

La acreditación de los laboratorios del Área de Aplicaciones Isotópicas. Trabajos preliminares

M^ª A. DE PABLO (*); M^ª FE DÍAZ (*); R. GRECIANO (**); M. MONTERO (**); J. PAYERAS (**); L. PUJOL (***); J. A. SUÁREZ-NAVARRO (****)

RESUMEN El Área de Aplicaciones Isotópicas del Centro de Estudios de Técnicas Aplicadas (CETA), del CEDEX, en adelante Área, viene desarrollando desde hace tiempo, una serie de actividades que han ido preparando el camino para la consecución de las certificaciones correspondientes a la acreditación de sus laboratorios de preparación de muestras y realización de medidas para la determinación de la radiactividad ambiental.

Entre esas actividades, cabe reseñar la participación de miembros del Área en grupos de trabajo para la elaboración de normas y procedimientos de la Asociación Española de Normalización (AENOR), vía el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN). Asimismo se trabaja en la elaboración y redacción de manuales operativos y protocolos de los diversos métodos de trabajo.

También se viene desarrollando, una aplicación informática que sirva para llevar a cabo la gestión, control y seguimiento de las muestras.

Además se describen someramente otros trabajos, efectuados en los últimos cinco años, conducentes a la mejora de la precisión y exactitud de los resultados, mediante un incremento de la calidad de diversos sistemas y procesos.

ACCREDITATION ON ISOTOPIC APPLICATIONS DEPARTMENT LABORATORIES (CEDEX). PRELIMINARY WORKS

ABSTRACT *The Isotopic Application Department of CEDEX is carrying out several activities in order to get the accreditation of its environmental radioactivity laboratories.*

External activities include the participation in working groups for the standardization of preparation and measurement procedures of Spanish environmental radioactivity laboratories. The working groups are supervised by AENOR and CSN.

On the other hand, internal activities include: a software in order to control environmental samples preparation and measurement, and the elaboration of a manual of procedures and techniques developed in our laboratories.

Furthermore, we present synopsis of several papers showing the works carried out by the Department in order to increase precision and accuracy of the different methods used in our laboratories.

Palabras clave: Acreditación; Control de calidad; Vigilancia radiológica; Aplicaciones isotópicas.

1. INTRODUCCIÓN

La garantía de calidad de los productos, en la industria, en los servicios o en la Administración es una exigencia que va poco a poco instalándose en la mentalidad y en las normas de trabajo de las distintas organizaciones, públicas y privadas.

Como es sabido, uno de los primeros campos de trabajo en los que se implantaron los métodos de la Garantía de Ca-

lidad fue en la industria nuclear. De ahí que en el Área, se fuese sensible a esa cultura de la calidad desde hace tiempo.

Como consecuencia, se iniciaron (y se continúan) una serie de trabajos preliminares de recopilación y redacción de documentos que permitirán en su momento solicitar las acreditaciones necesarias.

El objeto de este trabajo es precisamente describir el conjunto de actuaciones y documentos que han sido llevados a cabo para preparar el cuerpo concreto de protocolos, métodos, certificados, etc. que van a ser necesarios en el momento en que se solicite la acreditación.

2. PARTICIPACIÓN EN LA ELABORACIÓN DE NORMAS

En el año 1998, los principales laboratorios españoles de radiactividad ambiental, celebraron en Bilbao unas jornadas sobre "Calidad en el Control de la Radiactividad Ambiental", donde se acordó, entre otras cosas, crear grupos de trabajo cuya misión sería la elaboración de normas para el aseguramiento de la calidad en este campo.

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

(**) Ingeniero de Caminos, Canales y Puertos. Centro de Estudios de Técnicas Aplicadas del CEDEX. Ministerio de Fomento.

(***) Arquitecto. Centro de Estudios de Técnicas Aplicadas del CEDEX. Ministerio de Fomento.

(****) Doctor en Física. CEDEX-CIEMAT.

(*****) Licenciado en Ciencias Químicas. CEDEX-CIEMAT.

Distintos miembros del Área, están actualmente participando en todos los grupos y subgrupos de normas y procedimientos del SC-03 CTN-73 de AENOR, promovidos por el CSN.

Los grupos y subgrupos se detallan a continuación, expresando sus objetivos:

Grupo de Patrones

Estudio y preparación de patrones para las distintas técnicas de medida de radiactividad ambiental, con el fin de poder garantizar la trazabilidad de los patrones.

Grupo de Incertidumbres

Elaboración de procedimientos para el cálculo de las incertidumbres asociadas a las medidas de radiactividad de muestras ambientales con el fin de facilitar la aplicación de las normas ISO en este campo.

Grupo de Normas

Este grupo se subdivide en los subgrupos siguientes:

a) Normas para el muestreo

Elaboración de prenormas y procedimientos para la toma de muestras de diferentes tipos de matrices: suelos, agua, aire,...

b) Normas para la preparación y preservación de muestras

Elaboración de prenormas y procedimientos para la conservación de las muestras una vez que éstas han llegado a alguno de los laboratorios, para su caracterización radiológica.

c) Normas para los procedimientos analíticos

Elaboración de prenormas y procedimientos para la determinación de los distintos parámetros radiológicos que permiten la caracterización de las muestras ambientales.

d) Normas para los equipos

Elaboración de prenormas y procedimientos para la calibración y medida de distintos sistemas de detección de radiación.

Los distintos grupos han elaborado ya algunos documentos, pero el trabajo es a largo plazo puesto que son muchas las variables y modalidades que hay que distinguir:

- Qué tipo de actividad se mide: Alfa, Beta o Gamma.
- Qué tipo de fenómeno físico se utiliza para la medición, lo que da lugar a distintos tipos de detectores.
- Qué tipo de material (líquido, sólido o gas) es muestreado y analizado.

3. ELABORACIÓN DE MANUALES Y PROTOCOLOS

En los laboratorios de radiactividad ambiental del Área, se están elaborando una serie de protocolos para la preparación química y medida de los diferentes parámetros radiactivos del agua: índice de actividad alfa total, índice de actividad beta total, índice de actividad beta resto, tritio, determinación de la espectrometría gamma y medida del cesio-137.

Por otra parte, también se están elaborando protocolos para la determinación de diferentes parámetros químicos del agua, como son: el aspecto, pH, conductividad y concentración de potasio.

Los diferentes protocolos hacen referencia a la preparación y a la medida de las muestras, pero también es necesario tener la seguridad de que los sistemas de medida funcionan correctamente. Por ello también es necesaria la elaboración de protocolos para el control de calidad de los diferentes sistemas de medida: centelleo sólido, contadores proporcionales, espectrometría gamma, contadores de centelleo líquido y espectrómetro de absorción atómica.

Determinación del aspecto

El aspecto de cada muestra se especifica con el fin de registrar su apariencia física general. Para ello se describen brevemente sus características visibles, según una nomenclatura normalizada.

Determinación del pH

El pH es un indicador de la concentración de los iones hidrógeno presentes en la muestra de agua, a una temperatura



FOTO 1. Vista general del laboratorio de preparaciones radioquímicas.

dada. Su medida se efectúa con un pHmetro que en esencia es un voltímetro.

Determinación de la conductividad

La conductividad de una muestra de agua indica la facilidad para conducir la corriente eléctrica y depende de la concentración de los iones presentes, a una temperatura dada. Se mide mediante un conductímetro, que en esencia es un amperímetro.

Determinación de potasio

El potasio presente en las muestras es medido utilizando el sistema de emisión atómica. Esta técnica se basa en suministrar energía a la muestra mediante una llama con el fin de conseguir átomos en estado excitado. Estos átomos al volver al estado fundamental emiten energía luminosa a una determinada longitud de onda. La intensidad luminosa emitida es proporcional a la concentración del elemento en cuestión.

Índice de actividad alfa total

La radioactividad debida a los emisores alfa presentes en las muestras puede ser medida por el método de evaporación o por el de coprecipitación. Ambos protocolos establecen los requisitos para la preparación química, medida y cálculo de este índice.

En el método de evaporación, la muestra de agua acidulada es concentrada por evaporación hasta un pequeño volumen. El concentrado se lleva a sequedad en una plancheta de acero inoxidable en la que se realiza el recuento de las emisiones alfa del residuo obtenido, mediante un contador de centelleo sólido de ZnS(Ag).

Este sistema de recuento está formado en esencia por una sustancia luminiscente y un fotomultiplicador. La sustancia luminiscente, al ser atravesada por una partícula cargada ó un fotón emite luz visible ó ultravioleta en forma de destellos. El fotomultiplicador, mediante un sistema de alta tensión en cascada, transforma el destello luminoso en un impulso eléctrico amplificado, susceptible de ser contado.

En el método de coprecipitación, se realiza una precipi-

tación selectiva del radio-226 y sus isótopos, seguida de una coprecipitación de los actínidos. Ambos precipitados se separan simultáneamente por filtración, siendo sus emisiones alfa medidas en un contador de centelleo sólido de ZnS(Ag).

Índice de actividad beta total

Este protocolo establece los requisitos para la preparación química, medida y cálculo de la radiactividad debida a los emisores beta presentes en las muestras. La muestra de agua acidulada es concentrada por evaporación hasta un pequeño volumen. El concentrado se lleva a sequedad en una plancheta de acero inoxidable en la que se realiza el recuento de las emisiones beta del residuo obtenido, mediante un contador proporcional. Este sistema consiste en un detector de ionización gaseosa que está formado por un recinto lleno de una mezcla gaseosa (argón-metano) a presión controlada, en el que se encuentran dos electrodos aislados entre sí y a los que se aplica una tensión eléctrica. Al pasar una radiación, el gas se ioniza y las cargas liberadas son atraídas por los electrodos de signo contrario, originándose impulsos eléctricos susceptibles de ser medidos.

Índice de actividad beta resto

Este índice se define como la diferencia entre el índice de actividad beta total y la actividad beta debida al potasio-40. La contribución de las emisiones beta debidas al potasio-40, se obtiene a partir de la medida de la concentración de potasio previamente realizada por espectrofotometría de emisión atómica.

Concentración de tritio

La concentración de tritio puede ser medida por el método de medida directa o por el de concentración electrolítica.

En el método de medida directa, la muestra se filtra y se vierte en un vial de polietileno donde se mezcla con una sustancia luminiscente, el centelleador líquido, formando un gel. El vial se introduce en el espectrofotómetro de centelleo líquido, que en esencia consiste en dos fotomultiplicadores que transforman las señales luminosas emitidas por la muestra en impulsos eléctricos, susceptibles de ser contados.



FOTO 2. Vista general del laboratorio de medidas.

En el método de concentración electrolítica, la muestra, una vez destilada y acidulada, se descompone electrolíticamente y se concentra, obteniéndose un residuo enriquecido en tritio; después se realiza una segunda destilación y se acondiciona la muestra para su medida en el espectrofotómetro de centelleo líquido.

Espectrometría gamma

Para la medida de los emisores gamma presentes en la muestra de agua, se realiza una ligera acidulación de la muestra, que se vierte en un recipiente tipo Marinelli y se mide por medio de detectores de germanio ultrapuro. El espectro obtenido informa sobre los principales emisores gamma, productos de fisión, activación y corrosión, así como sobre los isótopos naturales.

Determinación del cesio-137

En el método de la determinación de cesio-137 en muestras de agua, se adiciona inicialmente un portador de cesio estable, trazador de cesio-134 y, finalmente, después de acidular la muestra, se añade una cantidad determinada de molibdenofosfato amónico (AMP) que arrastra el cesio de la muestra. En general, con 0,5 g de AMP por litro de muestra, y 0,6 mg de Cs⁺ por litro de muestra, los rendimientos químicos son de un cien por cien. El precipitado así formado se deja en reposo, al menos 24 horas y en sucesivos pasos se elimina el agua sobrenadante para adaptar al final la muestra a un recipiente adecuado para su recuento por espectrometría gamma de alta resolución.

Sistema de centelleo sólido

La interacción de la radiación alfa con el ZnS(Ag) (centelleador sólido) produce unos destellos de luz que son recogidos por un tubo fotomultiplicador y la señal es procesada por la correspondiente cadena electrónica asociada. El correcto funcionamiento del sistema se evalúa con los diferentes protocolos de calidad que se han elaborado:

- Procedimiento para la determinación del fondo.
- Procedimiento para la determinación de la eficiencia.
- Procedimiento para el control de la eficiencia.
- Procedimiento para la puesta a punto.

Contadores proporcionales

La interacción de la radiación beta con el gas encerrado en la cámara del sistema contador produce ionizaciones en el medio. Las cargas son recolectadas y el impulso electrónico es tratado por la correspondiente cadena electrónica para producir una señal eléctrica que se cuenta y registra. El correcto funcionamiento del sistema se evalúa con los diferentes protocolos de calidad que se han elaborado:

- Procedimiento para la determinación del fondo.
- Procedimiento para la determinación de la eficiencia.
- Procedimiento para el control de la eficiencia.
- Procedimiento para la puesta a punto.

Sistema de espectrometría gamma

La radiación gamma emitida produce desplazamientos de pares hueco-electrón en un semiconductor, que producen una señal electrónica que es recogida por la correspondiente cadena electrónica, produciendo una señal eléctrica que se cuenta y registra. El correcto funcionamiento del sistema se evalúa con los diferentes protocolos de calidad que se han elaborado:

- Procedimiento para la determinación del fondo.
- Procedimiento para la calibración en energía.
- Procedimiento para la calibración en eficiencia.
- Procedimiento para el control de calidad del sistema.

Contadores de centelleo en fase líquida

La muestra a medir se mezcla con un líquido de centelleo que es el detector.

Las radiaciones alfa y beta presentes en una mezcla excitan las moléculas del medio y en la correspondiente desexcitación se emite luz a diferentes longitudes de onda. Esta luz es desplazada a aquellas longitudes de máxima detección de los tubos fotomultiplicadores del sistema contador. La señal es procesada por la correspondiente cadena electrónica aso-



FOTO 3. Detalle de los equipos de medida alfa.

muestra directamente, lo cual no presenta problemas en el caso de muestras de aguas con baja salinidad, pero en el caso de aguas salobres (marinas,...) se obtienen resultados distorsionados al alza a causa de la complejidad de la matriz y la presencia de numerosos interferentes.

Diversos métodos analíticos pueden aplicarse a las muestras de aguas salobres, pero el que se ha adoptado en los laboratorios del Área es el método de adición de cesio como supresor de ionización, ya que elimina las interferencias existentes de una forma más eficaz que los otros métodos experimentados.

Se determinó que el factor que relaciona la concentración de potasio disuelto en la muestra con la actividad beta debida al potasio-40 en la misma es $0,02769 \pm 0,0072$ Becquerelios por miligramo (Bq/mg) de potasio.

La media de la concentración de potasio obtenida al analizar las ciento veinticuatro muestras de agua de mar correspondientes a muestreos trimestrales en los años 1996, 1997 y 1998 fue de 416 ± 32 ppm, que corresponde a una actividad beta de potasio-40 de $11,5 \pm 3,1$ Bq/l.

La concentración de potasio y por lo tanto la actividad beta debida al potasio-40 es mayor en las costas españolas del mar Mediterráneo que en las del océano Atlántico, variando según los puntos de muestreo entre los valores de $358,9 \pm 7,2$ ppm, obtenido en el cabo Silleiro y $449,6 \pm 9,0$ ppm, obtenido en el puerto de Cartagena.

Puesta a punto de un contador proporcional para la medida simultánea de la actividad alfa y beta

(Extracto del artículo del número 119, pp 5-12, de *Ingeniería Civil*, 2000)

El procedimiento habitual para la determinación de los índices de actividad alfa total y beta total en muestras de agua, consiste en la evaporación a sequedad de un determinado volumen de muestra sobre una plancheta de acero inoxidable de 5 cm de diámetro. La posterior medida se realiza mediante un sistema de centelleo sólido de sulfuro de zinc (medida del índice de actividad alfa total) o mediante un contador proporcional de gas de muy bajo fondo (medida de los índices de actividad alfa y/o beta total).

El incremento de la seguridad en la medida simultánea de los índices de actividad alfa total y beta total, se ha obtenido mediante la puesta a punto de un contador proporcional de gas con dos modos de recuento (uno secuencial, con diferente voltaje para cada tipo de radiactividad y otro simultáneo, con el mismo voltaje para ambas medidas, con lo que este segundo modo de recuento requiere un tiempo de medida que es la mitad del tiempo requerido por el primero).

Para establecer las condiciones idóneas de los modos de medida, es necesaria la determinación de su curva característica y de su voltaje óptimo, que es el voltaje que proporciona la mejor figura de mérito, ya definida anteriormente.

Se define *spillover* en la ventana de medición de partículas alfa, como la fracción de partículas beta contadas en esa ventana cuando se mide un patrón de radiación beta. Análogamente se define *spillover* en la ventana de medición de partículas beta, como la fracción de partículas alfa contadas en esta otra ventana al medir un patrón de radiación alfa.

La experimentación constó de cuatro fases:

- 1.^a Determinación de las curvas características con los patrones, realizándose medidas durante 5 minutos en incrementos de voltaje de 25 V.
- 2.^a Determinación de las eficiencias y de los fondos, realizándose mediciones durante 1000 minutos para cada incremento de voltaje (de 50 V en 50 V).
- 3.^a Determinación de los *spillover* tanto en modo secuencial como en el modo simultáneo.
- 4.^a Determinación de las figuras de mérito.

Se llegó entre otras a las siguientes conclusiones:

1. Se han delimitado con precisión en ambos modos de recuento y para cada tipo de radiación los *plateau*, los fondos y las eficiencias en los voltajes optimizados, los *spillover* así como las figuras de mérito y también los voltajes óptimos de recuento.
2. Las características de la medida beta no se ven prácticamente alteradas al cambiar del modo de medida secuencial al simultáneo.

Parámetros que influyen en la eficiencia de recuento beta en un contador proporcional

(Extracto del artículo del número 122, pp 101-107, de *Ingeniería Civil*, 2001)

La eficiencia en un contador proporcional depende de:

- La energía de la emisión beta, la geometría de recuento (ángulo sólido de recepción por el detector).
- El factor de autoabsorción.
- El factor de retrodispersión (choques elásticos con los núcleos atómicos del medio penetrado) que en este caso queda englobado en el factor de autoabsorción.

El factor de autoabsorción puede ser descrito mediante la fórmula:

$$F_a = \frac{1 - e^{-\mu x}}{\mu x}$$

donde x es el espesor másico de la fuente (densidad superficial), expresado en g/cm^2 y μ es el coeficiente de absorción másico, expresado en dimensiones inversas a las de x , es decir en $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$.

Este coeficiente de absorción μ se puede determinar por dos procedimientos, bien a través de diferentes filtros absorbentes (discos de aluminio), o bien mediante la preparación de planchetas con diferente espesor másico.

Para estudiar la influencia de la geometría (ángulo sólido de incidencia en el tubo detector) en el recuento, se prepararon ocho planchetas con patrón de estroncio-90/itrio-90, ocupando cada una, una superficie mayor delimitada por cada una de las ocho ranuras concéntricas de las planchetas.

Se efectuaron los siguientes estudios preliminares:

1. Influencia de la energía de los diferentes emisores en la eficiencia de recuento.
2. Influencia de la distribución del patrón en la plancheta para la determinación de la eficiencia de recuento.
3. Determinación del factor de autoabsorción a través del coeficiente de absorción para diferentes fuentes emisoras beta.
4. Determinación del factor de autoabsorción del potasio-40 a través de la curva de autoabsorción.

A la vista de los resultados obtenidos, se llegó entre otras a las siguientes conclusiones:

1. a) El *plateau* de los emisores beta menos energéticos es mayor que el de los más energéticos.
- b) El potasio-40 es el que presenta una mayor eficiencia.
- c) Para potenciales bajos (1000 a 1200 V), los emisores beta menos energéticos tienen una mayor eficiencia de recuento.
2. La eficiencia de los emisores beta en un contador proporcional aumenta rápidamente hasta aproximadamente 600 KeV, situándose la eficiencia en torno a un 40%, por encima de este valor. Esto se debe a que para las ener-

gías inferiores, la radiación beta es absorbida por la lámina *Mylar* situada entre la fuente patrón y el detector.

3. Mediante el empleo de filtros absorbentes de aluminio, se ha obtenido una expresión que relaciona la energía del emisor E con el coeficiente de absorción μ , lo cual permite la determinación del factor de autoabsorción en el rango desde 0,5 a 2,3 MeV, simplemente aplicando la fórmula anteriormente expuesta.
4. El valor del coeficiente de absorción determinado a partir de la curva de autoabsorción del KCl coincide (diferencia no significativa) con el valor obtenido utilizando filtros absorbentes de aluminio.



GEOCONSULT
Ingenieros Consultores, S.A.

La seguridad en los túneles,
Objetivo Preferente

C/ Valentín Beato, 24 - 4ª - 8B
Tls. 91.304.18.46 - 91.304.20.47
Fax: 91.304.20.47
28037 MADRID
www.geoconsult.es
informacion@geoconsult.es

