.69	NM	2.93±0.31	NM
JFR2	Fresnillo ⁴	17.21±1.33	NM	7.05±0.63	341.92±5.45
JFR3	Fresnillo ⁴	12.3±1.0	NM	4.52±0.44	457.41±7.19
JFR4	Fresnillo ⁴	8.97±0.76	NM	4.17±0.41	553.8±8.37
JFR5	Fresnillo ⁴	9.43±0.79	NM	4.28±0.42	491.06±7.57
JFR6	Fresnillo ⁴	18.66±1.43	NM	7.27±0.65	363.97±5.74
JFR7	Fresnillo ⁴	18.2±91.4	NM	6.58±0.59	180.01±3.15
JFR8	Fresnillo ⁴	19.9±1.52	NM	7.75±0.68	330.55±5.31
JFR9	Fresnillo ⁴	12.88±1.03	NM	5.43±0.51	446.76±6.93
JFR10	Fresnillo ⁴	19.89±1.53	NM	6.83±0.62	372.51±5.97
JFR11	Fresnillo ⁴	17.84±1.38	NM	6.44±0.59	343.65±5.53
JFR12	Fresnillo ⁴	5.8±0.53	NM	2.68±0.28	365.12±6.01
JFR13	Fresnillo ⁴	16.01±1.25	NM	5.74±0.53	414.79±6.44

NM, No Medido

Lugar¹ municipio de Zacatecas; Lugar² municipio de Guadalupe; Lugar³ municipio de Veta Grande; Lugar⁴ municipio de Fresnillo.

Tabla III. Comparación de los valores obtenidos contra la concentración mundial en suelo

	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Concentración Promedio Mundial	30 Bq kg ⁻¹	25 Bq kg ⁻¹	370 Bq kg ⁻¹
Concentración Promedio en Fresnillo	14 Bq kg ⁻¹	6 Bq kg ⁻¹	359 Bq kg ⁻¹
Concentración Promedio en Zacatecas	14 Bq kg ⁻¹	5 Bq kg ⁻¹	325 Bq kg ⁻¹
Concentración Promedio en Veta Grande	4 Bq kg ⁻¹	0.65 Bq kg ⁻¹	451 Bq kg ⁻¹

4. CONCLUSIONES

De los lugares analizados y para la concentración en actividad de ^{137}Cs sólo 3 muestran actividades superiores a la actividad mínima detectable. Las muestras obtenidas de la Comunidad Francisco Madero fueron tomadas de la orilla de la presa que contiene al material de desecho, por ello es atribuible que la actividad encontrada corresponda a la del suelo natural mezclada con el material de muestra. Del reporte Mireles et al^[12] se obtuvo la concentración en actividad promedio en suelo para Zacatecas, Guadalupe y Zona conurbada de ^{137}Cs con un valor de $4.97 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Por otro lado las muestras obtenidas de la comunidad de Veta Grande y en la presa del Pedernalillo se encontró una concentración en actividad específica promedio de $0.87 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ de ^{137}Cs siendo el lugar con mas antigüedad. Para la comunidad de Veta Grande se tiene la concentración mas alta de ^{40}K y las concentraciones menores para ^{232}Th y ^{226}Ra . Por otro lado, la concentración en actividad contenida en las presas de material de desecho en los municipios de Zacatecas y Fresnillo están muy por debajo de las actividades específicas encontradas en los suelos de la ciudad de Zacatecas, en la República de Irlanda^[13], o en los materiales minerales de Zircon de China^[14] y Australia^[1].

REFERENCIAS

1. Banzi, F.P., Msaki, P., Makundi, I.N., "A survey of background radiation dose rates and radioactivity in Tanzania", **Health Physics** vol 82 tomo 1.
2. Narayana, Y, et al, "Natural Radioactivity in the soil samples of Coastal Karnataka of south India", **Health Physics** vol 80 tomo 1.
3. Karunakara, N., et al, " ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K distribution in the environment of Kaiga of south west coast of India", **Health Physics** vol 80 tomo 5.
4. Hartley, B.M., "The measurement of radiation levels in Australian Zircon Milling Plants", **Health Physics** vol 80, tomo 1.
5. Manual del detector, EG&G Ortec.
6. Tsoufanidis, Nicholas Measurement and detection of radiation, Taylor and Francis, EUA, 1995.
7. Departamento de Metrología de radiaciones ionizantes. Laboratorio de Patrones Radiactivos. "Informe de elaboración de fuente radiactiva de referencia", N° de informe: LPR/450/00, ININ.
8. Leal, B. et al, "Calibración en eficiencia de un detector Ge-HP utilizando un estándar multinúclido en matriz de agua", *Memorias del XII Congreso Anual de la SNM / XX Reunión Anual SMSR*, Ixtapa Zihuatanejo, 2002.

9. Nir-El, Yoram., “Minimum Detectable Activity in Gamma- Ray Espectrometry- Statistical Properties and limits of applicability”, **Health Physics**, vol 80, sup. 1.
10. Ibrahiem, N.M., et al, “Measurement of radioactivity levels in soil in the Nile Delta and Middle Egypt”, **Health Physics** vol 64 tomo 6.
11. Ibrahiem, N.M., et al, “Measurement of radioactivity levels in soil in the Nile Delta and Middle Egypt”, **Health Physics** vol 64 tomo 6.
12. Mireles, F. et al, “Cesio-137 en Suelo en las Ciudades de Zacatecas y Guadalupe”, *Memorias del XII Congreso Anual de la SNM / XIX Reunión Anual SMSR*, Zacatecas, Zacatecas.2001.
13. McAulay, I. R., et al “Natural Radioactivity in soil in the Republic of Ireland”, **Radiation Protection Dosimetry**, vol 24, 1998.
14. Deng, Wen, et al, “Radioactivity in Zircon and Building Tiles”, **Health Physics**, vol 73 tomo 2, 1997.