Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante la metodología de desecación y medida en detectores de ZnS(Ag)o en contador proporcional

CSN

Colección
Informes Técnicos 11.2014
Serie
Vigilancia Radiológica Ambiental
Procedimiento 1.16

Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante la metodología de desecación y medida en detectores de ZnS(Ag) o en contador proporcional

Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante la metodología de desecación y medida en detectores de ZnS(Ag) o en contador proporcional

Autores: José Ángel Corbacho Merino
Javier Guillén Gerada
Yolanda Miralles Barranquero
Antonio Baeza Espasa
Laboratorio de Radiactividad Ambiental,
Universidad de Extremadura

Agustina Sterling Carmona, supervisión
Consejo de Seguridad Nuclear

Colección
Informes Técnicos 11. 2014
Serie Vigilancia Radiológica Ambiental

CSN CONSEJO DE SEGURIDAD NUCLEAR

Colección Informes Técnicos
Referencia: INT-04.07

Agradecemos al Consejo de Seguridad Nuclear la financiación recibida a través del proyecto *Estudio de la problemática existente en la determinación del índice de actividad alfa total en agua potables. Propuesta de procedimientos*.

© Copyright 2014, Consejo de Seguridad Nuclear

Edita y distribuye:
Consejo de Seguridad Nuclear
C/ Justo Dorado, 11. 28040 Madrid. España
www.csn.es
peticiones@csn.es

Maquetación:
TAU Diseño S.A.
www.taudesign.com
Depósito legal: M-3484-2014

Índice

1. Introducción 6

2. Objetivo 6

3. Campo de aplicación 6

4. Definiciones 6

5. Procedimiento 7
   - *5.1. Fundamento* 7
   - *5.2. Interferencias* 8
   - *5.3. Reactivos, materiales y equipos* 9
   - *5.4. Preparación de las muestras de calibración* 10
   - *5.5. Preparación de los blancos* 12
   - *5.6. Pretratamiento de las muestras de agua* 12
   - *5.7. Preparación de las muestras* 12

6. Recuento de las muestras, muestras de calibración y blancos 14

7. Estabilidad de las muestras, patrones y blancos 15

8. Cálculos y expresión de los resultados 15

9. Control de la calidad 18

10. Referencias 18

11. Anexo 20

1. Introducción

La determinación del índice de actividad alfa total en muestras de agua es un método que permite discernir entre aquellas aguas que pueden contener una concentración de radionucleidos cuyo consumo supone superar el valor paramétrico establecido para la dosis indicativa total (DIT) (Real Decreto 140/2003), de aquellas que con toda seguridad no lo hacen.

Existen varios métodos para determinar este índice de actividad alfa total. Uno de los más utilizados es el método de desecación. Este método tiene como principales ventajas la facilidad en su realización y el bajo coste de la preparación de la fuente a medir. A diferencia de otras metodologías, mediante este método, y utilizando como equipo de medida un contador proporcional de flujo de gas preparado para la medida simultánea de recuentos alfa y beta, se puede también determinar el índice de actividad beta total de la muestra y, conocida la concentración de potasio natural de la muestra de agua, es posible determinar además el índice de actividad beta resto.

2. Objetivo

Describir el conjunto de actividades que deben llevarse a cabo para preparar fuentes a partir de muestras de agua mediante el método de desecación, de forma que sean susceptibles de ser medidas en un contador proporcional de flujo de gas o en un contador de ZnS(Ag), para determinar el índice alfa total.

3. Campo de aplicación

Este procedimiento se puede aplicar a todo tipo de muestras de agua continentales (NT-20) con contenidos radiactivos calificables de ambientales y que estén por debajo del límite superior considerado como exento para el radio-226 en la normativa vigente (Real Decreto 783/2001). Por otra parte, no es recomendable aplicarlo a muestras de agua con una conductividad del orden de o superior a 1 mS/cm o con un residuo seco del orden de o superior a 1 g/l. Para este tipo de muestras es recomendable utilizar el método de coprecipitación o el de concentración y posterior medida por centelleo líquido.

4. Definiciones

- *Blanco:* Muestra preparada, a partir de agua desionizada o destilada, utilizando el método descrito en este procedimiento. Su recuento se expresa en cuentas por minuto, cpm.

- *Curva de eficiencia:* Función que relaciona la eficiencia de la detección con el espesor másico de la muestra.

- *Eficiencia de recuento:* Fracción de partículas emitidas por una muestra que es detectada por un sistema de medida. Se expresa en tanto por uno.

- *Espesor másico (EM):* Masa de residuo seco obtenido por unidad de superficie del soporte o plancheta en donde se realiza el recuento. Se expresa en $mg \cdot cm^{-2}$.

- *Índice de actividad alfa total:* Actividad alfa de la muestra, sin filtrar, referida a la muestra de calibración de americio-241. Se expresa en Bq/l.

- *Índice de actividad alfa total en la fracción disuelta:* Actividad alfa debida únicamente a la fracción soluble de la muestra filtrada a través de un filtro de 0,45 µm de tamaño de poro, referida a la muestra de calibración de americio-241. Se expresa en Bq/l.

- *Índice de actividad alfa total en la fracción no disuelta:* Actividad alfa total debida únicamente a la fracción insoluble de la muestra retenida en un filtro de 0,45 µm de tamaño de poro, referida a la muestra de calibrado de americio-241. Se expresa en Bq/l.

5. Procedimiento

5.1. Fundamento

Tras la selección de un volumen de muestra adecuado para obtener una masa de residuo seco óptimo para su medida, se reduce este volumen mediante evaporación suave hasta unos 8 ml. Previa a la transferencia a una plancheta de acero inoxidable, se añaden en torno a 1 o 2 ml de HNO_3 cc para eliminar los cloruros que puedan estar presentes en la muestra. La muestra se lleva a desecación total en la plancheta mediante la aplicación de una lámpara de infrarrojos o utilizando una estufa de desecación. En algunos casos concretos se recomienda una posterior calcinación de la fuente a mayor temperatura.

La duración aproximada del procedimiento, en función del volumen utilizado de la muestra, se detalla en la tabla 5.1:

Tabla 5.1. Tiempo aproximado de preparación de una muestra de agua por el método de desecación en función del volumen de la misma utilizado para concentrar.

Volumen de la muestra (l)	Tiempo en horas de preparación
0,100	5 h
0,250	7 h
0,500	10 h – 12 h
> 1 l	Mínimo 2 días

5.2. Interferencias

1. En ocasiones, la presencia de radio-224 y sus descendientes en la muestra incrementan notablemente el recuento alfa en la medida de la misma durante las primeras 48 horas tras la preparación de la plancheta (CSN, 2014).

2. La no uniformidad del residuo seco de la muestra supone una fuente de incertidumbre que interfiere en la exactitud y precisión del método (CSN, 2003).

3. La presencia de cloruros en la muestra puede atacar significativamente la plancheta cuando se transfiere la muestra. Por ello, es necesario añadir un volumen de entre 1 y 2 ml de HNO_3 cc para eliminar dichos cloruros (EPA, 1980).

4. Las diferencias energéticas (americio-241: 5,4 MeV, torio-230: 4,68 MeV y uranio natural: 4,45 MeV) entre los posibles isótopos emisores alfa que se van a utilizar para la calibración en eficiencias del sistema de detección hacen que se pueda subestimar o sobrevalorar el valor del índice alfa total, frente a la actividad de los emisores alfa realmente existente en las muestras. De hecho, se observan diferencias importantes en los resultados obtenidos en función del patrón de calibración usado (CSN, 2014).

5. Las diferentes matrices salinas que se pueden utilizar para fabricar la curva de calibración en eficiencia (sales de nitrato, carbonato y sulfato sódico) pueden suponer una subestimación o sobrevaloración del valor del índice alfa total, debido a que para una energía dada de la partícula alfa emitida por el radionucleido utilizado como patrón, estas experimentan diferentes grados de atenuación (CSN, 2014).

6. En presencia de radio-226 en la muestra que se va a analizar, y en función del momento en que se realiza la medida, se puede sobrestimar el resultado del índice de actividad alfa total; por lo tanto, no es conveniente realizar la medida de la muestra pasadas 120 horas tras finalizar su preparación. De esta forma se evitará que el recuento alfa se incremente significativamente debido a la presencia de los descendientes de este radionucleido.

7. Durante la evaporación de la muestra, tanto en el vaso de precipitados, como en la plancheta, se volatiliza parcialmente el polonio-210 que pudiera haber en la muestra de agua que se va a analizar, ya que su estabilidad térmica depende de la forma química en la que esté presente en la misma (CSN, 2014).

8. La presencia de sales de nitrato en las muestras depositadas en la plancheta puede suponer, en algunas ocasiones, como cuando existe una elevada humedad relativa ambiental en el laboratorio, un considerable problema debido a su comportamiento higroscópico. De hecho, una vez fuera del desecador de gel de sílice y durante el periodo de medida en un contador proporcional, las sales de nitrato depositadas en la plancheta pueden hidratarse considerablemente, lo que afecta a la precisión y exactitud del método.

5.3. Reactivos, materiales y equipos

Reactivos

a) Ácido nítrico concentrado, 65-69%.

b) Ácido clorhídrico concentrado, 37%.

c) Agua desionizada o destilada.

d) Disolución de patrón de americio-241 con concentración de actividad certificada.

e) Disolución de $NaNO_3$ (50mg/ml). Disolver 5,0 g de nitrato de sodio en agua desionizada o destilada y enrasar hasta 100 ml. Guardar en un frasco de vídrio y colocar en lugar fresco.

f) Alcohol para la limpieza de las planchetas (etanol).

Materiales

a) Sistema de evaporación, que puede ser:

- placa calefactora con agitación y temperatura regulable;

- baño de arena con temperatura regulable.

b) Sistema de secado del residuo seco:

- estufa o lámpara de infrarrojos.

c) Planchetas de acero inoxidable. Frecuentemente se utilizan planchetas de acero estriado de 4,7 cm de diámetro interior. Se ha verificado que se obtienen resultados similares con planchetas de acero sin estriar, de 6,0 cm de diámetro.

d) Desecador con gel de sílice.

e) Sistema de filtración a vacío.

f) Filtros de membrana de 0,45 μm de tamaño de poro.

g) Material de uso corriente en el laboratorio.

h) Discos de ZnS(Ag) en el caso de utilizar un contador de centelleo sólido de ZnS(Ag).

Equipos

a) Balanza analítica.

b) Contador proporcional de flujo continuo de gas de bajo fondo o sistema de detección de centelleo sólido mediante discos de sulfuro de cinc.

c) Conductímetro.

5.4. Preparación de las muestras de calibración

La curva de calibración en eficiencia obtenida mediante el procedimiento descrito en este apartado solo es aplicable para el cálculo del índice de actividad alfa total en muestras de agua depositadas sobre planchetas de acero de 47 mm (o 60 mm), que hayan sido fabricadas según el procedimiento antes descrito.

La muestra de agua cuyo índice de actividad alfa total se desea determinar debe desecarse totalmente sobre una plancheta de acero. De esta forma, las sales que contiene se depositan homogéneamente sobre la superficie interior de la misma. Para determinar el citado índice de actividad alfa total de una muestra preparada en estas condiciones, se requiere conocer cuál es la respuesta del detector y el factor de autoabsorción para las características de dicha muestra. Para ello, se preparan una serie de planchetas patrón (tres réplicas por depósito seleccionado), con una disolución salina similar a la que puede contener el agua ($NaNO_3$) y en las que se ha añadido una cantidad conocida de patrón de referencia (americio-241), con diferentes depósitos salinos que abarcan todo el rango típico de las muestras de agua (30 – 180 mg para planchetas de 47 mm de diámetro). Estas planchetas patrón se miden en los contadores proporcionales de flujo de gas o en los detectores de ZnS(Ag) que se van a utilizar y, a partir de dichas medidas, se calcula la eficiencia experimental de cada una de ellas. Por último, conocidos los valores experimentales de eficiencia y los depósitos salinos o espesores másicos, se realiza un ajuste de una función lineal, polinómica o exponencial decreciente a dichos datos.

La preparación de las curvas de calibración en eficiencia no requiere un especial cuidado, salvo en la manipulación de los patrones radiactivos, ya que se debe evitar el contacto con otros materiales que no sean los imprescindibles para prevenir su contaminación. Por otro lado, los patrones radiactivos deben mantenerse el menor tiempo posible sin refrigeración, para evitar su evaporación. Este hecho puede conllevar un aumento en la concentración del patrón, que supondría una variación desconocida de su actividad certificada.

Limpieza y etiquetado de las planchetas

1. Limpiar todas las planchetas de acero con alcohol (etanol).

2. Es recomendable realizar una abrasión de la superficie interior de las planchetas de acero, con el fin de mejorar la homogeneidad del residuo salino depositado. Para ello se recomienda añadir 3 ml de HCl concentrado a las planchetas; dejar actuar el ácido durante 4 minutos; retirar después el ácido y lavar las planchetas con abundante agua; y finalizar limpiándolas, de nuevo, con alcohol.

3. Etiquetar con un rotulador indeleble los vasos de precipitados que se van a usar. Estos deben tener un volumen en torno a 20 ml, estar limpios y secos y no presentar arañazos. Los mismos códigos se anotarán también en el reverso de las planchetas antes preparadas.

4. Determinar la masa inicial m_0 de las planchetas en una balanza analítica.

Preparación de las planchetas patrón

5. Añadir en un vaso de 20 ml unos 3 o 4 ml de agua desionizada y, a continuación, un volumen de la disolución de $NaNO_3$ (50 mg/ml).

   Nota: Se añadirán volúmenes crecientes para fabricar las planchetas, de tal forma que el rango de masas de $NaNO_3$ depositadas estén entre 30 – 180 mg para planchetas de 47 mm de diámetro.

6. Añadir una actividad conocida de la disolución patrón de americio-241 (es recomendable que esté comprendida entre 5 y 15 Bq).

7. Agitar suavemente, moviendo el vaso de precipitados, para homogeneizar el patrón y la disolución salina. No usar agitadores magnéticos ni varillas.

8. Añadir con precaución la disolución de $NaNO_3$ trazada sobre la plancheta y etiquetada con el mismo código que el vaso de 20 ml.

9. Añadir aproximadamente 1 o 2 ml de $HNO_3$0.1M al vaso para limpiar los restos que pudieran quedar de disolución y transferirlos a la plancheta. Repetir esta acción hasta garantizar la limpieza total del vaso.

10. La plancheta se deja evaporar bajo una lámpara de infrarrojos o en una estufa hasta que el peso sea constante a una temperatura no superior a 105 °C .

11. El residuo seco debe quedar uniformemente distribuido en la plancheta.

12. Tras enfriar en un desecador, se determina su masa final m_F en una balanza analítica.

13. Repetir los pasos anteriores (5 – 12) para fabricar todas las planchetas de la curva de calibrado en eficiencias, utilizando diferentes volúmenes de disolución de $NaNO_3$ y similar actividad de patrón radiactivo.

14. Las planchetas así fabricadas están preparadas para su medida en el contador proporcional o en el contador de centelleo de ZnS(Ag) a calibrar. Mantenerlas hasta dicho momento en un desecador con gel de sílice.

15. Una vez realizada la medida de las planchetas patrón que conforman la curva completa de calibración en eficiencias en todos los contadores que se desea calibrar, conviene someterlas a un choque térmico de 400 °C durante 10 minutos. Tras finalizar dicho choque térmico, dejar

enfriar las planchetas en un desecador. Posteriormente se determina, de nuevo, la masa final m_{F2} en una balanza analítica.

16. Se comprueba si ha habido una pérdida de depósito másico en cada una de las planchetas patrón sometidas al choque térmico comparando las masas m_Fy m_{F2} y, en caso positivo, se descartan aquellas planchetas con diferencias superiores al 1%.

Las planchetas patrón que han superado el criterio del punto 16 se vuelven a medir en los contadores proporcionales y/o de centelleo de ZnS que se desea calibrar. De forma que se obtiene una nueva curva de calibración en eficiencia para planchetas con fuentes que dada su higroscopia deben ser sometidas a choque térmico a 400 °C.

5.5. Preparación de los blancos

Se preparan por aplicación del método descrito en el apartado 5.7, a partir del punto 2 del mismo, utilizando 0,25 l de agua desionizada o destilada.

5.6. Pretratamiento de las muestras de agua

Se recomienda no filtrar el agua en el caso de que se pretenda determinar el índice de actividad alfa total presente en aguas de consumo. Por otra parte, se puede determinar el índice de actividad alfa total en las fracciones soluble e insoluble, indicando en el resultado a qué fracción se corresponde. Cuando se quiera medir el índice de actividad alfa total de una muestra en la fracción disuelta, esta se filtra a través de un filtro de membrana de 0,45 µm de tamaño de poro. Si, por el contrario, se requiere determinar el índice de actividad alfa total en la fracción no disuelta, se mide el anterior filtro previamente tarado, en un contador proporcional de flujo de gas o en un contador de centelleo sólido de ZnS(Ag) calibrado para dicha geometría.

Para preservar la muestra, tal y como se expone en el procedimiento 1.15 del CSN (CSN, 2009), se recomienda su estabilización química y su refrigeración, si no va a prepararse la muestra antes de 8 horas.

5.7. Preparación de las muestras

1. Estimar el volumen de la muestra, V_o(L), adecuado para obtener un espesor másico en la plancheta dentro del intervalo de la curva de autoabsorción recomendable, entre 4 – 6 mg/cm^2, que equivale a un depósito comprendido entre 80 – 120 mg para planchetas de 47 mm de diámetro. Este volumen puede determinarse a partir de la medida de conductividad o del residuo seco.

a) En función de su conductividad específica, C(µS/cm):

$$Vo(L) = 100/C \qquad (1)$$

Nota: En otros estudios (Jiménez, 1993) se determinó la existencia de una correlación lineal muy bien definida entre la conductividad de las muestras de agua a tratar y el depósito

producido por estas tras su desecación. Asimismo, se estableció la cantidad de residuo óptimo para la medida de los índices alfa y beta total, dependiendo del modo y del sistema de medida, llegándose al compromiso de un residuo óptimo de unos 100 mg para la medida simultánea alfa y beta en contadores proporcionales de flujo de gas con planchetas de 19,63 cm^2 de superficie.

a) En función de su residuo seco: se lleva a sequedad a una temperatura aproximada de 105 °C, de forma que se garantice la total evaporación del agua presente en el residuo, un volumen adecuado de muestra acidulada en un vaso de precipitados previamente tarado, hasta obtener un peso constante y se calcula el volumen de la muestra adecuado para su medida en base a la siguiente expresión:

$$V_o(L) = EM \cdot V_2 \cdot A/P_1 \qquad (2)$$

donde, EM es el espesor másico deseado, en mg/cm^2; V_2 es el volumen de muestra tomado, en ml; A es el área interior de la plancheta, en cm^2; P_1 es el peso de residuo de la muestra correspondiente al volumen V_2, en mg.

2. Seleccionar el volumen finalmente empleado, V(L), así como la probeta o pipeta y el vaso de precipitados de tamaño más adecuados, indicando el volumen seleccionado y su incertidumbre asociada en la correspondiente hoja guía (ver anexo).

3. Realizar una abrasión química de la plancheta a utilizar. Para ello, añadir a la plancheta unos 3 ml de HClcc y dejar actuar el ácido durante unos 4 minutos. Asegurarse de que éste cubre en su totalidad la base interior de la plancheta. Retirar el ácido y lavar con abundante agua.

4. Limpiar con alcohol (etanol) la plancheta que se vaya a utilizar e identificarla externamente por su base, escribiendo su código con un rotulador indeleble. Determinar la masa inicial de la plancheta, m_0, en mg, en una balanza analítica.

5. Evaporar cuidadosamente la muestra de agua hasta un volumen final inferior a 8 ml. Evitar que en el proceso se produzca su ebullición.

6. Añadir, entre 1 y 2 ml de HNO_3 concentrado para eliminar los cloruros de la muestra. En el caso de que la muestra tenga una concentración elevada de sales de cloruros, no será posible eliminarlos con la cantidad de HNO_3 antes citada. En tal caso, es conveniente llevar la muestra hasta casi sequedad y añadir 5 ml de HNO_3 cc (EPA 1980). Seguidamente, evaporar de nuevo hasta casi sequedad. Repetir el paso anterior una vez más y, finalmente, añadir 10 ml de HNO_3 1 N para continuar en el siguiente paso.

7. Transferir con cuidado la muestra de agua ya concentrada por evaporación sobre la plancheta. El resultado debe ser tal que cubra homogéneamente su base y no rebase su capacidad. Si es necesario, ayudarse de una pipeta pasteur; sin embargo, es preferible transferirla directamente del vaso de precipitados a la plancheta, evitando que puedan quedar restos en la pipeta pasteur. No es recomendable añadir en varias tandas la muestra concentrada, puesto que se favorece la presencia de residuo salino en las proximidades del borde de la plancheta. Para evitar este hecho es preferible continuar con una evaporación suave hasta unos 5 ml.

8. Lavar el vaso empleado para concentrar la muestra con 1 o 2 ml de una disolución de ácido nítrico 0.1 N, transfiriéndola a la plancheta antes citada. Repetir esta acción hasta garantizar la limpieza total del vaso.

9. Si se utiliza una lámpara de infrarrojos (IR) de 250 W, colocar la plancheta a una distancia de entre 13 y 15 cm, que garantiza una temperatura de secado > 75 °C. En el caso de que se utilice una estufa, mantener a 105 °C su temperatura. Llevar la muestra depositada hasta su sequedad total o peso constante (aproximadamente 1 hora en estas condiciones).

10. Dejar enfriar la plancheta en un desecador (al menos 30 minutos) y determinar, cuando esté a temperatura ambiente, la masa final de la plancheta, m_F, en (mg) con una balanza analítica.

11. Mantener la plancheta en el desecador hasta que se proceda a su medida.

12. Medir las muestras transcurrido un tiempo de entre 2 y 3 días (48 – 72 horas) después de finalizar la preparación. Antes de 48 horas puede existir interferencia de emisores alfa de vida corta (radio-224) y, si hay presencia de radio-226 en la muestra, el recuento alfa irá incrementándose con el tiempo, de forma que la variación del índice de actividad alfa total debido a este hecho es significativa transcurridas 96 – 120 horas desde la fecha de preparación.

13. Tras finalizar la medida, se determinará nuevamente la masa del depósito salino. Si esta se ha incrementado en más de un 30%, es recomendable volver a desecar la plancheta bajo una lámpara de infrarrojo o en estufa y, posteriormente, someterla a un choque térmico de 400 °C durante 10 minutos. Finalizado el choque térmico y, tras enfriar la plancheta en un desecador durante 1 hora, determinar nuevamente el residuo seco y programar la medida de la plancheta transcurridas 48 – 72 horas. El índice de actividad alfa total se debe calcular utilizando los parámetros de ajuste de una curva de calibración en eficiencia que haya sido sometida también a dicho choque térmico. (Para incrementos del depósito inferiores al 20%, la variación de la eficiencia y de la atenuación, como consecuencia de la presencia de agua en la fuente preparada, se encuentra dentro de la dispersión propia de la medida alfa total por el método de desecación. Por último, si el incremento de depósito másico es superior al 20% pero inferior al 30% se deja a criterio del analista el cómo proceder).

Nota: Es importante tener en cuenta que al someter a choque térmico la plancheta con la muestra desecada es posible perder parte del residuo en ella contenido (CSN, 2014).

Al final de este procedimiento se presenta una hoja guía de preparación (ver anexo) para facilitar el seguimiento de la metodología.

6. Recuento de las muestras, muestras de calibración y blancos

Se introduce la plancheta en el portaplanchetas del contador proporcional de flujo de gas o de centelleo sólido de sulfuro de cinc (en el caso de medirse en ZnS(Ag) añadir un disco de ZnS(Ag), con el máximo contacto posible con el residuo salino previamente depositado en la plancheta) y se mide el

tiempo necesario para obtener una estadística adecuada. Para actividades del orden de 100 mBq/l, es recomendable emplear tiempos de recuento del orden de al menos 800 – 1.000 minutos por ciclo, de forma que se pueda reducir razonablemente la incertidumbre asociada al recuento. Por otro lado, se recomienda realizar dos o más ciclos de medida, con el fin de poder detectar la presencia de recuentos espurios o anómalos.

7. Estabilidad de las muestras, patrones y blancos

Las planchetas patrón fabricadas con nitrato sódico pueden conservarse en perfecto estado al menos durante 1 año, si se mantienen en un desecador con gel de sílice.

8. Cálculos y expresión de los resultados

a) Cálculo y obtención de la curva de calibrado en eficiencias en función de la cantidad de residuo

La eficiencia de recuento se calcula mediante la siguiente expresión:

$$E_i = \frac{cpm_{alfa} - cpmb_{alfa}}{dpm_{patrón}} \qquad (3)$$

donde,

E_i es la eficiencia de recuento de cada una de las fuentes patrones de calibrado preparadas para diferentes cantidades de sustrato, según el apartado 5.4 de este documento, en tanto por uno;

cpm_{alfa} es la tasa de recuento alfa de la fuente patrón de calibrado preparada, en cpm;

$cpmb_{alfa}$ es la tasa de recuento alfa del blanco, en cpm;

$dpm_{patrón}$ son las desintegraciones por minuto de la fuente patrón de calibración de americio-241 preparada en el apartado 5.4 de este documento, en dpm.

Una vez obtenidas las diferentes eficiencias (E_i), se representan frente a las cantidades de residuo o espesores másicos (mg) correspondientes, y se ajusta a los puntos experimentales la función más adecuada (exponencial decreciente, polinómica, lineal).

b) Cálculo del índice de actividad alfa total

El índice de actividad alfa total se calcula mediante la siguiente expresión:

$$A = \frac{cpm_{alfa} - cpmb_{alfa}}{60 \cdot E_i \cdot V} \qquad (4)$$

donde,

A es el índice de actividad alfa total de la muestra, en Bq/l;

cpm_{alfa} es la tasa de recuento alfa de la muestra, en cpm;

$cpmb_{alfa}$ es la tasa de recuento alfa del blanco, en cpm;

E_i es la eficiencia correspondiente al residuo (en mg) de la muestra, en tanto por uno;

V es el volumen de muestra, en l.

c) Cálculo de la incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad alfa total

La incertidumbre que se calcula en este apartado corresponde únicamente a la incertidumbre asociada al recuento de la muestra; hay otras fuentes de incertidumbre que deben considerarse en el cálculo de la incertidumbre total basada en la normativa internacional.

La incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad alfa total para un nivel de confianza del 95% se calcula mediante la siguiente expresión:

$$u(A) = \frac{2}{60 \cdot E_i \cdot V} \sqrt{\frac{cpm_{alfa}}{t(m)} + \frac{cpmb_{alfa}}{t(b)}} \qquad (5)$$

donde:

u(A) es la incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad alfa total, en Bq/l;

E_i es la eficiencia correspondiente al residuo (en mg) de la muestra, en tanto por uno;

V es el volumen de muestra, en l;

cpm_{alfa} es la tasa de recuento alfa de la muestra, en cpm;

$cpmb_{alfa}$ es la tasa de recuento alfa del blanco, en cpm;

t(m) es el tiempo de medida de la muestra, en minutos;

t(b) es el tiempo de medida del blanco, en minutos.

d) Cálculo de la actividad mínima detectable

La actividad mínima detectable del índice de actividad alfa total, para un nivel de confianza del 95%, se calcula mediante la siguiente expresión según (ISO 11929-7):

$$AMD = \frac{3.29 \cdot \sqrt{\frac{cpm_{alfa}}{t(m)} + \frac{cpmb_{alfa}}{t(b)}} + 2.7 \cdot \left(\frac{1}{t(m)} + \frac{1}{t(b)}\right)}{60 \cdot E_i \cdot V} \quad (6)$$

donde:

AMD es la actividad mínima detectable, en Bq/l;

$cpmb_{alfa}$ es la tasa de recuento alfa del blanco, en cpm;

t(b) es el tiempo de medida del blanco, en minutos;

t(m) es el tiempo de medida de la muestra, en minutos;

E_i es la eficiencia correspondiente al residuo (en mg) de la muestra, en tanto por uno;

V es el volumen de muestra, en l.

e) Expresión de los resultados del índice de actividad alfa total

Los resultados se expresan de la siguiente manera:

a) Actividad mayor o igual que la AMD

A ± U (indicando el valor de k para el nivel de confianza utilizado)

donde,

A es el índice de actividad alfa total de la muestra, en Bq/l;

U es la incertidumbre expandida, en Bq/l, que viene dada por la siguiente expresión:

$$U = k \cdot u_c \quad (7)$$

donde,

k es el factor de cobertura;

u_c es la incertidumbre combinada de la totalidad del proceso de análisis, calculada a partir de las distintas contribuciones.

Finalmente, es recomendable considerar un análisis de incertidumbre global en el que se incorporen las fuentes de incertidumbre asociadas a la precisión, reproducibilidad, repetibilidad, etc, obtenidas a partir de estudios de intra-laboratorio, así como de intercomparaciones, validaciones y comparación con material certificado.

b) Actividad menor que la AMD

El resultado se expresa como <AMD

9. Control de la calidad

Control interno de la calidad

Para controlar el equipo de medida es habitual, en un contador de centelleo sólido y en un contador proporcional, evaluar el *fondo* y la *eficiencia* para uno o más radionucleidos.

Además, es necesario implantar un control del método que debe incluir controles de *blancos,* así como el análisis periódico de una *muestra control,* para asegurar que no se modifican las condiciones en las que se realiza la medida.

Control externo de la calidad

Es recomendable la participación periódica en ejercicios de intercomparación entre laboratorios o, si eso no fuera posible, analizar muestras cruzadas de forma periódica para asegurar que los resultados obtenidos son comparables a los obtenidos por otros laboratorios.

10. Referencias

- CSN (Consejo de Seguridad Nuclear), Colección Informes Técnicos 11. 2003, Serie Vigilancia Radiológica Ambiental. 2003. Romero, M.L. Fernández M.C., Gascó, C., García Toraño, E., González, J.A., Heras, M.C. Montero, M y Núñez-Lagos, R. *Procedimiento para la evaluación de incertidumbres en la determinación de la radiactividad ambiental.*

- CSN (Consejo de Seguridad Nuclear), Colección Informes Técnicos 11. 2009, Serie Vigilancia Radiológica Ambiental. 2009. M. Herranz Soler, E. Navarro Anglés, J. Payeras Socias, J. L. Pinilla Matos, A. Baeza, A. Alonso, M. C. Heras, M. Pozuelo, R. García-Tenorio. *Procedimiento para el muestreo, recepción y conservación de muestras de agua para la determinación de la radiactividad ambiental.*

- CSN (Consejo de Seguridad Nuclear) 2014. Publicación INT-04.30 *Estudio de la problemática existente en la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables*.

- EPA (Environmental Protection Agency) 600/4-80-032. 1980. *Prescribed procedures for measurement of radioactivity in drinking water. Gross alpha and gross beta radioactivity in drinking water,* Method 900.0, Environmental Protection Agency.

- ISO 11 929-1. Determination of the detection limit and decision threshold for ionizing radiaton measurementes. Part 1: Fundamentals and application to counting measurements without the influence of sample pretreatment.

- Jiménez A. (1993). *Niveles radiológicos en aguas de la provincia de Cáceres.* Tesis, Universidad de Extremadura, España.

- NT-20: *Expresión de los alcances técnicos de ensayos en agua.* ENAC rev. 1. Julio 2007.

- Real Decreto 783/2001. *Reglamento sobre protección sanitaria contra radiaciones ionizantes.* 06/07/2001. BOE 178. 2001

- Real Decreto 140/2003. *Por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano.* 21/02/2003. BOE 45.2003

11. Anexo: Hoja guía

Preparación radioquímica alfa total en aguas por desecación

Referencia del ensayo:

Fecha de recogida:

Fecha del inicio/preparación:

Volumen de la muestra (l):

- Fracción(es) a preparar (marcar con una **x**):

  - Total ☐ - Soluble ☐ - Filtro ☐

- Conductividad: ☐ Residuo seco: ☐

- Volumen óptimo determinado a partir del residuo seco o de la conductividad: V_o(l) ☐

- Volumen e incertidumbre seleccionado V(l) ± ε(l) = ± ☐
- (En su caso) filtrar con 0,45 μm
- Evaporar hasta 3-8 ml
- Añadir 1 ml de HNO_3
- Limpiar la plancheta, tratarla con HCL e identificarla con su clave
- Pesar la plancheta vacía m_o(g) = ☐
- Transferir la muestra y desecar en lámpara de infrarrojos o estufa
- Pesar la plancheta con el residuo seco m_F (g) = ☐
- Depósito (mg): …… ☐
- Calcular el espesor másico (mg/cm²): …… ☐
- Muestra aceptada(*) …… Sí/No
- Introducirla en la capsula petri identificada con su clave
- Dejar en el desecador de muestras hasta su medida en un contador proporcional o de sulfuro de cinc
- Tras la medida pesar la plancheta con residuo m_{F2} (g) = ☐
- Si el depósito se ha incrementado un 30% es recomendable calcinar la plancheta a 400 °C y después medirla transcurridos dos días. Se debe calcular el indice de actividad alfa total utilizando la curva de calibrado en eficiencias calcinada a 400 °C

Fecha y hora final de la preparación:

Personal técnico que realiza el ensayo:

Identificación de la balanza y precisión de la misma:

Revisión, fecha:

(*)Nota: Cada laboratorio debe establecer unos criterios de aceptación/rechazo basados en su experiencia.

Colección Informes Técnicos: Serie Vigilancia Radiológica Ambiental

- 1.1 *Procedimiento de toma de muestras para la determinación de la radiactividad en suelos: capa superficial.*
  CSN, 2003 (22 págs.)

- 1.2. *Procedimiento para la conservación y preparación de muestras de suelo para la determinación de la radiactividad.*
  CSN, 2003 (20 págs.)

- 1.3. *Procedimiento para la evaluación de incertidumbres en la determinación de la radiactividad ambiental.*
  CSN, 2003 (92 págs.)

- 1.4. *Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma.*
  CSN, 2004 (44 págs.)

- 1.5. *Procedimientos de determinación de los índices de actividad beta total y beta resto en aguas mediante contador proporcional.*
  CSN, 2004 (18 págs.)

- 1.6. *Procedimiento para la determinación de la concentración de Sr-89 y Sr-90 en suelos y sedimentos.*
  CSN, 2005 (64 págs.)

- 1.7. *Procedimiento de toma de muestras de aerosoles y radioyodos para la determinación de la radiactividad.*
  CSN, 2005 (28 págs.)

- 1.8. *Procedimiento para la recepción, conservación y preparación de muestras de aerosoles en filtros y de radioyodos en carbón activo para la determinación de la radiactividad ambiental.*
  CSN, 2005 (28 págs.)

- 1.9. *Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en muestras de agua. Métodos de coprecipitación y evaporación.*
  CSN, 2005 (32 págs.). Anulado por los procedimientos 1.16, 1.17 y 1.18.

- 1.10. *Procedimiento de toma de muestras de sedimentos para la determinación de la radiactividad ambiental.*
  CSN, 2007 (26 págs.)

- 1.11. *Procedimiento para la conservación y preparación de muestras de sedimento para la determinación de la radiactividad ambiental.*
  CSN, 2007 (30 págs.)

- 1.12. *Procedimiento de toma de muestras de la deposición total para la determinación de la radiactividad.*
  CSN, 2007 (28 págs.)

- 1.13. *Procedimiento para la preparación de muestras de agua para determinar la actividad de emisores gamma. Retención de yodo y extracción selectiva de cesio.*
  CSN, 2007 (36 págs.)

- 1.14. *Procedimiento de toma de muestras de vapor de agua para la determinación de tritio.*
  CSN, 2009 (36 págs.)

- 1.15. *Procedimiento para el muestreo, recepción y conservación de muestras de agua para la determinación de la radiactividad ambiental.*
  CSN, 2009 (34 págs.)

- 1.16. *Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante la metodología de desecación y medida en detectores de ZnS(Ag) o en contador proporcional.*
  CSN, 2014 (28 págs.). Este procedimiento anula el 1.9.

- 1.17. *Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante el método de coprecipitación y medida en detectores de centelleo de ZnS o en contador proporcional.*
  CSN, 2014 (26 págs.). Este procedimiento anula el 1.9.

- 1.18. *Procedimiento para la determinación de los índices de actividad alfa total y beta total en aguas potables mediante el método de concentración y detección por centelleo líquido.*
  CSN, 2014 (32 págs.). Este procedimiento anula el 1.9.

Procedimiento para la determinación del índice de actividad alfa total en aguas potables mediante la metodología de desecación y medida en detectores de ZnS(Ag) o en contador proporcional

Colección Informes Técnicos 11. 2014
Serie Vigilancia Radiológica Ambiental
Procedimiento 1.16

CSN CONSEJO DE SEGURIDAD NUCLEAR