



UNIVERSIDAD NACIONAL DE COLOMBIA

Análisis de concentración de los NORM en muestras de agua del Valle del Magdalena Medio

Jennifer Brigitte Cipagauta Mora

Universidad Nacional de Colombia
Facultad de Ciencias, Departamento de Física
Bogotá, Colombia
2022

Análisis de concentración de los NORM en muestras de agua del Valle del Magdalena Medio

Jennifer Brigitte Cipagauta Mora

Tesis o trabajo de grado presentada(o) como requisito parcial para optar al título de:

Magister en Ciencias-Física

Director:

Ph.D. Fernando Cristancho Mejía

Codirector:

Ph.D. Fernando Elí Romero Ordóñez

Línea de Investigación:

Física Nuclear

Grupo de Investigación:

Grupo de Física Nuclear de la Universidad Nacional

Universidad Nacional de Colombia
Facultad de Ciencias, Departamento de Física
Bogotá, Colombia

2022

Para Daniel

Agradecimientos

En primera instancia agradezco al Profesor Fernando Cristancho por permitirme ser parte del Grupo de Física Nuclear. Su consejo, apoyo y enseñanzas me permitieron crecer personal y profesionalmente. También quiero agradecer a los miembros del grupo por toda la ayuda y los buenos momentos que pasé a su lado. Un especial agradecimiento a Freddy Torres, Alexis Cuero y David Flechas, sin su apoyo técnico dentro del laboratorio no sería posible este trabajo.

Agradecimientos a la Universidad Nacional de Colombia, por haberme permitido realizar y culminar los estudios de Maestría en Ciencias - Física, los cuales se encuentran en el Marco del proyecto de Investigación MEGIA, “Modelo multiescala de gestión integral del agua con análisis de incertidumbre de la información para la realización de la evaluación ambiental estratégica (EAE) del subsector de hidrocarburos en el Valle Medio del Magdalena” contrato 157-2018 suscrito con Minciencias, antes Colciencias y financiado por la Agencia Nacional de Hidrocarburos ANH”.

Un especial reconocimiento al Profesor Fernando Romero por abrirme las puertas al proyecto MEGIA. A Dubban Atuesta le quiero agradecer por compartir su conocimiento y auxiliarme durante la salida de campo. A la comunidad de Aguachica también les agradezco por abrirme las puertas de sus casas, nunca olvidaré este maravilloso municipio.

Gracias a mis padres y a mi hermana por motivarme a alcanzar este nuevo paso en mi carrera profesional. Finalmente, agradezco a Daniel Martínez por ser el mas fiel compañero, su amor y comprensión son inspiración en cada paso de mi vida.

Resumen

Análisis de concentración de los NORM en muestras de agua del Valle del Magdalena Medio

A los isótopos radiactivos ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K se les conoce por sus siglas en inglés como NORM (Normally Occurring Radioactive Materials). Se tomaron 25 muestras de agua en la zona de estudio, el Valle del Magdalena Medio, de donde se determinaron las concentraciones de estos radionúcleos usando un sistema de espectroscopía gamma de alta resolución. Determinando el umbral de decisión y límite de detección se encontró que 7 muestras tienen presencia de ^{238}U , 2 muestras contienen ^{40}K pero estos niveles de uranio y potasio están por debajo del límite de detección. Adicionalmente, se reporta que ninguna de las muestras tiene concentración de actividad de torio superior al límite de decisión.

Palabras clave: NORM, concentración de actividad, dosis, límite de detección.

Abstract

Analysis of NORM concentration in water samples from the Magdalena Medio Valley

The radioactive isotopes ^{232}Th , ^{238}U y ^{40}K are known as NORM (Normally Occurring Radioactive Materials). Taking a series of water samples in the study zone, the Middle Magdalena Valley, the concentration of these radionuclides is determined using a high-resolution gamma spectroscopy system. Determining the decision threshold and detection limit, it was found that 7 samples had the presence of ^{238}U , 2 samples contained ^{40}K but these uranium and potassium levels are below the detection limit. Additionally, it is reported that none of the samples has a thorium activity concentration above the decision limit.

Keywords: NORM, Concentration of activity, dose, the limit of detection.

Lista de Figuras

2-1. Esquema de decaimientos de ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K . Los radionúcleos resaltados en azul emiten rayos gamma.	5
2-2. El efecto fotoeléctrico es un fenómeno donde la energía de un fotón incidente es transferida a un electrón ligado a una estructura y el electrón expulsado del átomo.	7
2-3. Diagrama del efecto Compton. Inicialmente se tiene el fotón incidente y el electrón en reposo. Después de la colisión el rayo γ es dispersado con un ángulo θ	8
2-4. Energía del fotón dispersado, ec. (2-2), entre $0^\circ < \theta < 180^\circ$	8
2-5. Representación polar de la fórmula de Klein-Nishina, ec. (2-3), para diferentes energías incidentes.	9
2-6. Corrección a la actividad por autoabsorción de 100 keV a 1700 keV.	13
2-7. Definición del umbral de decisión y límite de detección. En el ejemplo de esta figura, $k_\alpha = k_\beta = 1.645$ y por lo tanto $\alpha \approx 0.025$	14
3-1. Diagrama de bloques del montaje electrónico utilizado. Las flechas indican la dirección de la señal.	19
3-2. Esquema del montaje experimental utilizado para determinar las concentraciones de NORM en muestras de agua.	20
4-1. Espectro para la muestra B1. En la Figura superior se señalan 2 fotopicos correspondientes a la cadena del ^{238}U y dos picos propios de la cadena del ^{232}Th . En la Figura inferior se señalan el pico característico del ^{40}K , dos fotopicos del decaimiento del ^{232}Th y tres fotopicos de la cadena del ^{238}U . . .	21
4-2. Corte de un espectro de la muestra B1 con los intervalos seleccionados para el fondo y el área del pico. También se observa la recta interlineada que representa el ajuste lineal para determinar el área del fondo debajo del pico.	22
4-3. Concentraciones de actividad C_i encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{238}U . \bar{C} es la concentración de actividad promedio ponderada y su incertidumbre $\sigma(\bar{C})$	23
4-4. Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{238}U encontrados en las muestras. La línea horizontal roja corresponde al nivel de referencia dado por la Organización Mundial de la Salud.	27

4-5.	Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{232}Th encontrados en las muestras. La línea roja corresponde a la referencia dada por la Organización Mundial de la Salud.	28
4-6.	Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{40}K encontrados en las muestras.	30
4-7.	Dosis Absorbida para 9 muestras de agua.	30
4-8.	Dosis Anual para 9 muestras de agua. La línea horizontal roja representa el promedio de dosis mundial.	31
C-1.	Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{238}U	36
C-2.	Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{232}Th	37
C-3.	Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{40}K	38

Lista de Tablas

2-1. Abundancia isotópica natural del potasio, uranio y torio.	6
2-2. Diferentes unidades empleadas para registrar actividad.	10
2-3. Cantidades, unidades de radioactividad y sus correspondientes manejos. . . .	11
3-1. Concentraciones en partes por millón (ppm) de uranio, torio y potasio, en partes por millón, en cada uno de los materiales de referencia.	18
3-2. Especificaciones de los materiales de referencia. Los valores de masa son los reportados en [1].	18
4-1. Concentraciones de actividad por radionúcleo para la muestra B1.	23
4-2. Umbral de decisión y límites de detección de cada cadena de decaimiento para la muestra B1.	24
4-3. Estrategia de reporte de resultados dependiendo de las condiciones entre la medida y sus límites.	25
4-4. Reporte de resultados para la muestra B1 utilizando los casos dados en la Tabla 4-3 . No se ha encontrado ninguna de las tres cadenas de decaimiento.	25
4-5. Reporte de resultados de la Cadena del ^{238}U	26
4-6. Reporte de resultados de la Cadena del ^{232}Th	28
4-7. Reporte de resultados de la Cadena del ^{40}K	29
A-1. Fechas de muestreo, reenvase y medición de las 25 muestras de agua. También se exhiben las etiquetas correspondientes.	33
B-1. Fotopicos empleados para determinar concentración y actividad de NORM en muestras de agua.	34

Índice de contenido

Agradecimientos	VII
Resumen	IX
Lista de figuras	XI
Lista de tablas	XIII
1. Introducción	2
2. Fundamentos teóricos	4
2.1. Radiación Gamma	4
2.2. Materiales Radiactivos de Origen Natural (NORM)	4
2.3. Interacción de la radiación con la materia	6
2.3.1. Efecto Fotoeléctrico	6
2.3.2. Efecto Compton	7
2.4. Actividad	9
2.5. Eficiencia de la detección	11
2.6. Autoabsorción	12
2.7. Umbral de Decisión y Límite de Detección	13
2.8. Detectores de Rayos γ	15
2.9. Caracterización de NORM en aguas	15
3. Montaje experimental	17
3.1. Muestreo	17
3.2. Materiales de referencia	17
3.3. Montaje electrónico	18
3.4. Montaje experimental	19
3.5. Software	20
4. Resultados y Análisis	21
4.1. Espectros obtenidos	21
4.2. Concentración de actividad	22
4.3. Límite de detección y umbral de decisión	24
4.4. Tasa de dosis absorbida	25

4.5. Resultados	26
4.6. Dosis	30
5. Conclusiones y recomendaciones	32
5.1. Conclusiones	32
5.2. Recomendaciones	32
A. Anexo A: Tablas de muestreo	33
B. Anexo: Energías de las cadenas para el estudio de concentración de NORM	34
C. Anexo: Mapa radiológico	35
Bibliografía	39

1. Introducción

En el área de la Física Nuclear Aplicada la investigación sobre los materiales que contienen radionúcleos de ocurrencia natural (o NORM por sus siglas en inglés) son de especial interés debido a que se encuentran en pequeñas cantidades en todo el planeta. Los NORM están en el suelo, plantas, animales, humanos, petróleo, agua, etc [2]. Los sistemas acuáticos pueden contener NORM relacionados con la actividad humana o por procesos geológicos, y por lo tanto son responsables de una fracción de la dosis de radiación que el humano recibe del ambiente [3].

NORM comprende radionúcleos asociados con la desintegración de las cadenas de decaimiento de ^{238}U y ^{232}Th y ^{40}K . Los seres humanos están permanentemente expuestos a las radiaciones emitidas por estos radionúclidos y sus productos. Por lo tanto, entender la distribución y acumulación de estos materiales se vuelve un asunto de vital importancia por la posible sobreexposición radiológica.

Se sabe que los radionúcleos ^{226}Ra y ^{228}Ra , productos del decaimiento de los isótopos de Uranio y Torio, están presentes en las formaciones geológicas bajo la superficie desde las cuales se producen los hidrocarburos. Mientras que el Uranio y el Torio son casi inmóviles, el Radio es ligeramente más soluble y puede moverse en las fases fluidas de la formación geológica [4].

En Colombia, a pesar de que el tema es de gran interés, la investigación de la caracterización de NORM y su concentración ha sido limitada. En varias de las operaciones de extracción de petróleo y gas se acumula NORM por encima de los niveles naturales lo cual hace que las industrias petroleras y sus reguladores estén cada vez más preocupados por la presencia de radiación. En especial, la Agencia Nacional de Hidrocarburos está interesada en la generación de una línea base de conocimiento de los recursos hídricos que incluya la determinación de los niveles de radiación natural.

En el marco del proyecto MEGIA (Modelo Multiescala de Gestión Integral del Agua con análisis de incertidumbre de la información para la realización de la evaluación ambiental estratégica del subsector de hidrocarburos en el Valle del Magdalena Medio) de las Facultades de Ciencias e Ingeniería de la Universidad Nacional de Colombia, se presenta la necesidad de caracterizar físico-químicamente el agua [5]. Uno de los parámetros a establecer es la concentración de actividad de los NORM en el agua.

El contenido de este documento se distribuye en cinco capítulos fundamentales y tres anexos. En el primer capítulo es la Introducción. El segundo capítulo, denominado fundamentos teóricos, se presenta la teoría necesaria para conocer el problema de la concentración de

actividad de NORM en el agua. En la tercera sección se expone el montaje experimental donde se establece el arreglo electrónico, el muestreo y las fuentes de referencia. Los resultados y análisis de las medidas hechas se encuentran en el cuarto capítulo. El quinto capítulo consiste en las conclusiones y recomendaciones. Finalmente, se tienen los anexos donde se incluyó una tabla con información complementaria de las muestras, una tabla con las energías seleccionadas para el análisis de concentración y un mapa geográfico con la distribución de los niveles de radiación natural encontrados.

2. Fundamentos teóricos

2.1. Radiación Gamma

El núcleo atómico, desde el punto de vista físico, es un ente mecano-cuántico, por lo tanto está caracterizado por niveles de energías discretos. Entre estos niveles puede ocurrir emisión de radiación electromagnética con una energía igual a la diferencia de energía entre los niveles participantes en la transición. Las energías de la radiación emitida están típicamente en la región de los rayos γ (alrededor de y más altas que 100 keV) aunque también son observadas transiciones con energías en la región de los rayos X (decenas de keV) [6]. La singularidad de las energías gamma permite la identificación del núcleo emisor.

2.2. Materiales Radiactivos de Origen Natural (NORM)

Los materiales NORM que contienen los núcleos usualmente medidos por espectroscopía gamma son los núcleos cosmogénicos ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K con una vida media larga ($\approx 10^9$ años) [7]. Estos elementos han estado presentes desde la formación de la tierra y continúan emitiendo radiación.

Los NORM están presentes en el subsuelo y pueden llegar a la superficie. Así, las aguas subterráneas pueden contener concentraciones de radio disuelto. Estas aguas pueden ser extraídas por medio de pozos que son consumidas por residentes locales, y pueden ser embotelladas para distribución comercial [8]. También, el isótopo ^{40}K está presente en una pequeña fracción de potasio de ocurrencia natural (véase Tabla **2-1**) y se puede encontrar en la corteza terrestre, en los océanos y en todos los materiales orgánicos [9].

El ^{226}Ra y sus productos de decaimiento, pueden ser traídos a la superficie de la tierra por aguas termales. El agua subterránea se calienta por la actividad geológica del subsuelo y pasa a través de rocas ígneas uraníferas y relativamente jóvenes. El radio se disuelve de las rocas mediante agua subterránea caliente y cuando el agua subterránea llega a la superficie en lugares de fuentes termales, el travertino, un mineral de carbonato de calcio, se precipita de la solución con radio disuelto que sustituye al calcio en el mineral. Una causa secundaria de niveles de radiación local son los depósitos de travertino con una concentración de torio [10].

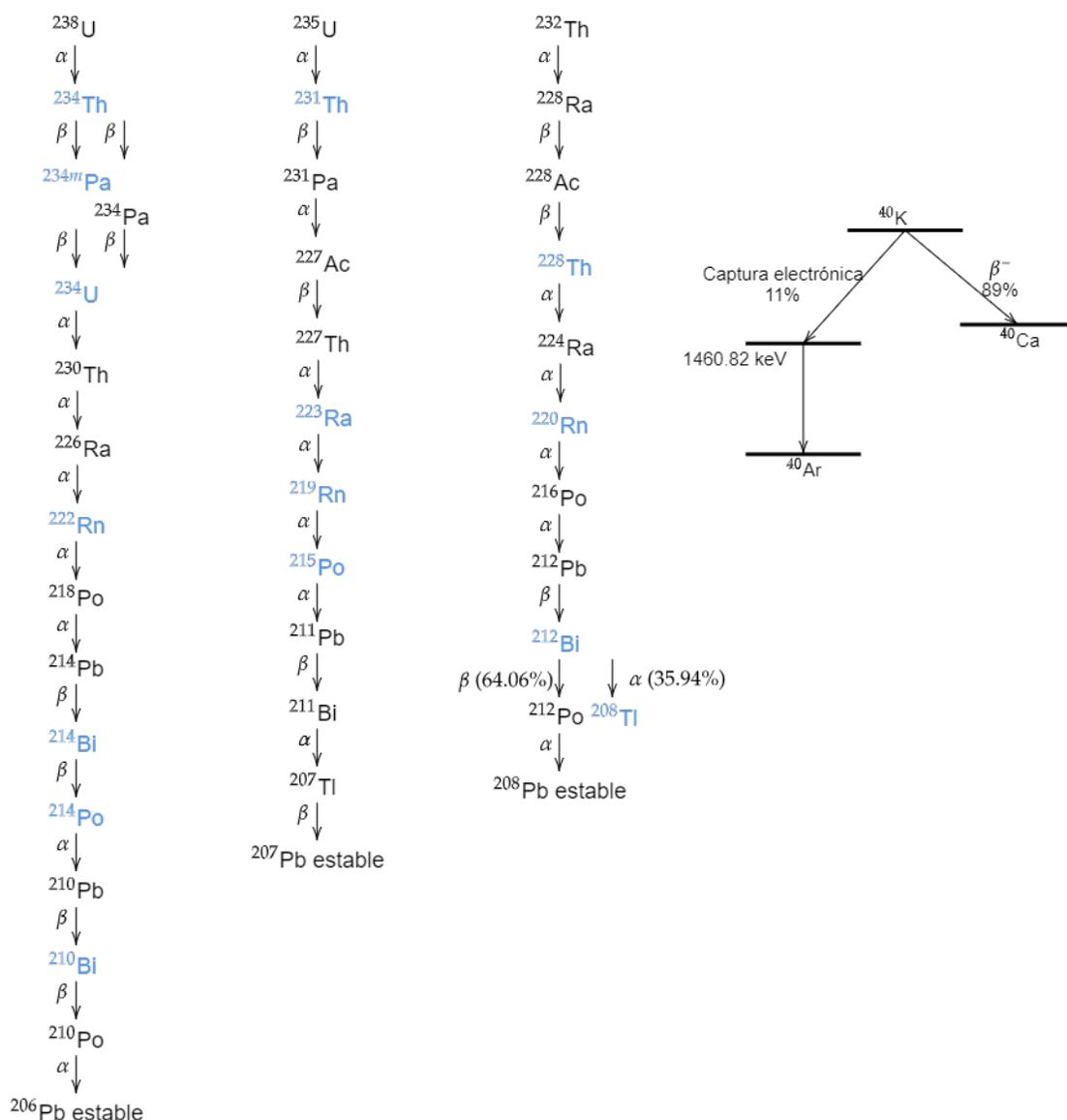


Figura 2-1.: Esquema de decaimientos de ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K . Los radionúcleos resaltados en azul emiten rayos gamma.

Las cadenas de decaimiento de los elementos ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th y ^{40}K se muestran en la Figura 2-1. En algunas de las etapas del decaimiento los radionúclidos emiten radiación γ , en la Figura 2-1 estos elementos se resaltan en azul. Estas series involucran varias etapas de decaimiento donde tanto los hijos como el padre emisor (en este caso ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th o ^{40}K) pueden ser identificados por espectroscopía γ debido a la particularidad en los patrones de emisión.

Los nucleidos de la serie de decaimiento del ^{238}U se encuentran en la Figura 2-1 a la izquierda. El ^{238}U tiene una abundancia natural de aproximadamente 93.9% (Tabla 2-1) y decae por

emisión α al ^{234}Th el cual decae al ^{234m}Pa y así hasta que se alcanza al nucleido estable ^{206}Pb . Para la cadena del ^{238}U los 6 radionúcleos resaltados en azul pueden ser medidos con facilidad ya que emiten radiación γ significativa [7].

Radionúcleo	Abundancia isotópica natural φ (fracción)
^{39}K	0.938521
^{40}K	0.000117
^{41}K	0.067302
^{238}U	0.993
^{235}U	0.007
^{232}Th	0.9998
^{230}Th	0.0002

Tabla 2-1.: Abundancia isotópica natural del potasio, uranio y torio.

Del 100 % de uranio natural que se pueda encontrar en el planeta, menos del 1 % corresponde a ^{235}U (Tabla 2-1). Su cadena de decaimiento, se muestra a la derecha de la cadena de ^{238}U en la Figura 2-1. Dentro de esta serie, sólo el ^{231}Th es fácilmente medible y su principal rayo γ emitido es de 185.72 keV [7].

El ^{232}Th es prácticamente el 100 % del torio natural (Tabla 2-1). La serie de decaimiento es la tercera cadena de izquierda a derecha de la Figura 2-1, donde se observan 10 etapas. Tan solo 4 nucleidos pueden ser medidos fácilmente por espectroscopía γ : ^{228}Th , ^{220}Rn , ^{212}Bi y ^{208}Tl [7].

A la derecha de la Figura 2-1 se observa la cadena de decaimiento ^{40}K , la cual tiene un sólo decaimiento γ con energía de 1460.82 keV. La abundancia de este radioisótopo es del 0.012 % aproximadamente (Tabla 2-1).

2.3. Interacción de la radiación con la materia

Algunos de los procesos de interacción de los rayos X y γ con la materia son el efecto fotoeléctrico y el efecto Compton.

2.3.1. Efecto Fotoeléctrico

En el efecto fotoeléctrico, ilustrado en la Fig. 2-2, un rayo gamma de energía E_γ interactúa con un electrón de la capa interna de un átomo de un material absorbente de radiación transfiriendo su energía totalmente a ese electrón [11]. Como resultado, el rayo gamma es absorbido por el electrón y el fotoelectrón es expulsado del átomo con una energía dada por

la diferencia entre E_γ y la energía de ligadura del electrón. El hueco dejado por el fotoelectrón es llenado con un electrón de nivel superior, produciendo un rayo X [12].

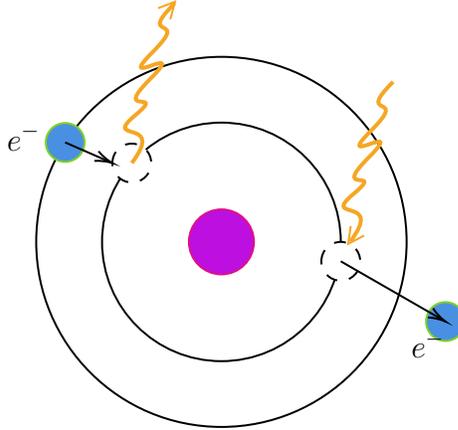


Figura 2-2.: El efecto fotoeléctrico es un fenómeno donde la energía de un fotón incidente es transferida a un electrón ligado a una estructura y el electrón expulsado del átomo.

Teóricamente, el efecto fotoeléctrico es difícil de tratar rigurosamente debido a la complejidad de las funciones de onda de Dirac para los electrones atómicos. Asumiendo que el rayo γ sólo interactúa con los electrones de la capa K y que su energía no es relativista, es posible calcular la sección eficaz fotoeléctrica σ_{ph} usando la aproximación de Born. La dependencia con los parámetros físicos más importantes, el número atómico Z y la energía del rayo gamma, E_γ , resulta [13]

$$\sigma_{ph} \propto \frac{Z^{4-5}}{E_\gamma^{3.5}}. \quad (2-1)$$

2.3.2. Efecto Compton

En el efecto Compton un fotón con energía E_γ dispersa un electrón inicialmente en reposo. El fotón dispersado se desvía un ángulo θ respecto a su dirección original (Figura 2-3). El rayo γ dispersado tiene una energía

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \epsilon(1 - \cos \theta)} \quad (2-2)$$

donde $\epsilon = E_\gamma/m_e c^2$ es la energía inicial del rayo γ en unidades de la energía en reposo del electrón [14].

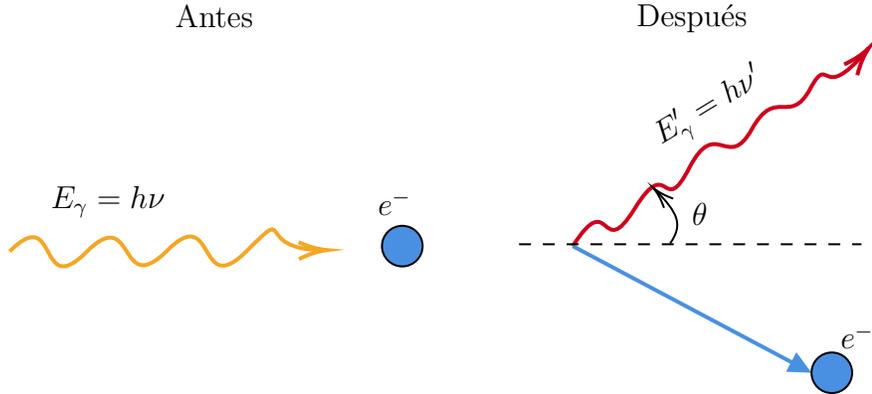


Figura 2-3.: Diagrama del efecto Compton. Inicialmente se tiene el fotón incidente y el electrón en reposo. Después de la colisión el rayo γ es dispersado con un ángulo θ .

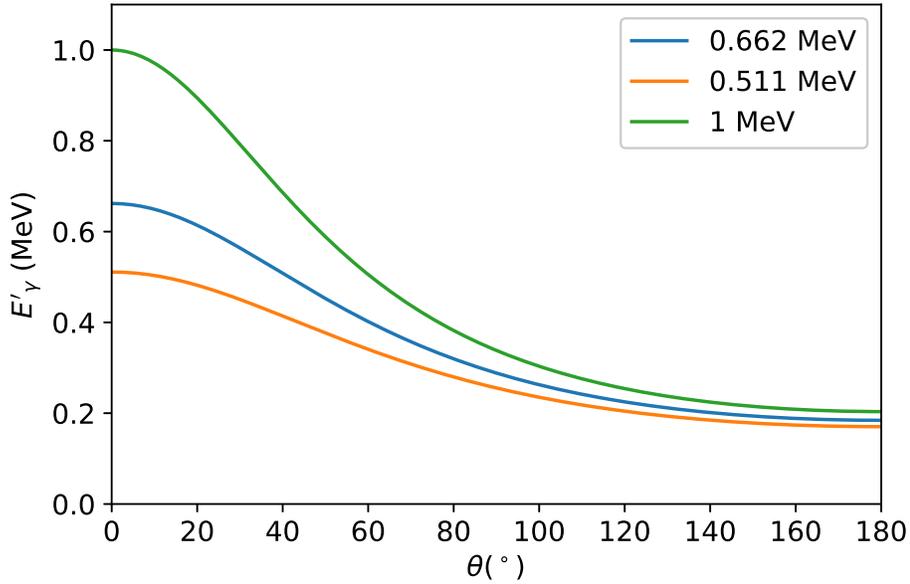


Figura 2-4.: Energía del fotón dispersado, ec. (2-2), entre $0^\circ < \theta < 180^\circ$.

La probabilidad de dispersar un fotón con energía incidente E_γ en un ángulo sólido $d\Omega$ alrededor del ángulo de dispersión θ está dada por la fórmula de Klein-Nishina [6],

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{r_e^2}{2} \frac{1}{[1 + \epsilon(1 - \cos\theta)]^2} \left(1 + \cos^2\theta + \frac{\epsilon^2(1 - \cos\theta)^2}{1 + \epsilon(1 - \cos\theta)} \right), \quad (2-3)$$

donde $r_e = 2.817 \times 10^{-15}$ m es el radio clásico del electrón. Es importante precisar que θ es el ángulo entre la dirección de movimiento del fotón incidente y la dirección de movimiento del

fotón dispersado [6]. La Fig. 2-5 ilustra dos observaciones importantes: (i) La distribución angular no es isotrópica; (ii) A energías $E_\gamma \gtrsim 1$ MeV la distribución se concentra en ángulos bajos.

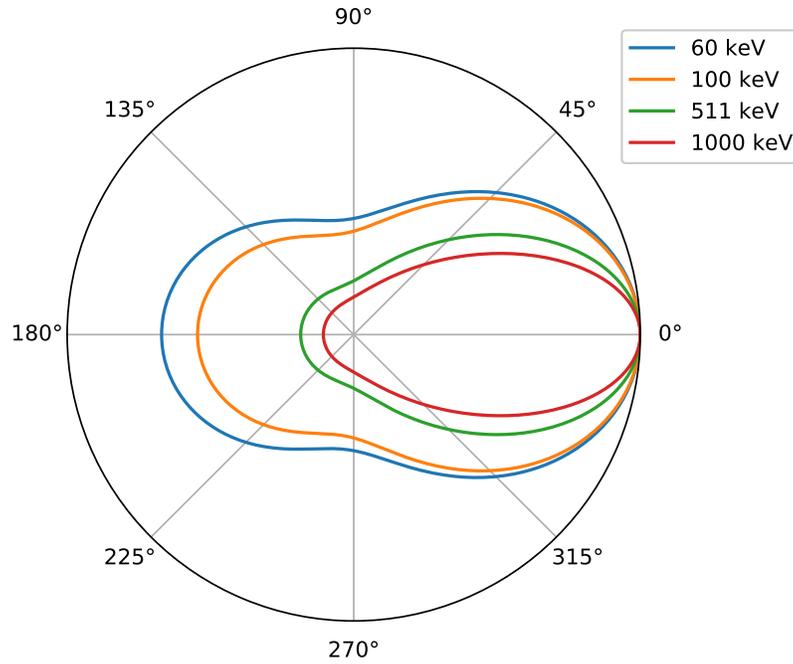


Figura 2-5.: Representación polar de la fórmula de Klein-Nishina, ec. (2-3), para diferentes energías incidentes.

2.4. Actividad

Ernest Rutherford y Frederick Soddy, a partir de observaciones experimentales, encontraron que la ley de variación en el tiempo de la actividad $A(t)$ [15]

$$A(t) = \frac{dN}{dt} = -\frac{N}{\tau} \quad (2-4)$$

con N el número de núcleos presentes en la muestra. La solución de la Ec. (2-4) es

$$A(t) = A_0 \exp[-t/\tau], \quad (2-5)$$

donde τ es el tiempo de vida media y A_0 la actividad inicial. τ es un valor característico de cada radionúcleo que indica el tiempo para que su actividad se reduzca $e^{-1} \approx 37\%$. En el trabajo práctico se acostumbra usar el tiempo de semidesintegración, $T_{1/2}$ que es tiempo en el que la actividad decae hasta la mitad [12]. Los dos tiempos están relacionados por $T_{1/2} = \ln(2)\tau \approx 0.7\tau$. Las unidades de la actividad se muestran en la Tabla 2-2.

Unidad		desintegraciones / segundo
1 Becquerel	1 Bq	1
1 Curio	1 Ci	3.7×10^{10}

Tabla 2-2.: Diferentes unidades empleadas para registrar actividad.

La actividad de un radionúcleo puede medirse por medio de un sistema de detección de rayos γ , es decir un arreglo con un detector de estado sólido o un centellador que permite estudiar el número de detecciones registradas (intensidad),

$$A(E_\gamma) = \frac{I(E_\gamma)}{\epsilon(E_\gamma)b(E_\gamma)\Delta t\left(\frac{\Delta\Omega}{4\pi}\right)}, \quad (2-6)$$

donde,

$I(E_\gamma)$ = Número de cuentas registradas en Δt ,

$\epsilon(E_\gamma)$ = Eficiencia intrínseca del detector,

$\Delta\Omega$ = Ángulo sólido entre el detector y la muestra,

$b(E_\gamma)$ = Probabilidad de decaimiento γ para cada energía,

Δt = Tiempo de medida.

Usando la definición de actividad dada por la ec. (2-4) y calculando el número de núcleos radiactivos a partir de las propiedades macroscópicas de la muestra [12]:

$$A = \frac{0.693}{T_{1/2}} \frac{N_A}{w} \varphi C m, \quad (2-7)$$

donde:

N_A = Número de Avogadro [1/mol],

w = masa atómica del radionúcleo [g/mol],

φ = abundancia isotópica,

C = Concentración del radionúcleo en la muestra,

m = masa de la muestra [g].

En geología y física geonuclear, la concentración de radioelementos en rocas, aire y agua se expresa en diferentes unidades. Se habla de **actividad específica** (actividad por unidad de masa) para describir el contenido de radionucleidos de rocas o materiales de construcción; mientras que para determinar la concentración de radionucleidos en gases y líquidos se define la **concentración de actividad** (actividad por unidad de volumen). Estas cantidades y sus unidades están resumidas en la Tabla **2-3** [16].

Cantidad	Unidad	Uso
Actividad	Bq	radioactividad de objetos
Actividad específica	Bq/kg	radioactividad de unidad de masa
Concentración de actividad	Bq/L	radioactividad de gases y líquidos

Tabla 2-3.: Cantidades, unidades de radioactividad y sus correspondientes manejos.

Equilibrio secular

Se dice que una familia radiactiva está en equilibrio, cuando durante un tiempo determinado, las tasas entre las cantidades de los nucleidos que la componen permanecen constantes. Dicho de otra manera, únicamente decrece el número de núcleos del padre N_1 y aumenta el número de núcleos del radionúcleo final estable de la cadena N_{n+1} , preservándose igual las razones:

$$\frac{N_1}{N_2}, \frac{N_2}{N_3}, \frac{N_1}{N_3}, \dots \text{etc.} \quad (2-8)$$

De acuerdo con la Ecuación (2-4) se tiene para el elemento 2 de la cadena de decaimiento:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \quad (2-9)$$

con $\lambda = 1/\tau$ la constante de desintegración. La solución de la Ecuación (2-9) es:

$$N_2(t) = N_1 \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) e^{(\lambda_1 t)}. \quad (2-10)$$

Como $N_2 > 0$ para que exista equilibrio secular entonces $\lambda_1 > \lambda_2$ o dicho en tiempos de vida media [17]:

$$\tau_1 > \tau_2 \quad (2-11)$$

Al cumplirse la condición de la Ecuación (2-11) se tiene que el valor de la actividad del núcleo padre tiende a ser igual al valor de la actividad de los núcleos hijo. Este caso es típico de las series radiactivas naturales.

2.5. Eficiencia de la detección

Para que la radiación γ sea detectada debe pasar por una interacción significativa en el detector. Debido a que los rayos γ pueden viajar grandes distancias entre interacciones, los detectores no son 100 % eficientes. Así se vuelve necesario tener una relación entre el número de eventos registrados por el detector y el número total de partículas emitidas por la fuente. Esta razón se conoce como eficiencia absoluta o total $\epsilon_{tot}(E_\gamma)$ del sistema de detección [12, 18].

2.6. Autoabsorción

Un haz angosto de fotones monoenergéticos con una intensidad incidente I_0 , que penetra en una capa de material con grosor x y densidad ρ , emerge con intensidad I dada por la ley de atenuación exponencial

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-(\mu/\rho) \cdot x}, \quad (2-12)$$

con μ el coeficiente de atenuación lineal [19]. Como el material a pesar de tener la misma composición estequiométrica puede encontrarse en diferentes estados físicos (i.e. líquido, gaseoso, sólido) se puede establecer un coeficiente de atenuación lineal másico μ' el cual es independiente de ρ y por tanto del estado de la materia:

$$\mu' = \frac{\mu}{\rho}. \quad (2-13)$$

Corrección a la actividad por autoabsorción

Debido a que los materiales de referencia se encuentran compuestos por óxido de silicio o sílica y el material radiactivo que se busca estudiar se encuentra en una matriz de agua, es necesario realizar una corrección por autoabsorción. Dividiendo las ecuaciones de atenuación específicas para el material de referencia y la muestra de agua (ec. (2-12)), se puede realizar una corrección c_{mi}^* que involucra los coeficientes μ' de cada matriz (subíndice h para el agua y subíndice r para el SiO_2),

$$c_{mi}^* = \frac{e^{-\mu'_h \rho_h x}}{e^{-\mu'_r \rho_r x}}, \quad (2-14)$$

con $\rho_{h,r}$ la densidad de las matrices en g/cm^3 .

La Figura 2-6 muestra la corrección a la actividad en función de la energía, los valores de μ' se extrajeron de la base de datos del Instituto Nacional de Estándares y Tecnología NIST [19].

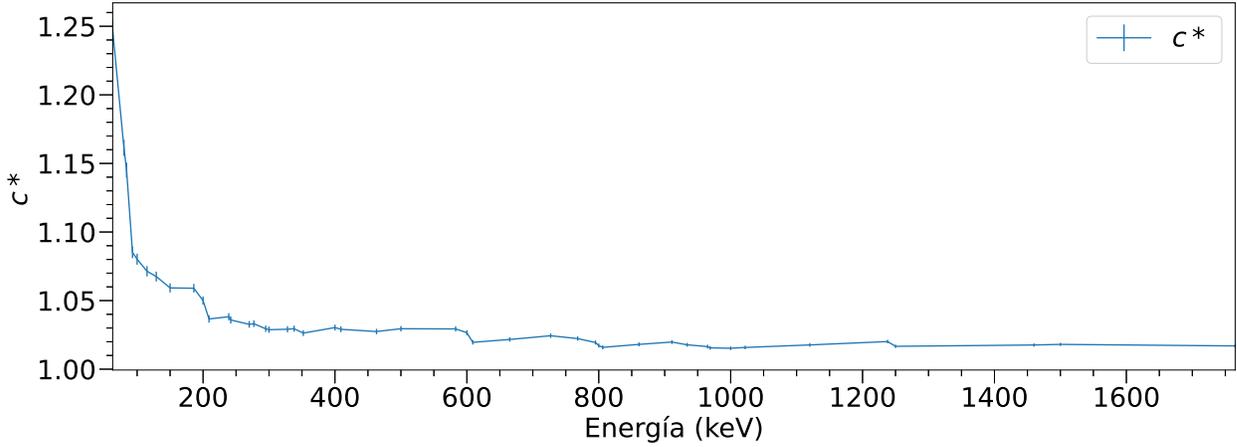


Figura 2-6.: Corrección a la actividad por autoabsorción de 100 keV a 1700 keV.

Con esta corrección el cálculo de la actividad para la muestra (subíndice m) para el radionúcleo i (sea ^{238}U , ^{232}Th o ^{40}K):

$$A_{mi} = \frac{I_{mi}}{\Delta t \epsilon_{mi} b_{mi}} C_{mi}^*, \quad (2-15)$$

y la concentración de actividad:

$$C_{mi} = \frac{I_{mi}}{\Delta t \epsilon_{mi} b_{mi}} C_{mi}^* \frac{1}{V_m}. \quad (2-16)$$

2.7. Umbral de Decisión y Límite de Detección

Cuando se hacen mediciones de bajo nivel de conteo es necesario tomar dos decisiones: la primera es establecer si una muestra contiene un radionúcleo particular y la segunda es decidir entre los casos alternativos de que la medida esté por encima o por debajo de un valor de referencia. Estas decisiones están asociadas a tener una probabilidad de error en las decisiones, probabilidad que a su vez está relacionada con las incertidumbres en la medición. El radionúcleo bajo examen se toma como presente si el valor de la medición excede el umbral de decisión (DL). Una expresión del límite de decisión puede ser derivada como [20]:

$$\text{DL} = k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\sigma_g^2 + \sigma_b^2} \quad (2-17)$$

donde σ_g es la desviación estándar de la medición de la muestra y σ_b es la desviación estándar del fondo. El valor de $k_{1-\alpha}$ corresponde a intervalos de confianza unilaterales. La probabilidad de detección falsa de 5% se obtiene usando $k_{1-\alpha} = 1.645$

Se tiene una muestra y se mide un número grande de veces. Midiendo una cierta región del espectro obtenido en cada lectura, contando el número de cuentas en ella y graficando la frecuencia como función del número de cuentas obtenidas en cada lectura, se obtiene una

distribución gaussiana (véase Figura 2-7 (a)). La desviación estándar de esta distribución es σ_0 .

Para decidir si una medición particular, en cierto grado, es verdaderamente cero o representa un conteo positivo verdadero se puede utilizar el umbral de decisión. Si A es el resultado de la medición de la muestra,

- $A \geq DL \rightarrow$ el conteo es estadísticamente significativo.
- $A \leq DL \rightarrow$ el conteo no es significativo [21].

Por ejemplo, después de hacer muchas lecturas y de hacer sus correspondientes sumas de cuentas en la región, se tiene que el valor medio de esas sumas es $\bar{S} = \mu = 100$ cuentas (Fig. 2-7 (a)). Si en alguna de las mediciones de muestras se encuentra que la suma (integral) en ese rango es de, por ejemplo $A = 115$ cuentas, no se acepta como un verdadero conteo positivo. Sólo se aceptan valores tales que $A \geq L_C = 116.45$.

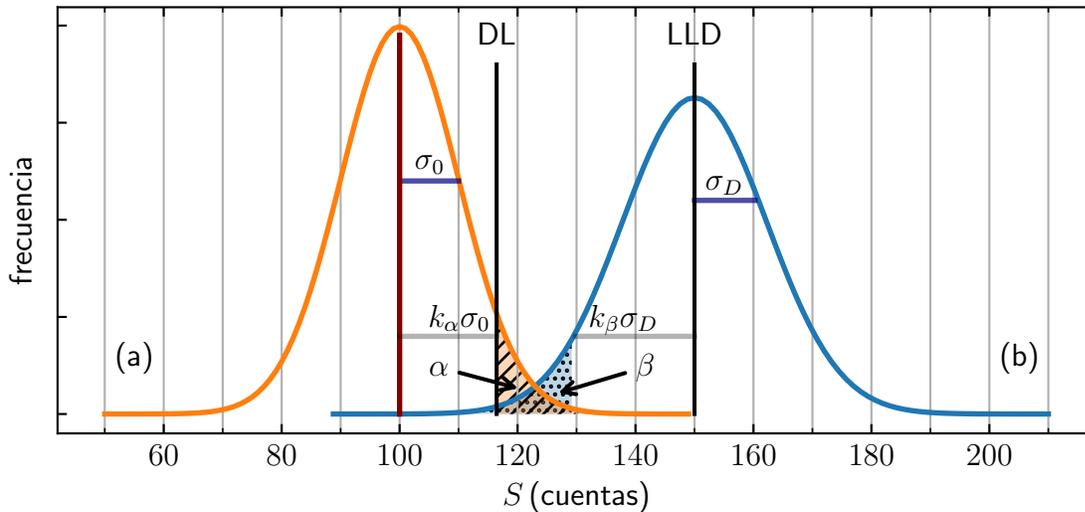


Figura 2-7.: Definición del umbral de decisión y límite de detección. En el ejemplo de esta figura, $k_\alpha = k_\beta = 1.645$ y por lo tanto $\alpha \approx 0.025$.

Por otro lado, el límite de detección (LLD) es el valor más pequeño de la medida que aún pueda detectarse con el procedimiento de medición aplicado [22]. El LLD se define como [20]:

$$LLD = DL + k_{1-\beta} \cdot \sqrt{s_g^2 + s_b^2}. \quad (2-18)$$

Suponga se tiene una muestra con una actividad tal que su conteo es precisamente el LLD. Al medir esa muestra un gran número de veces se tiene una distribución con desviación estándar $\sigma_D = \sqrt{s_g^2 + s_b^2}$ (Fig. 2-7 (b)). Se desea estar seguro, a un grado determinado por $k_{1-\beta}$, que la posibilidad de no detectar la actividad cuando en realidad sólo existe β , a saber, sería el límite de detección [21].

2.8. Detectores de Rayos γ

La radiación proveniente de los NORM puede ser detectada con detectores centelladores o con detectores de Ge. Debido a su alta resolución, es preferible usar los últimos, si bien son los más caros tanto por el valor del detector mismo como por los costos de su operación.

En esencia, la salida de un detector de rayos γ es una cantidad proporcional a la cantidad de energía de un rayo γ absorbida por el detector. La función del sistema electrónico es recolectar esa carga, medirla y clasificar la información pertinente sobre la detección [21].

Detectores de Germanio de Alta Pureza (HPGe)

Los detectores de germanio son diodos semiconductores que tienen una estructura p-i-n, es decir un contacto tipo p (positivo), una capa intrínseca (i) y contacto tipo n (negativo), en los que la región intrínseca es sensible a las radiaciones ionizantes, en particular a rayos X y rayos γ . Bajo polarización inversa, un campo eléctrico se extiende a través de la región intrínseca. Cuando los fotones interactúan con el material dentro de la región intrínseca se producen portadores de carga (huecos y electrones) y son arrastrados por el campo eléctrico a los electrodos p y n. Esta carga, que es proporcional a la energía depositada en el detector por el fotón incidente, se convierte en un pulso de voltaje mediante un preamplificador integral sensible a la carga.

Dado que el germanio tiene un gap relativamente bajo, estos detectores deben enfriarse para reducir la generación térmica de los portadores de carga a un nivel aceptable. De lo contrario, el ruido inducido por la corriente destruye la resolución de energía del detector. El nitrógeno líquido, que tiene una temperatura de 77 K, ha sido tradicionalmente el medio de enfriamiento para tales detectores [23].

2.9. Caracterización de NORM en aguas

Una técnica típica para encontrar concentraciones de actividad de NORM en muestras es la espectroscopía de rayos γ . La ventaja de este método es la capacidad de medir emisores γ directamente en la muestra. La preparación de la muestra es relativamente simple ya que no hay necesidad de separaciones químicas. Además, la espectrometría de rayos γ permite tanto la identificación cualitativa como la determinación cuantitativa de múltiples radionúclidos al mismo tiempo [24].

Utilizando la espectroscopía γ se han medido concentraciones de actividad para diferentes propósitos. Los niveles de NORM se han medido en la industria del petróleo y del gas en repetidas ocasiones. Por ejemplo, se obtuvieron muestras de aguas de producción de campos petroleros y usando un detector de germanio de alta pureza se encontró una concentración de actividad promedio del ^{226}Ra de 10.4 Bq/L [25]. También se encontraron las concentraciones

de las series uranio, torio y potasio utilizando un espectroscopía γ de alta resolución en la industria petrolera en los desiertos de Egipto [26].

Otro estudio comprendía el objetivo de la caracterización radiológica de determinados radioisótopos γ y α de los lodos obtenidos de diferentes plantas de tratamiento de agua españolas. Empleando un espectrómetro de radiación α y un detector de germanio hiperpuro para los emisores γ , se reportan actividades específicas en el rango de 84.4-792.1 Bq/kg de ^{234}U , 3.3-26.8 Bq/kg de ^{235}U y 63.8-585.9 Bq/kg de ^{238}U [27].

Por otro lado, en una mina de oro en Ghana se investigó la exposición del público a NORM al procesar oro. En este estudio también se utilizó un detector de HpGe para determinar concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K [28].

En Estonia, donde tenían información incompleta relacionada con NORM, realizaron una investigación entre 2015 y 2017 para determinar y caracterizar radiológicamente el potencial de NORM en sus industrias. Los resultados permitieron concluir que 3 industrias en Estonia requerían de futuros controles regulatorios debido a que las concentraciones de radionúcleos eran altas. Esta investigación también se llevó a cabo empleando un detector de germanio de alta pureza Canberra BeGe BE 3830-P [29].

En la región de Makkah, en Arabia Saudita, se midieron las concentraciones de actividad de ^{226}Ra , ^{232}Th y ^{40}K en muestras de agua subterránea utilizada para la irrigación de cultivos. Utilizando un detector de HPGe se reportan valores de 1.57, 0.58 y 118.44 Bq/L respectivamente [30].

En diversas investigaciones además de reportar concentraciones de actividad se estima su límite de detección. Con el fin de obtener una estimación fiable de la descarga de NORM al mar, se obtienen concentraciones de actividad de ^{226}Ra y ^{228}Ra por debajo del DL correspondiente [31].

3. Montaje experimental

El montaje experimental incluye un detector de HPGe, las muestras estudiadas y los materiales de referencia. Es necesario entender la procedencias de la muestras y los materiales de referencia.

3.1. Muestreo

Se tomaron muestras de agua de 25 pozos profundos en puntos distribuidos en el Valle del Magdalena Medio (véase Anexo C). La metodología del muestreo consiste en tomar una muestra de 500 mL a profundidad en pozos con nivel de agua y profundidad conocidos.

Para el muestreo, preservación y manejo de aguas subterránea se siguieron las normas técnicas pertinentes [32, 33]. El muestreo a profundidad consistió en hacer bajar un dispositivo de muestreo por el interior del pozo, dejando que se llene con agua a una profundidad conocida, y recuperando la muestra para transferirla a un recipiente apropiado [32]. Para este caso los recipientes empleados en la medición tienen la misma geometría que los que contienen a los materiales de referencia. Las botellas debidamente etiquetadas fueron almacenadas y transportadas adecuadamente protegiendo a los contenedores de posibles contaminaciones externas y roturas [33].

Las muestras debieron volver a envasarse ya que los envases originales no tienen la forma de las botellas de los materiales de referencia. Durante el intercambio de botellas, las muestras cambiaron de etiqueta (véase Anexo A).

3.2. Materiales de referencia

Los materiales de referencia de uranio, torio y potasio (nombrados como RGU-1, RGTh-1 y RGK-1 respectivamente) fueron preparados por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) para usarlos en el análisis de espectroscopía de rayos γ en la medición de estos radioelementos en materiales geológicos [1]. Estos patrones están compuestos por arena homogénea (sílice) y empacados en botellas de 500 g. La concentración de uranio, torio y potasio de cada uno de estos materiales de referencia se muestran en la Tabla **3-1**.

Componente	Referencia		
	RGU-1	RGTh-1	RGK-1
Uranio	400(2)	800(16)	< 0.001
Torio	< 1	6.3(4)	< 0.01
Potasio	< 20	200(100)	448000(3000)

Tabla 3-1.: Concentraciones en partes por millón (ppm) de uranio, torio y potasio, en partes por millón, en cada uno de los materiales de referencia.

Con la información suministrada por la Tablas **2-1** y **3-1** es posible calcular tanto la actividad como la actividad específica de los radionúcleos de interés utilizando la Ecuación (2-7). Estos valores, para los patrones de referencia, se observan en la Tabla **3-2**.

Referencia	Masa (g)	Radionúcleo	Actividad (Bq)	Actividad Específica (Bq/kg)
RGU-1	500	^{238}U	2669(17)	4989(36)
		^{235}U	121(1)	226(2)
RGTh-1	500	^{232}Th	1760(36)	3283(68)
RGK-1	500	^{40}K	6727(273)	13454(766)

Tabla 3-2.: Especificaciones de los materiales de referencia. Los valores de masa son los reportados en [1].

3.3. Montaje electrónico

Para que la radiación proveniente de las muestras o fuentes sea accesible es necesario convertirla en una señal que pueda ser procesada y de esa forma poder extraer la información que trae cada pulso. Este tratamiento es posible gracias a la configuración electrónica exhibida en la Figura **3-1**.

El primer paso es aplicar un voltaje de 4000 V al detector de HPGe. La señal de carga proveniente del detector es convertida a voltaje por el preamplificador. El preamplificador además reduce el ruido en el sistema de detección y acopla la impedancia entre el detector y los módulos subsecuentes.

Los pulsos de voltaje provenientes del preamplificador se envían al amplificador. El amplificador tiene dos funciones, la primera es aumentar la señal entrante. Esta ganancia de amplificación puede ser ajustada por el usuario y es posible gracias a que la amplitud del pulso entrante es proporcional a la energía, lo cual lleva a que los amplificadores espectroscópicos tengan una relación estrictamente lineal con los pulsos de entrada y salida.

La segunda tarea del amplificador es darle forma a la señal de una manera conveniente. Esta labor es importante porque los pulsos que vienen del preamplificador tienen una cola larga

τ y si un segundo pulso llega dentro del periodo τ , se pueden superponer y hacer que se aumente la amplitud.

Los pulsos de salida del amplificador se envían al Convertidor de Análogo a Digital (o ADC por sus siglas en inglés). Como su nombre lo indica, el ADC se encarga de convertir la señal procedente del amplificador en un número digital que corresponde a la altura del pico. El ADC toma pulsos de voltaje en un rango de 0 a 10 V y los divide en 8192 canales. Después, determina a qué canal corresponde la altura de cada pulso y utiliza un número como salida. Los números enviados por el ADC pasan por el Analizador Multicanal o MCA para hacer un histograma con los números [6]. El MCA puede hacer histogramas porque cada vez que el ADC envía un número, el MCA hace un conteo en una dirección de memoria de forma proporcional al número [6].

Finalmente, este histograma puede ser observado en un computador con la ayuda del software Genie2000 o guardado como archivo de texto [12, 34].

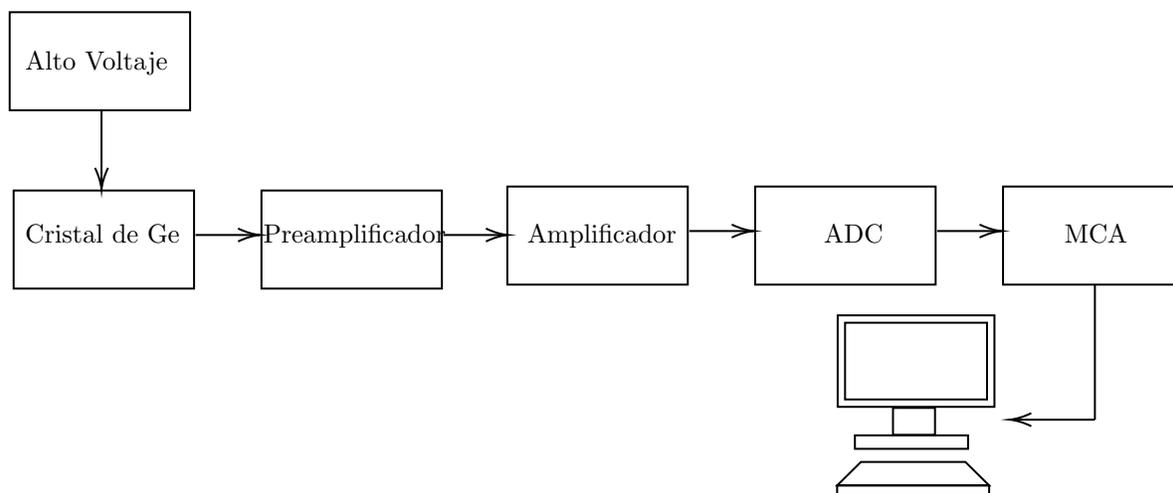


Figura 3-1.: Diagrama de bloques del montaje electrónico utilizado. Las flechas indican la dirección de la señal.

3.4. Montaje experimental

Una vez obtenidas las muestras se deben disponer en un lugar donde no se muevan y deben permanecer selladas por un mes siguiendo las indicaciones dadas por la Norma [33].

Las medidas de cada una de las muestras son efectuadas haciendo uso de un detector de rayos γ , HPGe, modelo CANBERRA GC4020 con una eficiencia relativa de 40 % y una resolución de 2.5 keV (FWHM) a 1332 keV. Tal como se mencionó en el Capítulo 1, en el ambiente del laboratorio en el cual se realizan las mediciones existe radiación natural proveniente de diversas fuentes. Así que antes de medir radiación proveniente de alguna de las cadenas naturales es necesario blindar el detector y la muestra de la radiación de fondo que no es de

interés. Por esta razón se utiliza un barril de plomo de 12 cm de grosor (ver Figura 3-2).

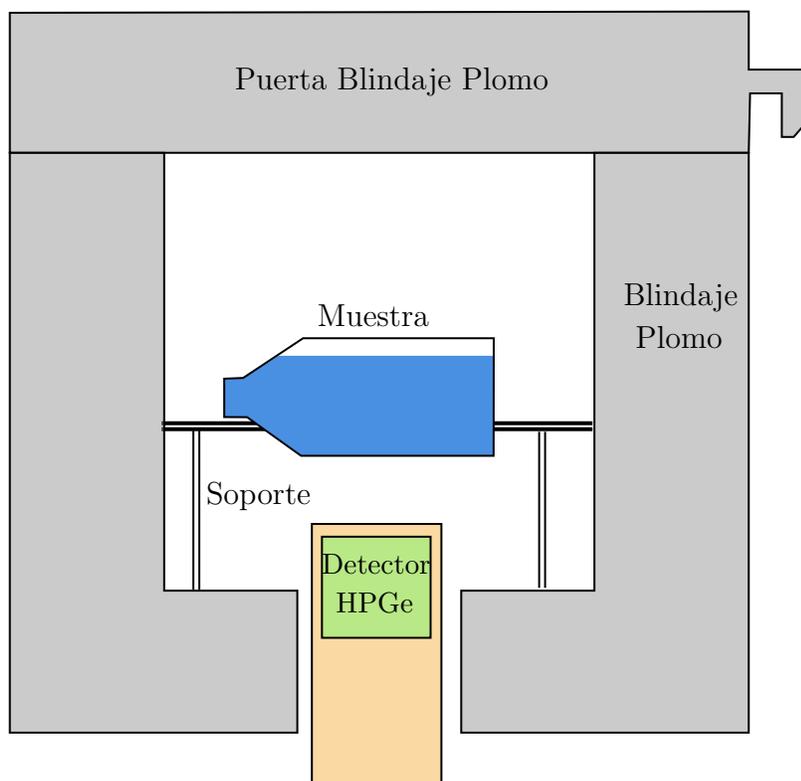


Figura 3-2.: Esquema del montaje experimental utilizado para determinar las concentraciones de NORM en muestras de agua.

El tiempo de medición de tanto los patrones de referencia como las muestras fue de 24 horas. Entre cada medida se tomaron espectros de 5 minutos de fuentes de calibración. Adicionalmente, se adquirieron mediciones del fondo por 24 horas. El uso del detector de HpGe, la calibración, la medición de las muestras y posterior determinación de concentración de actividad sigue la normativa dada por la ISO 10703 [35].

3.5. Software

Una vez tomados los espectros de las muestras, estos datos pasarán a ser analizados con el software CoRaNa (Concentración de Radiactividad Natural) basado en lenguaje Python. Este programa calcula la concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección para ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K .

CoRaNa se originó en el trabajo de [36] y para este trabajo se implementó, desarrolló y complementó para encontrar los valores de concentración de actividad teniendo en cuenta lo descrito en el Capítulo 2 y siguiendo los lineamientos de la ISO 10703 [35].

4. Resultados y Análisis

4.1. Espectros obtenidos

Los espectros resultados de la medición de la muestra B1 se muestra en la Figura 4-1, en las cuales se señalan algunos fotopicos y las correspondientes cadenas de decaimiento de las que son producidos.

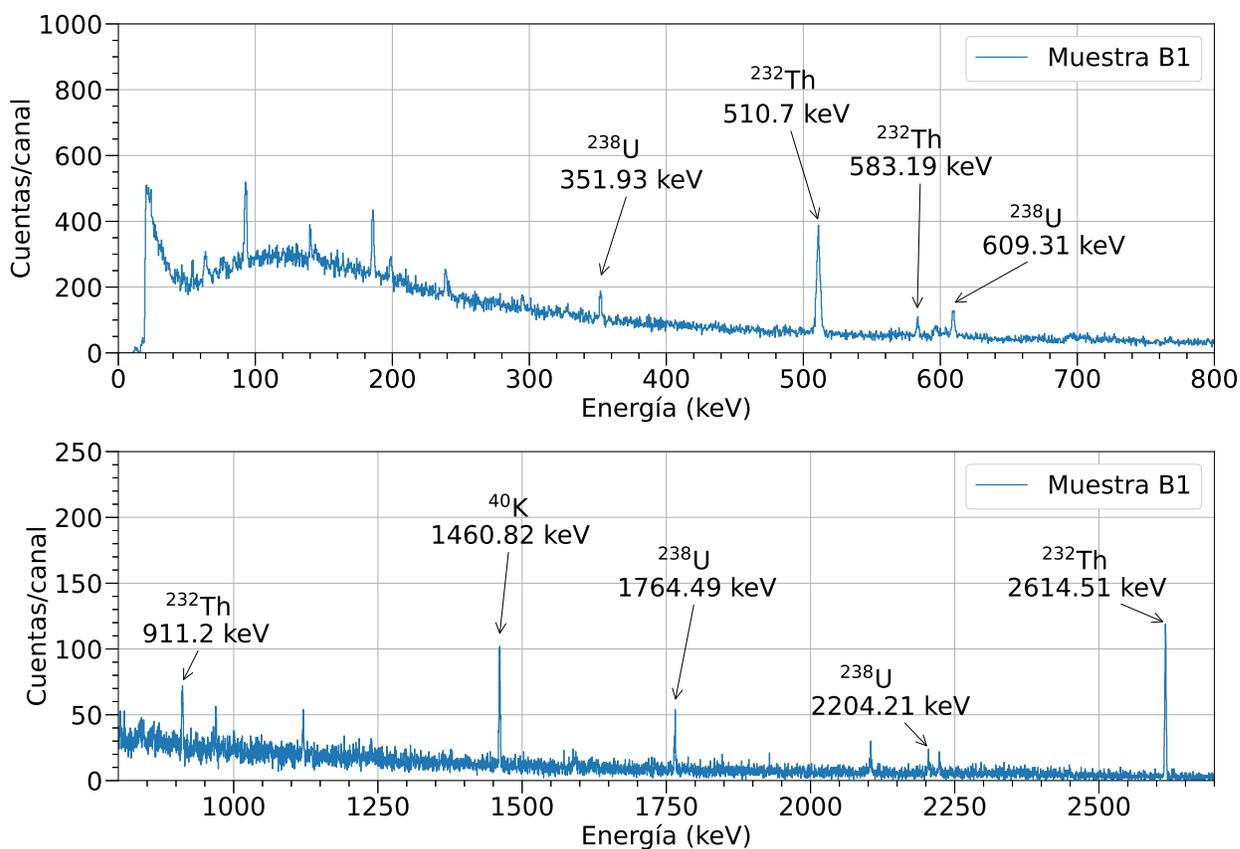


Figura 4-1.: Espectro para la muestra B1. En la Figura superior se señalan 2 fotopicos correspondientes a la cadena del ^{238}U y dos picos propios de la cadena del ^{232}Th . En la Figura inferior se señalan el pico característico del ^{40}K , dos fotopicos del decaimiento del ^{232}Th y tres fotopicos de la cadena del ^{238}U .

Para determinar la concentración de actividad de los radionúcleos ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K a partir

de los espectros obtenidos se tiene en cuenta las energías características de los emisores γ de cada cadena.

4.2. Concentración de actividad

Para encontrar la concentración de actividad se debe encontrar el número de cuentas neto N_n de cada fotopico. El N_n es el área neta del pico definida como

$$N_n = N_P - N_C, \quad (4-1)$$

donde N_P es el número de cuentas del área del pico y N_C el número de cuentas de fondo debajo del pico [22]. N_C es determinado por un ajuste lineal basado en las áreas de fondo izquierda (N_L) y derecha (N_R), tal como se observa en la Figura 4-2. El área del fondo a la izquierda del pico está determinada por el intervalo entre los canales k_1 y k_2 , el área del pico se encuentra entre k_2 y k_3 y el área del fondo a la derecha del pico comprenden las cuentas entre k_3 y k_4 .

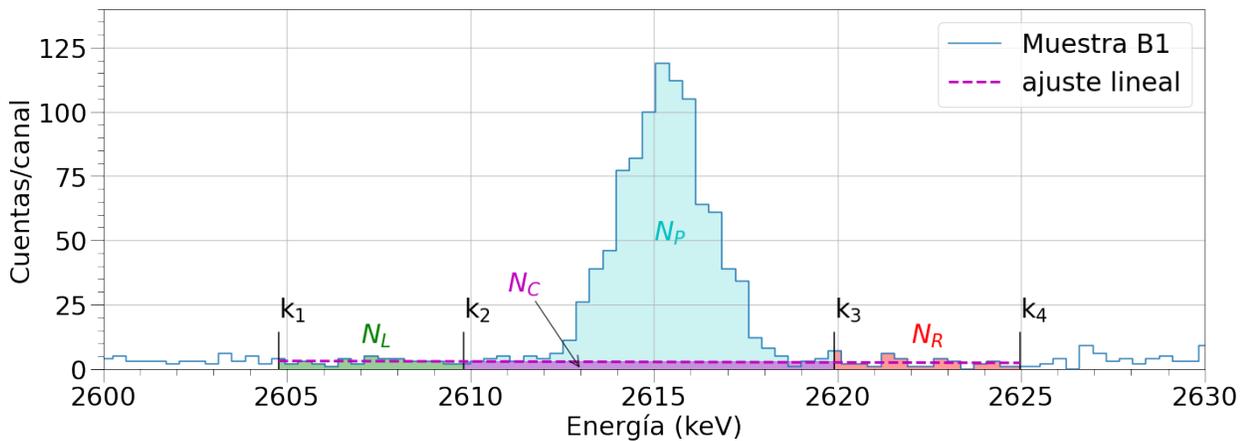


Figura 4-2.: Corte de un espectro de la muestra B1 con los intervalos seleccionados para el fondo y el área del pico. También se observa la recta interlineada que representa el ajuste lineal para determinar el área del fondo debajo del pico.

Para calcular la concentración de actividad se debe tener en cuenta el espectro de radiación de fondo. Cuando se mide NORM se puede asumir que debajo de cada pico observado en la muestra el mismo radionúcleo del ambiente causa un fotopico en la misma posición. Entonces se debe realizar el procedimiento delineado más arriba para encontrar el número de cuentas netas del fondo $N_n(\text{fondo})$ [37].

Así, se tendrá un conteo neto-neto dado por:

$$N_{nn} = N_n(\text{muestra}) - N_n(\text{fondo}). \quad (4-2)$$

N_{nm} es el valor de la intensidad I_{mi} por muestra m que se reemplazará en la Ecuación (2-16) para encontrar la concentración de actividad correspondiente a cada fotopico por cadena de decaimiento i .

En la medición de radioactividad es posible que la tasa de conteo de la muestra sea más baja que la tasa de conteo en el fondo. Esto lleva a un conteo $N_{nm,i}$ negativo el cual no es físicamente posible. De llegarse a cumplir esta situación, se descarta ese valor en el análisis de concentración de actividad ya que el número de cuentas del fondo no se diferencia del número de cuentas de la muestra.

Por ejemplo para la muestra B1, de los 10 fotopicos seleccionados de la cadena del ^{238}U (Anexo B), tan sólo se encontraron 4 valores de concentración de actividad con $N_{nm} \geq 0$ (Fig. 4-3). Con estos 4 valores se calcula un promedio ponderado para obtener la concentración de actividad del ^{238}U . De la misma forma se encuentra la concentración de actividad del ^{232}Th .

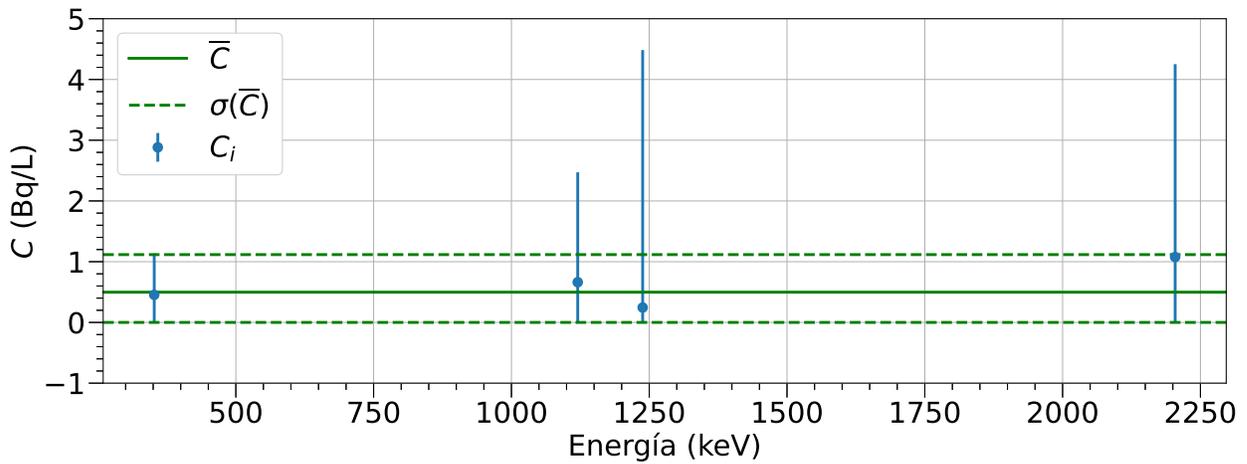


Figura 4-3.: Concentraciones de actividad C_i encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{238}U . \bar{C} es la concentración de actividad promedio ponderada y su incertidumbre $\sigma(\bar{C})$.

En la Figura 4-3 se observan concentraciones de actividad con incertidumbres asimétricas. Esta diferencia entre el error inferior y superior se debe a que la radioactividad no puede ser negativa. Por tanto, el máximo valor que puede tener la incertidumbre inferior es cero.

Así, se encuentran las concentraciones de actividad por radionúcleo para la muestra B1. Estos resultados se observan en la Tabla 4-1.

Muestra	C (Bq/L)		
	^{238}U	^{232}Th	^{40}K
B1	$0.6 \binom{6}{5}^1$	$8 \binom{13}{8}$	$0.2 \binom{30}{2}$

Tabla 4-1.: Concentraciones de actividad por radionúcleo para la muestra B1.

4.3. Límite de detección y umbral de decisión

Las concentraciones de actividad encontradas por radionúcleo deben ser comparadas con el umbral de decisión DL para poder afirmar si el radionúcleo está presente en la muestra o no. C , la concentración de actividad se debe confrontar con el límite de detección LLD correspondiente para comprobar si se detectó el radionúclido en la muestra o no.

Según la Ref. [37] los límites DL y LLD se pueden calcular con las expresiones

$$DL = \frac{k_{1-\alpha}^2}{2\Delta t} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4N_C}{k_{1-\alpha}^2} \left(1 + \frac{N_C}{N_L + N_R} + \frac{(\Delta t \sigma(r_b))^2}{N_C} \right)} \right), \quad (4-3)$$

$$LLD = \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{k_{1-\alpha}} \cdot DL, \quad (4-4)$$

donde $\sigma(r_b)$ es la desviación estándar de la tasa de conteo de fondo $r_b = N_n(\text{fondo})/\Delta t$. Los factores de confianza $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1.645$, correspondientes a probabilidades de primera y segunda clase son elegidos como $\alpha = \beta = 0.05$ tales que la probabilidades de decidir falsamente que la muestra es radioactiva (error de primera clase) y de decidir falsamente que la muestra no es radioactiva (error de segunda clase) son el 5%.

Las unidades de las ecuaciones (4-3) y (4-4) son cuentas/s, para convertir estos límites a unidades de Bq/L se deben multiplicar por un factor de peso $\omega = \frac{c^*_i}{\epsilon_i b_i V_m}$, donde para cada radionúcleo i c^*_i corresponde a la corrección por autoabsorción (ec. (2-14)), b_i la probabilidad de decaimiento y V_m el volumen de la muestra m .

Para la muestra B1, los DL y LLD para cada cadena de decaimiento se muestran en la Tabla 4-2. El siguiente paso es comparar estos límites con las concentraciones de actividad ponderadas por radionúclido.

Muestra	Umbral de decisión y límite de detección (Bq/L)					
	²³⁸ U		²³² Th		⁴⁰ K	
	DL	LLD	DL	LLD	DL	LLD
B1	1.48(6)	3.0(1)	27(7)	54(14)	5(1)	11(2)

Tabla 4-2.: Umbral de decisión y límites de detección de cada cadena de decaimiento para la muestra B1.

Reporte de resultados

Una vez obtenidos las concentraciones y sus DL y LLD correspondientes se deben reportar los resultados de acuerdo a 4 condiciones dadas en la Tabla 4-3 [20, 22]:

¹Error asimétrico con cota superior +6 e inferior -5

Reporte	Condición	Comentario
< DL	1. $C < DL$	El radionúcleo i no ha sido detectado
Detectado, <LLD	2. $DL < C < LLD$	Es posible que el radionúcleo i haya sido detectado pero no es cuantificable
$\hat{C}(k_{1-\alpha}\sigma(\hat{C}))$	3. $LLD < C < 4\sigma(C)$	Se reporta el estimado de C . El radionúcleo i se ha identificado y cuantificado pero C es cercano al LLD.
$C(k_{1-\alpha}\sigma(C))$	4. $4\sigma(C) < C$	El radionúcleo i ha sido identificado y cuantificado inequívocamente.

Tabla 4-3.: Estrategia de reporte de resultados dependiendo de las condiciones entre la medida y sus límites.

Utilizando la Tabla 4-3 el reporte de resultados para la muestra B1 está descrito en la Tabla 4-4. Para este caso, las tres cadenas de decaimiento cumplen con la primera condición $C < DL$ y por tanto no fue detectado ninguno de los radionúclidos en cuestión.

Muestra	^{238}U		^{232}Th		^{40}K	
	Reporte	Condición	Reporte	Condición	Reporte	Condición
B1	<DL	1.	<DL	1.	<DL	1.

Tabla 4-4.: Reporte de resultados para la muestra B1 utilizando los casos dados en la Tabla 4-3. No se ha encontrado ninguna de las tres cadenas de decaimiento.

4.4. Tasa de dosis absorbida

Basado en los niveles de radiación de NORM, la tasa de dosis absorbida, D en aire en nGy/h a 1 m sobre el agua se calcula utilizando la siguiente ecuación:

$$D = 0.429 \cdot C_U + 0.666 \cdot C_{Th} + 0.042 \cdot C_K, \quad (4-5)$$

donde los valores que acompañan a las concentraciones de cada radionúcleo corresponden a las constantes de dosis. La constante de dosis del ^{40}K es pequeña debido a que los efectos radiológicos tienen un periodo de tiempo corto después de haber sido consumido [38].

El coeficiente de dosis por ingestión por adultos de NORM es $d_U = 4.5 \times 10^{-8}$ Sv/Bq para ^{238}U , $d_{Th} = 2.3 \times 10^{-7}$ Sv/Bq para ^{232}Th y $d_K = 6.2 \times 10^{-9}$ Sv/Bq para ^{40}K según lo reportado por la Comisión en Protección Radiológica [39]. Con estos coeficientes, la dosis

anual efectiva en Sv/año de los radionúcleos consumidos en agua se calcula utilizando la siguiente fórmula [40]:

$$\text{Dosis efectiva Anual (Sv/año)} = \sum_i C_i d_i \times 730 \text{ L/año}, \quad (4-6)$$

donde i es el radionúcleo ^{238}U , ^{232}Th , ^{238}K y el factor 730 L/año corresponde al consumo de agua anual de una persona adulta [41].

4.5. Resultados

Concentración de actividad, DL y LLD

Los reportes sobre la concentración de los radionúcleos ^{238}U , ^{232}Th y ^{40}K se encuentran en las tablas 4-4, 4-5 y 4-6 para las 25 muestras. Es necesario identificar fotopicos en los espectros que no tengan interferencias de otras cadenas con el objetivo de encontrar los conteos correctos de los tres diferentes radioisótopos. Para esto se seleccionaron los fotopicos con energías referenciados en el Anexo B.

Cadena del ^{238}U

En la Figura 4-4 se presenta la concentración de actividad del ^{238}U , los límites de decisión y detección correspondientes y en la Tabla 4-5 el reporte de resultados. En las muestras B13 y B15 no se encontró una concentración de actividad diferente a la encontrada en el fondo de radiación y por eso no se encuentran reportadas en la Tabla 4-5.

Muestras	Condición	Reporte
B1-B4, B6, B10, B12, B14, B16, B17, B19, B21-B24	$C < \text{DL}$	<DL
B5, B7-B9, B11, B18, B20	$\text{DL} < C < \text{LLD}$	Detectado, <LLD
B25	$\text{LLD} < C < 4\sigma(C)$	193(126) Bq/L

Tabla 4-5.: Reporte de resultados de la Cadena del ^{238}U .

Usando la clasificación de la Tabla 4-3 es posible afirmar que:

- Para las muestras cuyo resultado es $< \text{DL}$, el radionúcleo ^{238}U no fue detectado en este análisis.
- Para las muestras B5, B7 a B9, B11, B18 y B20 se afirma que el ^{238}U posiblemente fue detectado pero no es cuantificable.

- Se observa la misma concentración de actividad para las muestras B18 y B20. En estas dos muestras a pesar que tienen diferente DL y LLD el reporte para las dos muestras es que el ^{238}U fue detectado pero su concentración es menor al límite de detección.
- Las muestras B10, B12 y B14 tienen concentraciones de actividad promedio ponderados similares. Para estas 3 muestras no fue detectado ^{238}U .
- Los promedios ponderados de las concentraciones de actividad para las muestras B1, B16 y B21 tienen incertidumbres asimétricas. Coincidentalmente, para estas 3 muestras $C < \text{DL}$.
- Además, ^{238}U se identificó y cuantificó sólo para la muestra B25, pero este resultado es cercano al LLD, lo cual se refleja en su gran incertidumbre.

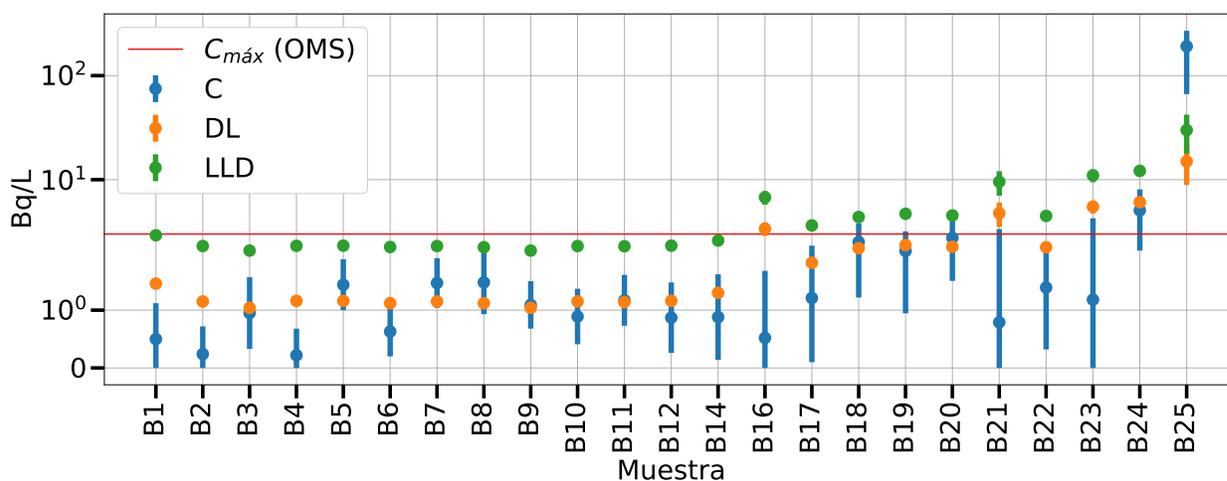


Figura 4-4.: Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{238}U encontrados en las muestras. La línea horizontal roja corresponde al nivel de referencia dado por la Organización Mundial de la Salud.

La dosis individual anual de fuentes de radiación de ocurrencia natural es de 0.1 mSv/año [42]. La Organización Mundial de la Salud [41] establece niveles de referencia de cada radionúcleo. Estos niveles representan la concentración de actividad por radionúcleo máxima para no superar la dosis de 0.1 mSv/año. El nivel de referencia para el ^{238}U es 3.0 Bq/L. En el presente trabajo sólo las muestras B24 y B25 exceden este valor. La concentración de actividad de la muestra B24 supera el parámetro de referencia pero se encuentra por debajo del límite de detección correspondiente. Para la muestra B25 sería valioso volver a obtener una nueva muestra del pozo correspondiente para corroborar la concentración de actividad del ^{238}U encontrada.

Cadena del ^{232}Th

Las concentraciones de actividad del ^{232}Th de 22 muestras se tienen en la Figura 4-5. Los espectros de las muestras B4, B14, y B17 no contienen un conteo neto-neto positivo y por lo tanto no son reportados. Para las demás muestras se tiene que la concentración de actividad está por debajo del límite de decisión (condición 1. de la Tabla 4-3) por tanto para ninguna muestra se encontró el radionúcleo ^{232}Th (véase la Tabla 4-6).

Muestras	Condición	Reporte
B1-B25	$C < DL$	<DL

Tabla 4-6.: Reporte de resultados de la Cadena del ^{232}Th .

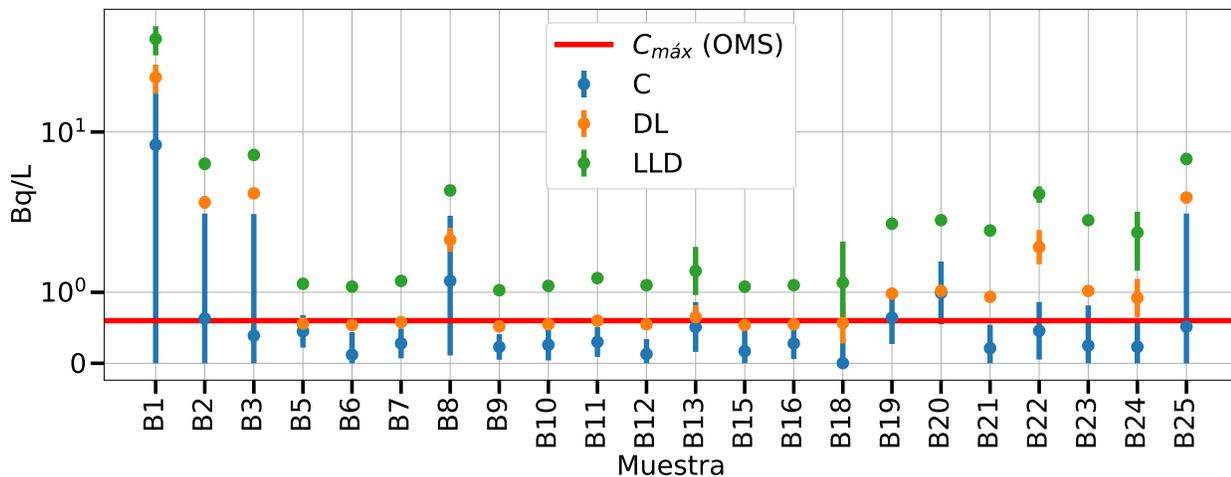


Figura 4-5.: Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{232}Th encontrados en las muestras. La línea roja corresponde a la referencia dada por la Organización Mundial de la Salud.

Con excepción de las muestras B1 todas las concentraciones de actividad de ^{232}Th son menores o iguales que 1 Bq/L. La concentración de actividad más alta corresponde a la muestra B1, mientras que la concentración más pequeña se encontró para la muestra B18 con una gran incertidumbre asimétrica (véase Figura 4-5).

Si las concentraciones de actividad de torio encontradas pudieran ser reportadas como identificadas y cuantificadas, tan sólo las muestras B1, B8 y B20 tendrían concentraciones de actividad superiores al valor promedio mundial de 0.6 Bq/L [41].

En la Tierra, el valor promedio de Th/U de 3-4 es generalmente aceptado dentro de la litosfera. Sin embargo, este número varía de acuerdo a la matriz que se esté midiendo y es altamente variable. Para muestras sólidas se reportan tasas de abundancia que van desde el

0.1 [43] en diferentes muestras de roca. Por ejemplo, en boninita se presentan valores de la riqueza de U frente a Th, siendo Th/U: 0.5-1.6 [44].

En agua marina se reporta una razón Th/U muy baja de 0.0036 [45]. Además, en agua subterránea se encontraron tasas de Th/U de 0.002, 0.008 y 0.014 en un estudio sobre el comportamiento de uranio y torio [46].

Por otro lado, es importante notar que las 25 muestras no provienen de pozos "naturales". Es decir, no se excavó en 25 puntos en el VMM y se extrajeron muestras de aguas inexploradas. Todos los pozos ya estaban alterados por el ser humano, estaban construidos y en funcionamiento con excepción del pozo de la muestra B25 el cual fue cerrado hace varios años. Entonces no es de esperarse que las actividad de las muestras cumplan con la relación Th/U \approx 4. Debido a la concentración de actividad encontrada de la muestra B25, este pozo se convierte en un punto de interés para futuras mediciones planeadas específicamente para este lugar.

Cadena del ^{40}K

En cuanto a las concentraciones de actividad del ^{40}K (véase Figura 4-6) se determinaron concentraciones en 11 de 25 muestras. Debido a que el conteo neto-neto N_{nn} es menor que cero para cada una de las 14 muestras restantes, no se reportan sus concentraciones en la Tabla 4-7.

De estas 11 muestras sólo 2 muestras (B4 y B20) tienen concentraciones de actividad superiores al DL pero inferiores al LLD. Para B4 y B20 C se reporta como menor al límite de detección y el radionúcleo ^{40}K como detectado (de acuerdo con la Tabla 4-3).

La menor concentración de actividad encontrada para el potasio es la de la muestra B11 y la concentración de actividad más alta se reporta para la muestra B20, con una diferencia entre las dos concentraciones de actividad de 14 Bq/L aproximadamente.

Muestras	Condición	Reporte
B1-B3, B9, B11, B14, B16, B19, B21	$C < \text{DL}$	<DL
B4, B20	$\text{DL} < C < \text{LLD}$	Detectado, <LLD

Tabla 4-7.: Reporte de resultados de la Cadena del ^{40}K .

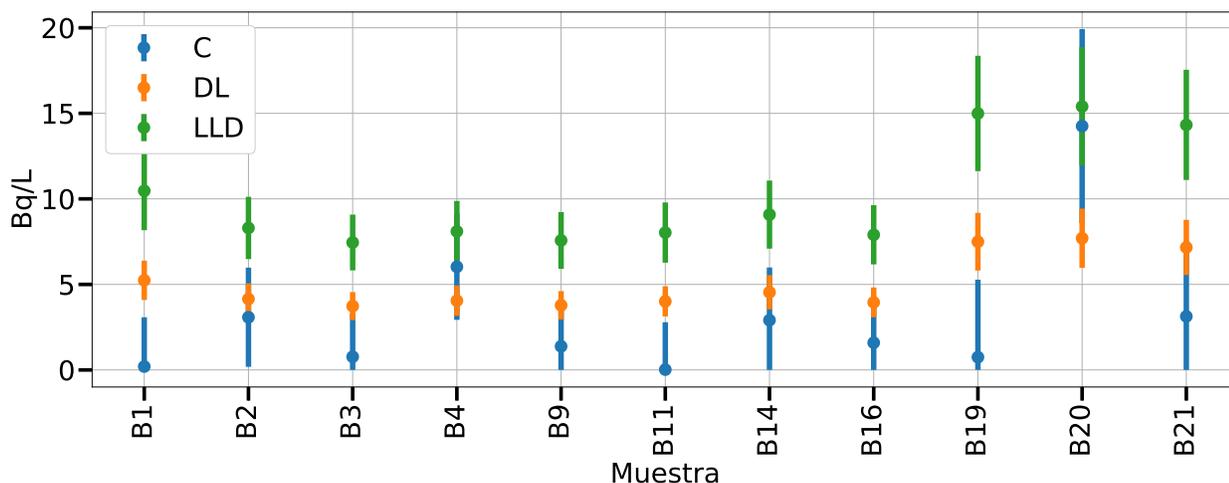


Figura 4-6.: Concentración de actividad, umbral de decisión y límite de detección de la cadena de ^{40}K encontrados en las muestras.

4.6. Dosis

Utilizando la Ecuación (4-5) se obtuvieron las tasas de dosis absorbidas utilizando la concentración de las muestras cuyos radionúcleos fueron reportados como detectados y/o identificados. En la Figura 4-7 se observa que las dosis absorbidas de radiación γ encontradas varían entre 0.027 nGy/h a 0.156 nGy/h con excepción de la muestra B25 cuya dosis absorbida es de dos órdenes superior a las demás tasas de dosis halladas.

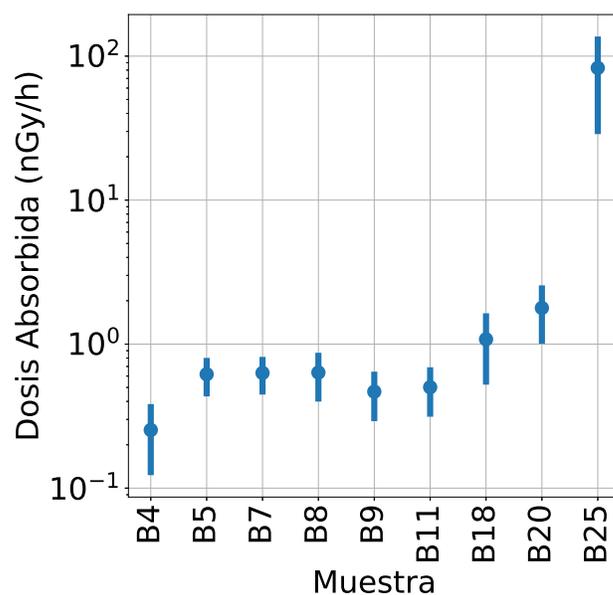


Figura 4-7.: Dosis Absorbida para 9 muestras de agua.

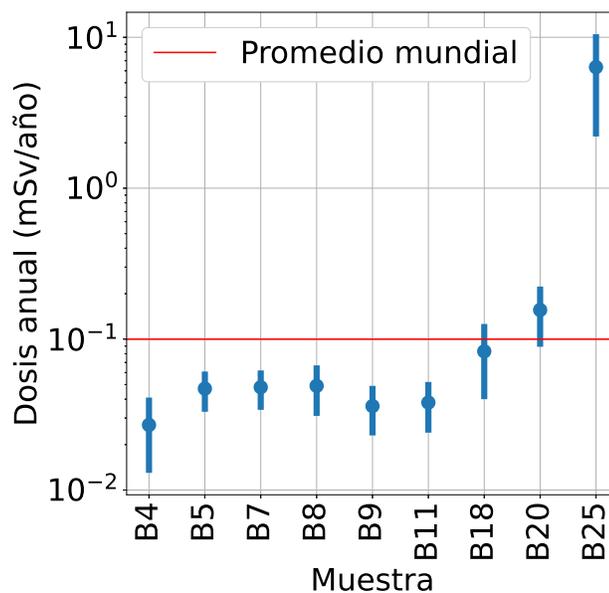


Figura 4-8.: Dosis Anual para 9 muestras de agua. La línea horizontal roja representa el promedio de dosis mundial.

En cuanto a la dosis efectiva anual (véase Figura 4-8) se tiene que la muestra B25 tiene una dosis aproximadamente 6 veces mayor que las demás dosis anuales encontradas. Las dosis de las muestras B20 y B25 son superiores al límite que el promedio mundial de 0.1 mSv/año [41]. Sin embargo, no es posible afirmar que la dosis anual de la muestra B20 sea veraz porque sus concentraciones de actividad de ^{238}U y ^{40}K son menores que el límite de detección.

5. Conclusiones y recomendaciones

5.1. Conclusiones

Las concentraciones de NORM de 25 muestras de agua recolectadas en la zona del Valle del Magdalena Medio fueron estudiadas. Los límites de decisión y detección y las dosis efectivas anuales también fueron estimadas. Los resultados revelaron que:

1. Para 7 muestras (B5, B7, B8, B9, B11, B18 y B20) el radionúcleo ^{238}U fue detectado y para la muestra B25 se identificó y se cuantificó su concentración de actividad.
2. En ninguna de las muestras se encontró ^{232}Th . Con excepción de las muestras B4, B14 y B17 (cuyos conteos netos son menores que cero), la concentración de actividad se reportó como menor al límite de decisión correspondiente.
3. Tan sólo para las muestras B4 y B20 se detectó ^{40}K . La concentración de actividad de estas dos muestras no supera el límite de detección individual.
4. La muestra B25 reporta una concentración de actividad del ^{238}U superior al nivel de referencia dado por la Organización mundial de la Salud (3 Bq/L). Si bien para la muestra B25 no se detectó ^{232}Th o ^{40}K , la dosis anual supera la dosis establecida por el promedio mundial de 1 mSv/año.
5. Con excepción de la muestra B25 es posible afirmar que las concentraciones de material radiactivo están dentro de los rangos mundiales para agua potable según la Organización Mundial de la Salud y por tanto no presentan problemas de salud a la población.

5.2. Recomendaciones

Con el objetivo de tener un seguimiento sobre el contenido radiactivo de las 25 diferentes ubicaciones de agua se sugiere continuar con el estudio de concentración de actividad. En especial sería de interés científico y posiblemente social volver a realizar un muestreo en la ubicación de la muestra B25 que permitiría fortalecer los resultados aquí reportados.

A. Anexo A: Tablas de muestreo

En la tabla **A-1** se observa en detalle las fechas de muestreo, reenvase y medición de las 25 muestras de este estudio. Las muestras necesitaron ser reenvasadas ya que los envases originales no tenían una geometría similar a las botellas de los materiales de referencia. Durante el cambio de botella las muestras cambiaron de etiqueta.

Nombre muestra	Fecha muestreo	Fecha de reenvasado	Hora reenvase	Etiqueta GFNUN	Fecha medición
A102	29/10/2020	10/02/2021	11:14	B5	25/06/2021
A106	30/10/2020	10/02/2021	11:54	B14	3/08/2021
A108	31/10/2020	6/04/2021	11:35	B21	9/09/2021
A201	1/11/2020	10/02/2021	11:01	B2	20/06/2021
A202	2/11/2020	10/02/2021	10:56	B1	19/06/2021
A203	3/11/2020	6/04/2021	11:26	B19	7/09/2021
A204	4/11/2020	6/04/2021	11:51	B25	15/09/2021
A205	5/11/2020	10/02/2021	11:07	B3	22/06/2021
A206	6/11/2020	6/04/2021	11:44	B23	13/09/2021
A207	7/11/2020	6/04/2021	11:39	B22	10/09/2021
A302	8/11/2020	6/04/2021	11:20	B17	4/09/2021
A303	9/11/2020	10/02/2021	11:30	B9	28/07/2021
A305	10/11/2020	6/04/2021	11:48	B24	14/09/2021
A306	11/11/2020	6/04/2021	11:29	B20	8/09/2021
A307	12/11/2020	10/02/2021	11:11	B4	24/06/2021
ABA-4	13/11/2020	10/02/2021	11:34	B10	29/07/2021
Chiquita	14/11/2020	10/02/2021	11:58	B15	4/08/2021
ECP-2	15/11/2020	10/02/2021	11:23	B7	27/06/2021
Llanito 1		10/02/2021	11:39	B11	30/07/2021
PC-09 - casabe	10/11/2020	6/04/2021	11:16	B16	6/08/2021
PC-11	10/11/2020	10/02/2021	11:49	B13	2/08/2021
PC-8R	10/11/2020	10/02/2021	11:19	B6	26/06/2021
PCM-1	10/11/2020	6/04/2021	11:23	B18	6/09/2021
PCM-2	10/11/2020	10/02/2021	11:43	B12	31/07/2021
Santos-6	11/11/2020	10/02/2021	11:26	B8	29/06/2021

Tabla A-1.: Fechas de muestreo, reenvase y medición de las 25 muestras de agua. También se exhiben las etiquetas correspondientes.

B. Anexo: Energías de las cadenas para el estudio de concentración de NORM

Las cadenas de decaimiento de los NORM presentan fotopicos con energías cercanas entre sí. Entonces es necesario reducir de la lista de total de rayos γ a fotopicos de interés que no tengan interferencia entre sí. Así las energías seleccionadas para cada radionúcleo, se observan en la Tabla B-1.

Radionúcleo	Energía (keV)
^{238}U	269.46
	295.22
	351.93
	609.31
	766.37
	1001.03
	1120.29
	1238.11
	1764.49
	2204.21
^{232}Th	300.09
	338.32
	583.19
	860.56
	911.2
	964.77
	968.97
	1620.74
2614.51	
^{40}K	1460.82

Tabla B-1.: Fotopicos empleados para determinar concentración y actividad de NORM en muestras de agua.

C. Anexo: Mapa radiológico

En la Figura C-1 se exhibe la ubicación de las muestras reportadas en la Tabla 4-5.

La ubicación de las muestras y su concentración de actividad de ^{232}Th (Tabla 4-6) se observa en la Figura C-2.

La Figura C-3 muestra la ubicación de las muestras cuya concentración de actividad se reporta en la Tabla 4-7.

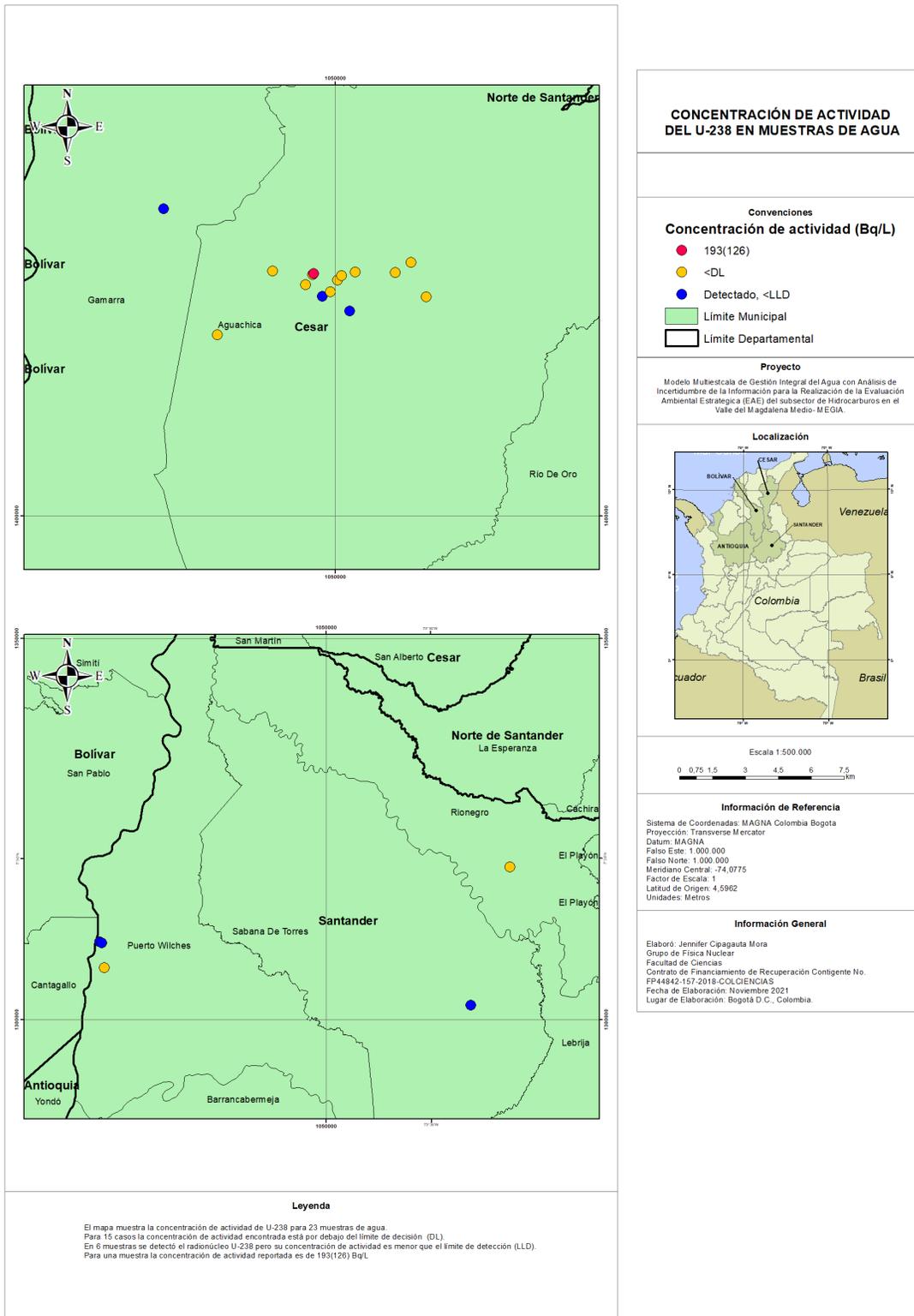


Figura C-1.: Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{238}U .

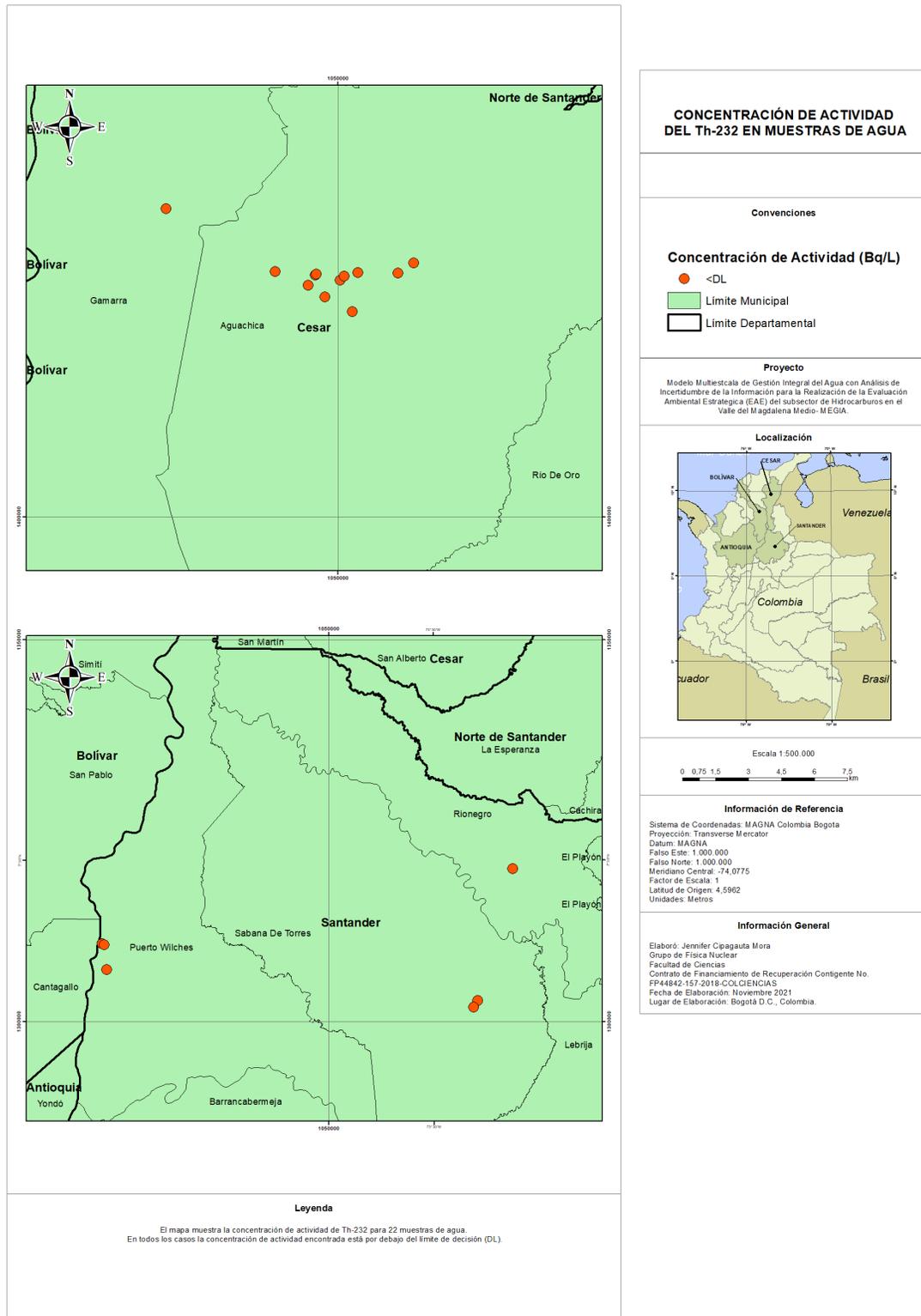


Figura C-2.: Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{232}Th .

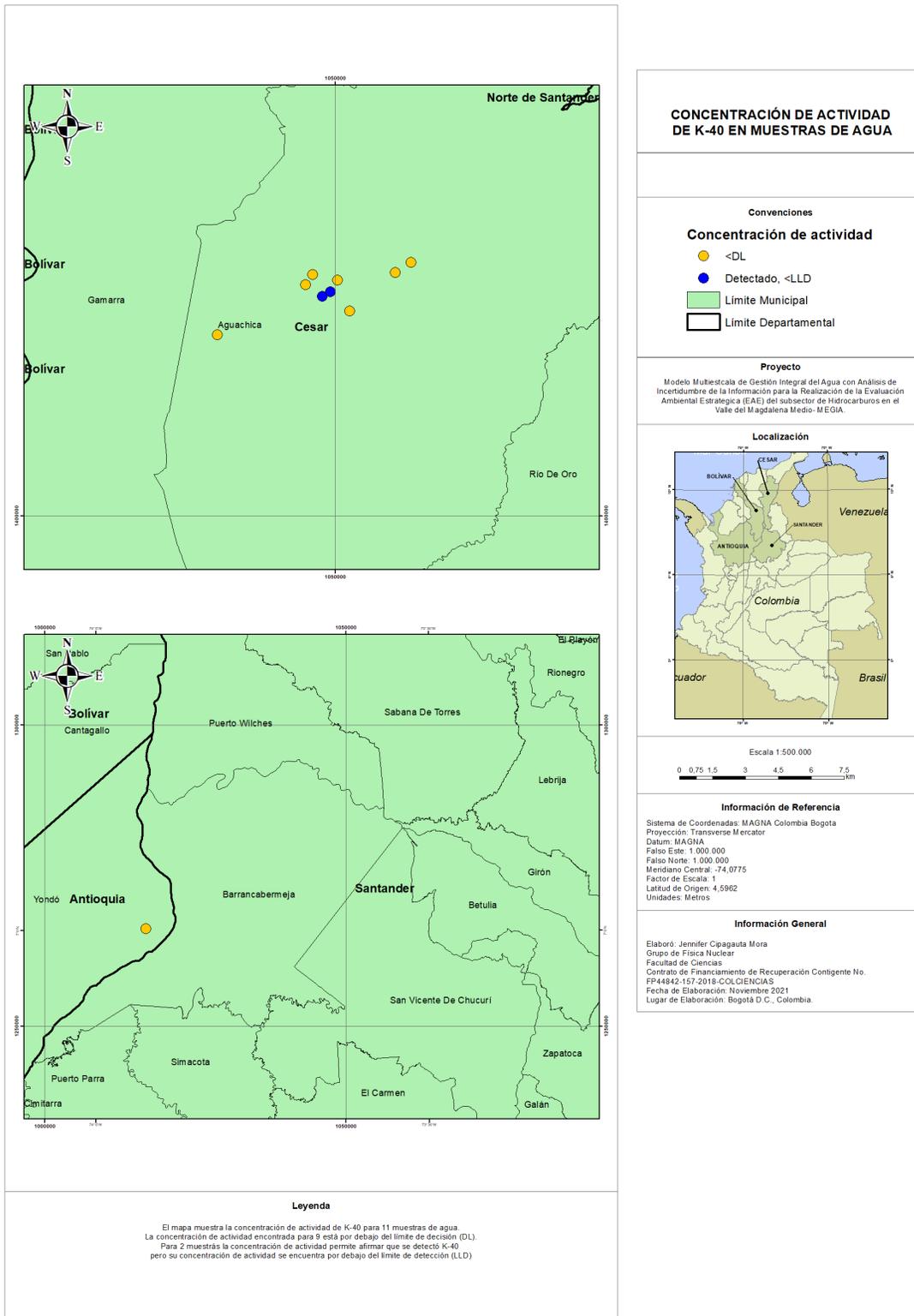


Figura C-3.: Mapa con la ubicación de las muestras con concentraciones de actividad C encontradas respectivas a la cadena de decaimiento del ^{40}K .

Bibliografía

- [1] International Atomic Energy Agency. Preparation and certification of IAEA gamma-ray spectrometry reference materials RGU-1, RGTh-U and RGK-1, 1987.
- [2] Sreenath Gupta. Natural Gas: Extraction to End Use. BoD–Books on Demand, 2012.
- [3] International Atomic Energy Agency. Extent of environmental contamination by naturally occurring radioactive material (norm) and technological options for mitigation. Technical report, International Atomic Energy Agency, 2003.
- [4] K. P. Smith. An overview of naturally occurring radioactive materials (norm) in the petroleum industry. Technical report, Argonne National Lab., IL (United States)., 1992.
- [5] M Arenas et al. Proyecto MEGIA: Estudio de la Demanda del Agua en el Sector Norte del Valle Medio del Magdalena. Producto No. 6. Technical report, Universidad Nacional de Colombia, 2020.
- [6] William R Leo. Techniques for nuclear and particle physics experiments: a how-to approach. Springer Science & Business Media, 2012.
- [7] Gordon Gilmore. Practical gamma-ray spectroscopy. John Wiley & Sons, 2011.
- [8] Michael E Kitto, Pravin P Parekh, Miguel A Torres, and Dominik Schneider. Radionuclide and chemical concentrations in mineral waters at saratoga springs, new york. Journal of environmental radioactivity, 80(3):327–339, 2005.
- [9] Aydan Altikulac, S Turhan, and Hasan Gumucs. The natural and artificial radionuclides in drinking water samples and consequent population doses. Journal of radiation research and applied sciences, 8(4):578–582, 2015.
- [10] P Andrew Karam. The high background radiation area in ramsar iran: Geology, norm, biology, Int, and possible regulatory fun. Technical report, University of Rochester, Rochester, NY, USA (US), 2002.
- [11] K. Buchtela. Radiochemical methods — gamma-ray spectrometry. In Paul Worsfold, Alan Townshend, and Colin Poole, editors, Encyclopedia of Analytical Science (Second Edition), pages 72–79. Elsevier, Oxford, second edition, 2005.

-
- [12] Fernando Cristancho. Instrumentación nuclear-Notas de clase. Universidad Nacional de Colombia. Bogotá, 2021.
- [13] J Gómez-Muñoz, ML Cortés, and F Cristancho. Gamma backscattering in soil layers with different thickness and water content. In AIP Conference Proceedings, volume 1423, pages 418–421. AIP, 2012.
- [14] Nouredine Zettili. Quantum mechanics: concepts and applications. American Association of Physics Teachers, 2003.
- [15] Ernest Rutherford and Frederick Soddy. Radioactive change. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 5(29):576–591, 1903.
- [16] International Atomic Energy Agency. Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data, 2003.
- [17] E Mingarro. The radioactive equilibrium and determination methods for ratio e Ra/U; Desequilibrio Radiactivos-1. Método β - γ . Determinación de la razón eRa/U. Valoración del contenido en U₃O₈. 1966.
- [18] Glenn F Knoll. Radiation detection and measurement. John Wiley & Sons, 2010.
- [19] National Institute of Standards and Technology NIST. Xcom nist.element compound mixture selection, 2019.
- [20] International Standard, Determination of characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation. Standard, International Organization for Standardization, Geneva, CH, 2010.
- [21] Gordon Gilmore. Practical gamma-ray spectroscopy. John Wiley & Sons, 2011.
- [22] Determination and interpretation of characteristic limits for radioactivity measurements. Standard, International Organization for Standardization, Vienna, 2017.
- [23] Max S Matheson and Bernard Smaller. Paramagnetic species in gamma-irradiated ice. The Journal of Chemical Physics, 23(3):521–528, 1955.
- [24] A Guidebook. Measurement of radionuclides in food and the environment. Vienna: International Atomic Energy Agency. Retrieved from <https://www.iaea.org/publications/1398/measurement-of-radionuclides-in-food-and-the-environment>, 1989.
- [25] Mohand Hamlat, S Djeflal, and Hocine Kadi. Assessment of radiation exposures from naturally occurring radioactive materials in the oil and gas industry. Applied radiation and isotopes : including data, instrumentation and methods for use in agriculture, industry and medicine, 55:141–6, 08 2001.

- [26] S Shawky, H Amer, AA Nada, TM Abd El-Maksoud, and NM Ibrahiem. Characteristics of norm in the oil industry from eastern and western deserts of egypt. Applied Radiation and Isotopes, 55(1):135–139, 2001.
- [27] M. Palomo, A. Peñalver, C. Aguilar, and F. Borrull. Presence of naturally occurring radioactive materials in sludge samples from several spanish water treatment plants. Journal of Hazardous Materials, 181(1):716–721, 2010.
- [28] Augustine Faanu, James H Ephraim, and Emmanuel O Darko. Assessment of public exposure to naturally occurring radioactive materials from mining and mineral processing activities of tarkwa goldmine in ghana. Environmental monitoring and assessment, 180(1):15–29, 2011.
- [29] Taavi Vaasma, Madis Kiisk, Maria Leier, Siiri Suursoo, Alar Jantsikene, and Kaisa Putk. Norm-related industrial activities in estonia—establishing national norm inventory. Journal of Sustainable Mining, 18(2):86–93, 2019.
- [30] Safia Hamidalddin et al. Measurement of natural radiation, calculation of radiation doses of agricultural environmental samples in the western region-kingdom of saudi arabia. Journal of Radiation Research and Applied Sciences, 15(1):69–74, 2022.
- [31] T Gäfvert, I Færevik, and AL Rudjord. Assessment of the discharge of norm to the north sea from produced water by the norwegian oil and gas industry. Radioactivity in the Environment, 8:193–205, 2006.
- [32] Water quality — Sampling — Part 11: Guidance on sampling of groundwaters. Standard, International Organization for Standardization, Geneva, CH, 2003.
- [33] Water quality — Sampling — Part 3: Guidance on the preservation and handling of water samples. Standard, International Organization for Standardization, Geneva, CH, 2003.
- [34] M. Cortes. Energy and time characterization of the response of the soil to γ -rays. Tesis de maestría, Universidad Nacional de colombia, 2010.
- [35] Water quality — Determination of the activity concentration of radionuclides — Method by high resolution gamma-ray spectrometry. Standard, International Organization for Standardization, Geneva, CH, 2017.
- [36] Ochoa P and Cristancho F. Corrección por eficiencia y optimización de la posición de muestras para medir concentraciones de NORM usando un detector de HPGe. Trabajo de grado, Departamento de Física - Universidad Nacional de Colombia, Bogotá, 2017.

- [37] H Friedmann, C Nuccetelli, B Michalik, M Anagnostakis, G Xhixha, K Kovler, G de With, C Gascó, W Schroeyers, R Trevisi, et al. Measurement of norm. In Naturally Occurring Radioactive Materials in Construction, pages 61–133. Elsevier, 2017.
- [38] AR Awudu, EO Darko, C Schandorf, EK Hayford, MK Abekoe, and PK Ofori-Danson. Determination of activity concentration levels of ^{238}U , ^{232}Th , and ^{40}K in drinking water in a gold mine in Ghana. Health physics, 99(2):S149–S153, 2010.
- [39] J Vennart. The 1990 recommendations of the international commission on radiological protection. Journal of Radiological Protection, 11(3):199, 1991.
- [40] Volume I UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, et al. Report to the general assembly. Anex B: Exposures from Natural Radiation Sources, New York, 2000.
- [41] World Health Organization et al. Guidelines for drinking-water quality 4th ed. Geneva, Switzerland: World Health Organization; 2011, 2016.
- [42] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation et al. Sources and effects of ionizing radiation, UNSCEAR 2008. Report to the General Assembly with Scientific Annexes, 1, 2008.
- [43] UK Pandey and P Krishnamurthy. Uranium and thorium abundances in some graphite-bearing Precambrian rocks of India and implications. Current Science (Bangalore), 68(8):826–828, 1995.
- [44] C Manikyamba, Nuru Said, M Santosh, Abhishek Saha, Sohini Ganguly, and KSV Subramanyam. U enrichment and Th/U fractionation in Archean boninites: Implications for paleo-ocean oxygenation and U cycling at juvenile subduction zones. Journal of Asian Earth Sciences, 157:187–197, 2018.
- [45] Claude Degueldre and Malcolm J Joyce. Evidence and uncertainty for uranium and thorium abundance: A review. Progress in Nuclear Energy, 124:103299, 2020.
- [46] Y Kopylova, N Guseva, A Shestakova, A Khvaschevskaya, and K Arakchaa. Uranium and thorium behavior in groundwater of the natural spa area “Choygan mineral water” (East Tuva). In IOP conference series: Earth and environmental science, volume 27, page 012034. IOP Publishing, 2015.