

Determinación del índice de actividad beta resto en aguas

J.A. SUÁREZ-NAVARRO (*), L. PUJOL (**), M.A. DE PABLO (***)

RESUMEN El índice de actividad beta total informa sobre la presencia de emisores beta en una muestra suponiendo que todas las emisiones beta tienen su origen en estroncio-90 en equilibrio con itrio-90. El método clásico de preparación consiste en la evaporación a sequedad de un determinado volumen de muestra en plancheta de acero inoxidable, recogiendo así todos los emisores beta no volátiles. Uno de estos emisores beta es el potasio-40, cuya fuente de procedencia es el potasio natural en una proporción conocida. Si restamos la contribución beta del potasio-40 al índice de actividad beta total obtenemos el índice de actividad beta resto, que da una información más real de la posible peligrosidad radiactiva de una muestra. Para poder restar esta contribución, es necesario referir la actividad beta del potasio-40 a estroncio-90. La actividad beta debida al potasio-40 se calcula transformando las desintegraciones del potasio-40, determinadas a partir de la concentración de potasio natural en la muestra, en actividad beta. Para realizar esta transformación es necesario conocer: i) la concentración de potasio en la muestra, ii) el factor de autoabsorción del estroncio-90, iii) el factor de autoabsorción del potasio-40 y iv) las eficiencias de recuento del estroncio-90 y potasio-40. En este artículo se recogen los estudios realizados en los laboratorios del CEDEX para la determinación del índice de actividad beta resto y su aplicación a distintos tipos de aguas, tanto continentales como marinas.

DETERMINATION OF THE RESIDUAL BETA ACTIVITY IN WATERS

ABSTRACT Gross beta activity informs about the presence of beta emitters in sample supposed that all beta emissions have their origin in strontium-90. Classic method consists in the evaporation to dryness of a sample volume on a planchet, therefore all non-volatile beta emitters are collected. One of these beta emitters is the potassium-40, which is presented in the natural potassium in a known ratio. Residual beta activity is calculated by subtracting the contribution of potassium-40 from gross beta activity. Residual beta activity shows a more real information about the possible radioactivity danger of the sample. It is necessary to refer the beta activity due to potassium-40 to strontium-90 to subtract this contribution. The beta activity due to potassium-40 is calculated by transforming the potassium concentration in beta activity. In order to do this transformation is necessary to know: i) gross beta activity, ii) potassium concentration, iii) efficiency and self-absorption of potassium-40 and iv) efficiency and self-absorption of strontium-90. In this paper we show the studies carried out in CEDEX laboratory to improve the residual beta activity and its application to all kind of waters.

Palabras clave: Índice de actividad beta resto; Vigilancia radiológica; Calidad del agua.

INTRODUCCIÓN

Los parámetros radiológicos que se determinan habitualmente en los estudios de Vigilancia Radiológica Ambiental del medio acuático son: índice de actividad alfa total, índice de actividad beta total, índice de actividad beta resto, actividad de tritio y espectrometría gamma.

El índice de actividad beta total informa sobre la presencia de emisores beta en la muestra suponiendo que todas las emisiones beta tienen su origen en estroncio-90 en

equilibrio con itrio-90. El método comúnmente empleado consiste en la evaporación a sequedad de un volumen de muestra en plancheta de acero inoxidable, recogiendo así todos los emisores beta no volátiles. Uno de estos emisores beta es el potasio-40, cuya fuente de procedencia es el potasio natural presente en una proporción conocida. Si se resta la contribución del potasio-40 al índice de actividad beta total obtenemos el índice de actividad beta resto, que da una información más real de la posible peligrosidad radiactiva de la muestra.

El índice de actividad beta resto puede ser determinado de diferentes formas. El método utilizado en el CEDEX consiste en determinar la concentración de potasio, transformar dicha concentración en desintegraciones beta debidas a potasio-40 y referirla a estroncio-90/itrio-90 para poder restarla del índice de actividad beta total. Para realizar dicha transformación es necesario conocer: i) índice de actividad beta total, ii) concentración de potasio, iii) eficiencia de re-

(*) Licenciado en Ciencias Químicas. Departamento de Impacto Ambiental de la Energía (CIEMAT). Ministerio de Ciencia y Tecnología.

(**) Doctor en Física. Departamento de Impacto Ambiental de la Energía (CIEMAT). Ministerio de Ciencia y Tecnología.

(***) Licenciada en Ciencias Químicas. Centro de Estudios de Técnicas Aplicadas (CEDEX). Ministerio de Fomento.

cuento y factor de autoabsorción del potasio-40; iv) eficiencia de recuento y factor de autoabsorción del estroncio-90.

En este artículo se recogen los estudios realizados en los laboratorios del CEDEX para la optimización de cada uno de los parámetros influyentes en la determinación del índice de actividad beta resto y su aplicación a distintos tipos de aguas, tanto continentales como marinas.

EXPERIMENTAL

El índice de actividad beta resto se determina mediante la siguiente expresión:

$$A(\beta_r) = A(\beta_t) - [K] \cdot 0.02769 \cdot \frac{Ef_{potasio-40} \cdot fa_{potasio-40}}{Ef_{estroncio-90/itrio-90} \cdot fa_{estroncio-90/itrio-90}} \quad (1)$$

donde

- $A(\beta_r)$ es el índice de actividad beta resto, en $Bq \cdot l^{-1}$;
- $A(\beta_t)$ es el índice de actividad beta total, en $Bq \cdot l^{-1}$;
- $[K]$ es la concentración de potasio, en $mg \cdot l^{-1}$;
- 0.02769 es el factor que convierte los $mg \cdot l^{-1}$ de potasio a desintegraciones, en $Bq \cdot l^{-1}$;
- $Ef_{potasio-40}$ es la eficiencia de recuento del potasio-40, en tanto por 1;
- $fa_{potasio-40}$ es el factor de autoabsorción del potasio-40;
- $Ef_{estroncio-90/itrio-90}$ es la eficiencia de recuento del estroncio-90/itrio-90, en tanto por 1;
- $fa_{estroncio-90/itrio-90}$ es el factor de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90.

A continuación se presentan los estudios realizados para la mejora de cada uno de los factores de la expresión 1.

A) ÍNDICE DE ACTIVIDAD BETA TOTAL

El índice de actividad beta total es determinado mediante un contador proporcional de flujo de gas Berthold LB770-2 de 10 detectores. El voltaje optimizado de medida fue de 1625 V (1). Una de las mejoras introducidas en la medida del índice de actividad beta total fue la de cambiar el modo de medida de las muestras de modo secuencial a simultáneo, ya que permite reducir el tiempo de recuento a la mitad. En el modo de medida simultáneo es necesario suprimir las cuentas alfa que se miden en el voltaje beta mediante la determinación del *spillover* (2).

B) DETERMINACIÓN DE LA CONCENTRACIÓN DE POTASIO

La concentración de potasio es determinada con la técnica analítica de emisión atómica de llama. Para su correcta determinación, es necesario la adición de cloruro de cesio en una concentración conocida como supresor de ionización para eliminar las posibles interferencias producidas por el sodio sobre el potasio. Estas interferencias producen un incremento de la señal del potasio (3).

C) EFICIENCIA DE RECuento Y FACTOR DE AUTOABSORCIÓN DEL POTASIO-40

Para la determinación de la eficiencia de recuento y del factor de autoabsorción del potasio-40 se ha preparado una curva de autoabsorción con cloruro potásico. El rango de pesos de esta curva fue de 0 a 500 mg que cubre el rango de pesos de los residuos secos de las muestras preparadas en el laboratorio del CEDEX. Cada punto de la curva fue realizado por quintuplicado. Las curvas fueron ajustadas mediante la expresión:

$$y = a \cdot \frac{1 - e^{-bx}}{bx} \quad (2)$$

donde

- a es un coeficiente de ajuste que permite determinar la eficiencia de recuento del potasio-40, en tanto por 1;
- b es un coeficiente de ajuste que permite determinar el coeficiente de absorción del potasio-40.

El factor de autoabsorción para el potasio-40 también fue determinado a partir del coeficiente de absorción utilizando filtros de papel (4).

D) EFICIENCIA DE RECuento Y FACTOR DE AUTOABSORCIÓN DEL ESTRONCIO-90/ITRIO-90

La eficiencia de recuento del estroncio-90/itrio-90 se determinó con patrones de espesor cero. Es importante que los patrones de estroncio-90/itrio-90 cubran toda la superficie de la plancheta para que la geometría sea igual que la de las muestras (5). Para la determinación del factor de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90 se preparó una curva de autoabsorción utilizando como soporte el nitrato sódico calcinado cuyo rango de pesos fue de 0-500 mg como en el caso del potasio-40 (6). Cada punto de la curva fue realizado por triplificado. El algoritmo de ajuste utilizado fue:

$$f_a = \frac{1 - e^{-ax}}{a \cdot x} \quad (3)$$

donde

- f_a es el factor de autoabsorción;
- a es el coeficiente de ajuste de la curva que permite determinar el coeficiente de absorción, en mg^{-1} ;
- x es el peso del residuo final, en mg.

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la tabla 1 se presentan los resultados de la eficiencia y factor de autoabsorción del potasio-40 para todos los detectores del contador proporcional. El rango de eficiencias de recuento del potasio-40 fue: 46.3 – 48.8 %. El coeficiente de absorción medio del potasio-40 fue: $58 \cdot 10^5 mg^{-1}$. En la figura 1 se muestra la curva de autoabsorción del potasio-40 para uno de los detectores.

El coeficiente de absorción del potasio-40 determinado a partir de la curva de autoabsorción y el determinado utilizando absorbentes de papel, fueron muy similares, siendo $10.7 \pm 1.0 cm^2 \cdot g^{-1}$ y $9.61 \pm 0.08 cm^2 \cdot g^{-1}$ respectivamente. Esto implica que se puede utilizar cualquiera de los dos métodos para el cálculo del factor de autoabsorción del potasio-40 (7).

Detector	Eficiencia (%)	Coficiente de absorción ($\cdot 10^5 mg^{-1}$)	Coficiente de determinación
11	47.7 ± 0.4	60 ± 6	0.980
12	47.7 ± 0.4	58 ± 5	0.973
13	47.5 ± 0.4	50 ± 5	0.885
14	46.9 ± 0.4	52 ± 5	0.828
15	46.3 ± 0.4	52 ± 6	0.933
16	48.8 ± 0.4	73 ± 6	0.981
17	48.8 ± 0.4	64 ± 6	0.939
18	48.7 ± 0.4	61 ± 5	0.926
19	48.1 ± 0.4	57 ± 5	0.926
20	47.4 ± 0.4	58 ± 6	0.966
Valor medio	47.8 ± 0.5	58 ± 3	

La incertidumbre está expresada para $K = 1$.

TABLA 1. Eficiencia, coeficiente de absorción y coeficiente de determinación de la curva autoabsorción para el potasio-40.

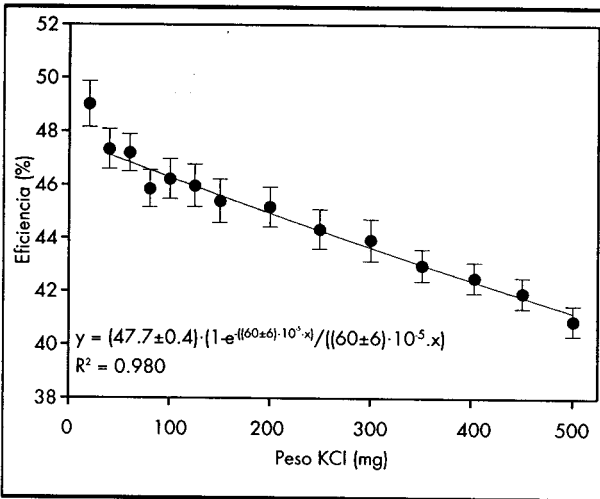


FIGURA 1. Curva de autoabsorción del potasio-40 realizada con cloruro potásico.

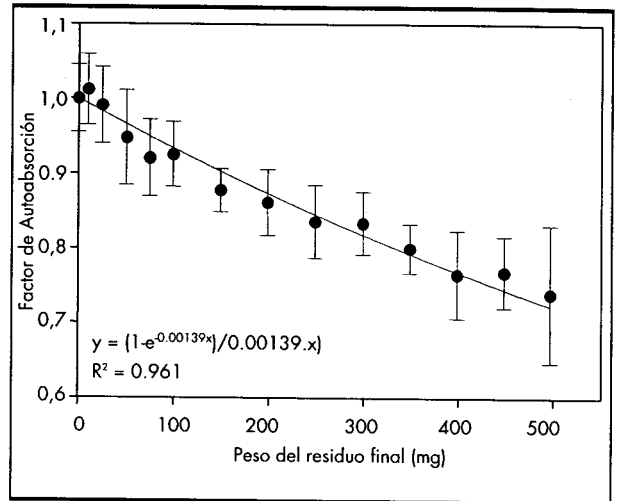


FIGURA 2. Curva de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90 realizada con nitrato sódico calcinado.

Detector	Eficiencia (%)	Coefficiente de absorción ($\cdot 10^{-5} \text{ mg}^{-1}$)	Spillover	Coefficiente de determinación
11	42.3 ± 1.1	136 ± 15	42.51 ± 0.99	0.945
12	43.1 ± 1.1	134 ± 13	38.46 ± 0.89	0.954
13	43.3 ± 1.1	137 ± 11	44.02 ± 1.00	0.954
14	42.6 ± 1.1	140 ± 9	40.82 ± 0.94	0.963
15	41.4 ± 1.1	141 ± 15	43.13 ± 1.01	0.949
16	42.4 ± 1.1	133 ± 9	40.30 ± 0.93	0.955
17	43.7 ± 1.1	137 ± 9	42.15 ± 0.95	0.933
18	43.9 ± 1.1	134 ± 11	41.10 ± 0.92	0.955
19	43.5 ± 1.1	138 ± 11	40.69 ± 0.92	0.947
20	42.1 ± 1.1	139 ± 14	41.74 ± 0.95	0.961
Valor medio	42.8 ± 0.3	137 ± 12		
La incertidumbre está expresada para k = 1.				

TABLA 2. Eficiencia de recuento, coeficiente de absorción, spillover y coeficientes de determinación de la curva de autoabsorción para el estroncio-90/itrio-90.

En la tabla 2 se presentan las eficiencias y coeficientes de absorción del estroncio-90/itrio-90 para todos los detectores del contador proporcional. El rango eficiencias de recuento del estroncio-90/itrio-90 fue: 41.4 – 43.9 %. El factor de autoabsorción medio del estroncio-90/itrio-90 fue: $137 \cdot 10^{-5} \text{ mg}^{-1}$. En la figura 2 se muestra la curva de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90 para uno de los detectores.

Se observa que las eficiencias de recuento del potasio-40 son algo superiores a las del estroncio-90/itrio-90, esto se puede atribuir a la diferente forma del espectro de energía del potasio-40, o tal vez a la diferente geometría en la preparación de los patrones de potasio (5).

En la tabla 3 se presentan los resultados del índice de actividad beta resto en aguas continentales y agua de mar. Se observa como casi todos los índices de actividad beta resto están por debajo del AMD (8) salvo los correspondientes a los códigos APO02, APO07, CDU11 y AGU03. Estos valores superiores al AMD pueden ser debidos a la presencia de emisores beta naturales procedentes de la cadena del uranio

	Lugar de Toma	Código	Índice de actividad beta resto ($\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$)
Aguas continentales	Pasteral - Ter	APO01	< 0.040
	Desembocadura - Ter	APO02	0.062 ± 0.028
	Tarragona - Francolí	APO07	0.079 ± 0.026
	Trillo Abajo - Tajo	CTA40	< 0.038
	Andújar Abajo - Guadalquivir	CGR03	< 0.046
	Ampuero - Asón	ANE09	< 0.038
	Enusa Arriba - Agueda	CDU08	< 0.035
	Enusa Límite - Agueda	CDU11	0.056 ± 0.026
	Balbuena - Guadiana	AGU01	< 0.036
	Pte. Palmas - Guadiana	AGU03	0.043 ± 0.023
	Aguas marinas	Puerto de Palma	MMB14
Puerto de Barcelona		MMB16	< 0.80
Puerto de Barcelona		MMB16	< 0.88
Cabo de San Antonio		MMS13	< 0.94
Cabo Villano		MAS04	< 0.91
Estrecho de Gibraltar		MAS08	< 0.74
Puerto de Cartagena		MMB11	< 0.74
Puerto de Tarragona		MMB18	< 0.97
Cabo de Creus		MMS17	< 0.95
Estrecho de Gibraltar		MAS08	< 0.77
Las incertidumbres están expresadas como $\pm 2\sigma$.			

TABLA 3. Resultados del índice de actividad beta resto en aguas continentales y marinas en Redes de Vigilancia Radiológica Ambiental, (RVRA).

y/o radio. En el caso de agua de mar todos los valores fueron inferiores al AMD. Los AMD obtenidos para agua de mar fueron superiores a los de las muestras continentales debido a que estas muestras fueron preparadas con 10 ml mientras las de aguas continentales se realizaron con 200 ml. Los resultados obtenidos indican que la mayor contribución del índice de actividad beta total, en las aguas objeto de estudio, es debido al potasio-40, ya que el índice de actividad beta resto es menor que el AMD en la mayoría de los casos.

CONCLUSIONES

Las conclusiones del presente trabajo han sido las siguientes:

1. Se recomienda la utilización del modo de medida simultáneo en lugar del secuencial para la determinación del índice de actividad beta total mediante contador proporcional ya que permite reducir el tiempo de recuento a la mitad.
2. Se recomienda la adición de cloruro de cesio como supresor de ionización en la determinación de la concentración de potasio por emisión atómica.
3. El factor de autoabsorción del potasio-40 se puede determinar bien mediante el empleo de una curva de autoabsorción o bien mediante la determinación del coeficiente de absorción másico utilizando absorbentes de papel.
4. El soporte idóneo para determinar el factor de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90 es el nitrato sódico calcinado.
5. Las curvas de autoabsorción del estroncio-90/itrio-90 y potasio-40 fueron ajustadas a una función exponencial al ser la que mejor representa el fenómeno de autoabsorción beta.
6. La mayor parte de los valores obtenidos para el índice de actividad beta resto son inferiores al AMD. El índice de actividad beta total de las aguas de las RVRA procede principalmente del potasio-40 al ser la mayoría de los índices de actividad beta resto inferiores al AMD.

7. El método propuesto es aplicable a todo tipo de aguas, tanto continentales como marinas.

BIBLIOGRAFÍA

- (1) PUJOL, L., SUAREZ-NAVARRO, J.A., DIAZ, M.F. (2000). *Puesta a punto de un contador proporcional para la medida simultánea de la actividad alfa y beta*. Ingeniería Civil, 119, 5-12.
- (2) PUJOL, L., SUAREZ-NAVARRO, J.A., DIAZ, M.F. (1999). Estudio comparativo de los modos de medida secuencial y simultáneo con el contador proporcional LB 770-2. En: *XXV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Madrid: Senda Editorial.
- (3) SUAREZ-NAVARRO, J.A., PUJOL, L., DE PABLO, M. (1999). Optimización de parámetros en el cálculo del índice de actividad beta resto: determinación de la concentración de potasio en el agua de mar. En: *XXV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Madrid: Senda Editorial.
- (4) PUJOL, L., SUAREZ-NAVARRO, J.A., DIAZ, M.F. (2000). Eficiencia de recuento de emisores beta en un contador proporcional. En: *XXVI Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Madrid: Senda Editorial.
- (5) PUJOL, L., SUAREZ-NAVARRO, J.A., DIAZ, M.F. (2001). *Parámetros que influyen en la eficiencia de recuento beta en un contador proporcional*. Ingeniería Civil, 122, 1-7.
- (6) SUAREZ-NAVARRO, J.A., PUJOL, L., DE PABLO, M. (2000). Estudio de la influencia de distintos soportes en la determinación del factor de autoabsorción beta. En: *XXVI Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Madrid: Senda Editorial.
- (7) PUJOL, L., SUAREZ-NAVARRO, J.A., MONTERO, M., DIAZ, M.F. (2001). *Índice de actividad beta total: contador proporcional de flujo continuo de gas*. Madrid: CEDEX.
- (8) CURRIE, LL. (1968). *Limits for qualitative detection and quantitative determination*. Analytical Chemistry, 40, 586-593.