

Control de Calidad en Espectrometría Gamma de Bajo Nivel

Alfonso Salazar y Guillermo Loría
Laboratorio de Física Nuclear Aplicada
Escuela de Física, Universidad de Costa Rica
San José Costa Rica

Abstract: Low level gamma spectrometry is a very precise technique to measure the concentration of nuclides present in different samples in Bq kg^{-1} . The quality control of the procedure and method used can be carried out by intercomparison exercises with world recognized institutions. During the last three years the Nuclear Physics Laboratory of the University of Costa Rica (LAFNA) has been participating in the international quality assessment program (QAP) carried out by the Environmental Measurements Laboratory (EML), Department of Energy, USA. The results show a very good agreement with the rest of the participant laboratories. This provides a very objective evaluation of the high precision of the methods used by LAFNA in low level spectroscopy measurements.

Subject headings: Gamma Spectrometry, nuclides, intercomparison exercise

Resumen: La espectrometría gamma de bajo nivel es una técnica que permite medir la concentración específica, en Bq kg^{-1} , de isótopos en muestras de origen vegetal, animal o mineral. Una de las formas de control en la calidad de los resultados se verifica mediante auditorías externas que se realizan en jornadas de inter-comparación con otros laboratorios. En los tres últimos años, el Laboratorio de Física Nuclear Aplicada (LAFNA) de la Universidad de Costa Rica ha participado en cinco ejercicios de inter-comparación con el Laboratorio de Medidas Ambientales (EML) del Departamento de Energía de Estados Unidos. En este estudio se presentan los resultados de las inter-comparaciones, los que determinan el grado de calidad de la espectroscopía gamma de bajo nivel que el LAFNA está utilizando para evaluar isótopos radiactivos en el medio ambiente y en los servicios que presta a la industria exportadora nacional.

Descriptores: Espectrometría gamma, nucleidos, intercomparación

1: Introducción

La espectrometría gamma de bajo nivel es una técnica que permite evaluar la concentración de un isótopo en una muestra vegetal, animal o mineral, a través del espectro de emisión de las radiaciones gamma (122 a 2000 keV) emitidas por los nucleidos naturales o artificiales, presentes en ella. La espectrometría de radiaciones gamma de bajo nivel se aplica a la protección radiológica (Fray and O'Riordan, 1984), estudios ambientales y por precipitación radiactiva desde la atmósfera (Moore, 1984; Mora y Salazar, 1996), estudios biológicos o biomédicos (Heusser, 1989), datación geológica (Currie, 1968), muestreos de transporte atmosférico (Yavav y Arnold, 1990) y estudios de presencia de radionucleidos en productos de consumo humano (Loría y Mora, 1994 y 1997), estudios de radionucleidos en biocaptadores (Loría y Banichevich, 1998) y análisis por activación neutrónica (Loría y Salazar, 1987).

La calidad de la medición de los isótopos presentes en una muestra depende: a) del grado de precisión con que se construyen las curvas de calibración y eficiencia del sistema de conteo, b) de la medición de la radiación de fondo y c) de la optimización del tiempo de conteo. A lo anterior hay que agregar las auditorías externas que debe realizarse a la calidad de los resultados. Estas se realizan mediante ejercicios de intercomparación. Varios laboratorios simultáneamente miden la concentración de radionucleidos en muestras vegetales o minerales suministradas por organismos internacionales, tales como la Agencia Internacional de Energía Atómica, Departamento de Energía del gobierno de Estados Unidos de América y la Universidad de Colorado, entre otros.

El Laboratorio de Física Nuclear Aplicada ha venido participando desde marzo de 1997 en el Programa de Evaluación de la Calidad (Quality Assessment Programa-QAP) que mantiene dos veces por año el Laboratorio de Medidas Ambientales (EML) del Departamento de Energía de los Estados Unidos. Este programa está diseñado para establecer un control sobre la calidad de la medición de radiaciones ambientales. El programa promueve la participación de varios laboratorios alrededor del mundo, los que valoran un conjunto de muestras seleccionadas.

El EML suministra tres o cuatro matrices cuya distribución típica consiste en un filtro de aire simulado, 200 g de suelo, 100 g de vegetal en polvo y 500 ml de agua. Estas muestras de matrices naturales y sintéticas, según corresponda, son preparadas y analizadas por el EML y posteriormente son distribuidas dos veces por año entre los laboratorios participantes. La participación de los laboratorios consiste en la utilización de sus técnicas para evaluar un número determinado de radionucleidos presentes en las muestras. La evaluación se realiza dentro de los tres meses posteriores al envío de las muestras y los resultados de la intercomparación son publicados vía Internet por el EML. Estos valores les permiten a los laboratorios participantes valorar en una forma consistente, no sólo la calidad en la instrumentación utilizada sino también los programas de evaluación de espectros y de cuantificación de los radionucleidos, que son propios de cada laboratorio.

Los resultados recibidos por el EML desde 1982, les ha permitido establecer una gran base de datos, de tal manera que para cada radionucleido por matriz existen a disposición gran cantidad de intercomparaciones, niveles de actividad y un mayor número de participantes cada año.

Utilizando la técnica de espectroscopía gamma de bajo nivel con detectores de Germanio Hiperpuro, en el LAFNA se han valorado los radionucleidos: Sb-125, Cs-134, Cs-137, Mn-54, Co-60 y K-40. El objetivo de este trabajo es dar a conocer los resultados de los ejercicios de intercomparación realizados con los entes mencionados y establecer el nivel de calidad de la espectroscopía gamma de bajo nivel que se desarrolla en Costa Rica.

2. Materiales y Métodos

2.1. Muestras

Las muestras seleccionadas y preparadas por el Environmental Measurements Laboratory (EML) del Departamento de Energía de los Estados Unidos y enviadas a cada uno de los laboratorios participantes, se identifican y describen a continuación /bf SUELO (SO) La muestra consiste en aproximadamente 200 gramos de suelo pulverizado, secado al aire y emblandecido. El rango de homogeneidad en la cantidad utilizada de la muestra oscila entre 2 y 600 gramos. Aunque el número de isótopos a ser analizados es usualmente mayor, nuestro estudio se restringió a la medida de los isótopos emisores gamma. Para este tipo de muestra se evalúan los radionucleidos ^{40}K , ^{60}Co , ^{137}Cs . En una de las intercomparaciones se evalúan también los radionucleidos de las cadenas de desintegración del Uranio y del Torio. Estos corresponden a ^{208}Tl , ^{212}Bi , ^{212}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Pb , ^{226}Ra y ^{228}Ac . Los resultados, incluyendo la incertidumbre, se reportan en Bq kg^{-1} .

VEGETAL (VE)

La muestra consiste en 100 gramos de vegetal secado por congelamiento o en ceniza, que luego es pulverizado, tamizado y emblandecido. La homogeneidad oscila entre 2 y 300 gramos. Al igual que en el caso de las muestras de suelo, se analizan los radionucleidos emisores gamma, que corresponden al ^{40}K , ^{60}Co , ^{137}Cs . Los resultados, incluyendo la incertidumbre, se reportan en Bq kg^{-1} .

FILTRO PARA AIRE (AI)

La muestra consiste en un filtro de fibra de vidrio de 7 cm de diámetro el cual ha sido humedecido con 0.1 g de una solución de radionucleidos por medio de una pipeta automática y luego secado al aire. La distribución de la solución en el filtro se hace homogénea depositando gotas en forma regular que son absorbidas uniformemente por el filtro. El filtro se coloca a 1 cm de la superficie del detector y dentro de la bolsa plástica para evitar la contaminación del detector. Esta posición no altera la lectura de los emisores gamma. Un número mayor de radionucleidos son analizados en esta muestra y corresponden a ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs y ^{137}Cs . Para los filtros, el resultado de las concentraciones de los isótopos se reporta en Bq filtro^{-1} .

AGUA (WA)

La muestra de agua es acidificada con HCl para evitar la precipitación de los nucleidos y corresponde a un volumen total de 455 ml. El transporte se realiza con adecuadas medidas de seguridad para evitar la evaporación. Los radionucleidos determinados en esta muestra corresponden a ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{137}Cs y los resultados se reportan en Bq l^{-1} . La determinación de radionucleidos en el agua (W) se realiza solo en una de las intercomparaciones.

2.2. Calibración y Eficiencia

La determinación de la concentración de los isótopos en Bq kg^{-1} , Bq filtro^{-1} o en Bq l^{-1} , depende directamente de la calibración en energía del sistema de medición y de la eficiencia de conteo. Para cada tipo de muestra se establecen las condiciones básicas para la medición de estos parámetros.

Para muestras sólidas y líquidas, la calibración en energía y la eficiencia se determinan utilizando un recipiente de latón con capacidad de 100 cc, el cual se llena hasta un 80% de su volumen con arena de cuarzo recolectada en Cancún, México. Esta arena específica, por su alto contenido de cuarzo, es inerte a reaccionar con el medio ácido de la mezcla de nucleidos, lo que garantiza una mezcla homogénea. Una cantidad de 3,4616 gramos de solución estándar se vertió sobre la arena directamente y se homogenizó utilizando alcohol etílico. El recipiente es colocado en un horno Fisher a 80 °C para evaporar el alcohol, posteriormente se tapa, se sella con silicona y se forra con plástico adhesivo para evitar fugas que pudieran causar contaminación. El estándar utilizado está formado por los radionucleidos ^{57}Co , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{88}Y , ^{113}Sn , $^{123\text{m}}\text{Te}$ y ^{137}Cs .

Para calcular la eficiencia, el recipiente se coloca directamente sobre el detector y se aísla la muestra de la radiación ambiente colocándole un castillo de plomo. El espectro obtenido después de 10800 s de conteo de la muestra se analiza por medio de la evaluación de los fotopicos y la actividad de cada uno de los nucleidos. La Fig.1 presenta las dos curvas de eficiencia calculadas, para los detectores Germanio Hiperpuro de Canberra y de Ortec respectivamente.

La calibración y eficiencia para el conteo de los elementos presentes en el filtro se realiza en forma separada, utilizando un filtro estándar. Este se preparó utilizando un filtro de celulosa de 7 centímetros de diámetro sobre el cual se deposita homogéneamente un cantidad de 0.15 gramos de solución estándar S.N.-A6228 suministrada por la Agencia Internacional de Energía Atómica. El filtro es colocado en una cámara de secado al vacío, y finalmente en un sobre plástico para su protección y manipulación.

La eficiencia se mide colocando el filtro a una altura de un centímetro del detector Ortec sobre un anillo de plexiglass del mismo diámetro del detector. Con un tiempo de conteo de 15.000 segundos, se analiza y cuantifica la actividad de cada uno de los nucleidos de la mezcla de isótopos del estándar. La eficiencia corresponde a la razón entre la actividad medida y la actividad teórica certificada. El programa de análisis de espectros utiliza un modelo lineal para la eficiencia y los resultados, utilizando los nucleidos ^{60}Co , ^{88}Y y ^{137}Cs , se muestran en la figura 2.

2.3. Preparación de las Muestras

Los filtros no requieren ningún tipo de tratamiento previo al conteo en los detectores. La muestra de filtro se mantiene dentro de una envoltura plástica. Esta se coloca sobre un anillo de plexiglas a un centímetro de la superficie del detector, igual a la distancia en que se mide la eficiencia del sistema de detección. El espectro de radiación gamma se obtiene a un tiempo de conteo de 60.000 segundos, definido para todos los análisis de la intercomparación. El programa CONTI permite determinar la concentración específica de cada isótopo en Bq filtro^{-1} de cada uno de los radionucleidos presentes en la muestra. Recipientes de latón de 100 ml, previamente lavados con alcohol y pesados, se utilizan para depositar las muestras de suelo y de vegetal. Se llenan con la muestra en polvo hasta 80% de su capacidad. La cantidad de muestra utilizada se determinó por diferencia de peso. La muestra es etiquetada y luego sellada con plástico adherible para prevenir pérdidas de muestra y contaminación del sistema de detección, y se mantiene de esa forma durante al menos un mes, con el fin de establecer equilibrio secular en algunos isótopos.

El conteo de las muestras se realiza colocando el recipiente de forma centrada y directamente sobre la superficie del detector. El tiempo de conteo también se fija en 60 000 segundos y el espectro recolectado se analiza utilizando el programa CONTI.

Las cantidades de muestra que se utilizaron en cada intercomparación, se presentan en la siguiente tabla.

Tabla de Intercomparación

Intercomparación	Masa de Muestra utilizada en Gramos	
	Suelo	Vegetal
QAP-9703	57.41	81.9
QAP-9709	83.81	49.75
QAP-9803	73.10	62.00
QAP-9809	71.01	58.25

2.4. Espectrometría Gamma

Las emisiones gamma emitidas por cada uno de los isótopos presentes en las muestras se detectan y analizan utilizando un sistema de conteo de bajo nivel formado por un detector de Germanio hiperpuro, Ortec, un amplificador (Canberra -2025) y un multicanal Canberra S100 en el cual se recogen los espectros característicos. El tiempo de conteo por muestra es de 60 000 s, con el fin de obtener errores estadísticos inferiores al 5%.

Los espectros de radiación gamma que se reciben del multicanal se modifican en su formato de presentación para permitir su evaluación en el programa de cómputo CONTI. Por medio de este programa se realiza la cuantificación de las actividades respectivas de los isótopos asociados a cada uno de los fotopicos gamma. Una evaluación precisa requiere que los fotopicos analizados mediante el programa CONTI no deben encontrarse con interferencia y no deben formar dobletes o tripletes entre ellos.

El espectro de la radiación natural de fondo (background) se cuantifica en forma directa e independiente. Este espectro se substraee íntegramente del espectro de la muestra. El programa realiza los cálculos de concentración luego de suministrarle las constantes asociadas a la curva de eficiencia respectiva. Los resultados se presentan en unidades de Bq kg^{-1} , Bq filtro^{-1} y Bq l^{-1} según corresponda, por lo que requiere el valor de la masa total de la muestra analizada. La desviación estándar que presenta cada concentración está asociada al error por conteo evaluado en cada fotopico y a la desviación medida en la curva de eficiencia.

3. Discusión y Resultados

Los resultados del análisis de las muestras utilizadas para la intercomparación, permiten evaluar dos aspectos:

- a) El proceso de cálculo de la eficiencia del sistema de detección para una geometría determinada y
- b) El programa de cómputo CONTI, para la evaluación de los niveles de emisión gamma de los radionucleidos.

Un adecuado mecanismo de control de calidad sobre la Espectrometría Gamma de Bajo Nivel realizada en el Laboratorio de Física Nuclear Aplicada se establece al comparar los resultados obtenidos por otros laboratorios, lo que se logra a través de programas de intercomparación, como el establecido por el Laboratorio de Medidas Ambientales, del Departamento de Energía de los Estados Unidos.

La muestra de suelo y la de vegetal se depositan en un recipiente de la misma capacidad y se someten a un conteo radioactivo bajo la misma geometría. Una misma curva de eficiencia se utiliza para ambas muestras, reduciendo el tiempo de análisis y los resultados que se presentan en la tabla 2, concuerdan con los obtenidos por el Laboratorio de Medidas Ambientales (EML).

La situación se presenta diferente cuando se analiza el filtro, debido a que se prepara una eficiencia diferente. El filtro es colocado a un 1 cm por encima del detector con el fin de ampliar el ángulo sólido de detección para evaluar la concentración de cada isótopo en Bq/filtro.

La muestra de agua se presenta en una sola intercomparación. La serie de medidas de seguridad adicionales no permitieron que se realizaran intercomparaciones sucesivas en las cuales se analizaran muestras de agua. Los resultados obtenidos para las cuatro intercomparaciones QAP9703, QAP9709, QAP9803, QAP9809, se presentan en la tabla 2. Esta presenta también los resultados promediados por el Laboratorio de Medidas Ambientales (EML), que corresponden a los valores obtenidos por el total de 162 laboratorios participantes.

4. Conclusiones

Los resultados se muestran coincidentes con aquellos obtenidos tanto por el Laboratorio de Medidas Ambientales como por los demás participantes. Esta concordancia es más evidente en las muestras de suelo y vegetal. Los resultados para el análisis de los isótopos presentes en el filtro no concuerdan adecuadamente. Esta situación se ha atribuido principalmente a dos factores:

- 1) Tiempo de conteo de las muestras muy bajo.
- 2) Una curva de eficiencia calculada con muy pocos elementos radiactivos.

Lo que da como resultado un error alto en el ajuste.

Los resultados observados en las cuatro intercomparaciones realizadas muestran un adecuado nivel en la calidad de la Espectroscopía de bajo nivel utilizada. Los resultados de los análisis de las muestras de suelo o vegetal presentan concordancias apropiadas que garantizan dicha metodología. El control de calidad sobre los resultados del análisis de los filtros en las últimas intercomparaciones, y de la única muestra de agua de la tercera intercomparación, permite encontrar y definir las causas de los errores que se han de corregir con el fin de garantizar resultados confiables.

5. Referencias Bibliográficas

- [1] Currie L.A.(1968) *Anual Chem* 40-587
- [2] Fray F.A. y Oriordan M.C. (1984) *Nuclear Instrument. Method*, Vol.23, No.1, pp 223-540
- [3] Heusser G. (1989) *Progressive Radiation Prot.* FS-89-485, 468 ISSN 1013-4506
- [4] Loría L. Y Mora P. (1994) *Radiation Measurements*, Vol. 23, No.1 pp 731-736
- [5] G. Loría y A. Salazar. (1987) *Ciencia y Tecnología*, 11(1), 65-75.
- [6] L.G. Loría y Banichevich A. (1998) *Bio. Trop. Supl.* 5, 81-90
- [7] Moore W.S. (1984) *Nuclear Instrument.Method.* 222-459
- [8] Mora P. y Salazar A. (1996) *J. Trace and Microprobe Techniques* 14(4), pp 727-738
- [9] Mora P. y Loría L.G. (1997) *J. Trace and Microprobe Tech.* 15(3), pp 307-31
- [10] Yadav J.S. and Arnold J.R. (1990) *Nucl. Instr. Meth.* A295, 241 10.

Tabla 1: Resultados de la espectrometría gamma de bajo nivel, para muestras de suelo, vegetal y filtro de aire para el año 1997. Valores comparativos dentro del programa QAP (Quality Assurance Program) con el Environmental Measurements Laboratory (EML), Departamento de Energía, E.E.U.U. y el Laboratorio de Física Nuclear (LAFNA), Universidad de Costa Rica. Los valores se expresan en Bq/kg y Bq/filtro.

QAP 9703 (marzo a junio, 1997)						
Muestra	Suelo (Bq/kg)		Vegetal (Bq/kg)		Aire (Bq/filtro)	
Isótopo	LAFNA	EML	LAFNA	EML	LAFNA	EML
K-40	319 ± 40	334 ± 7	848 ± 45	812 ± 13		
Mn-54					8.4 ± 0.5	7.6 ± 0.6
Co-60			13.0 ± 2.0	12.5 ± 0.3	6.1 ± 0.4	5.0 ± 0.3
Sb-125					14.8 ± 0.7	12.3 ± 1.0
Cs-134					13.5 ± 0.5	10.9 ± 0.8
Cs-137	1069 ± 42	826 ± 14	221 ± 9	189 ± 7	10.3 ± 0.6	8.7 ± 0.8

QAP 9709 (setiembre a noviembre, 1997)						
Muestra	Suelo (Bq/kg)		Vegetal (Bq/kg)		Aire (Bq/filtro)	
Isótopo	LAFNA	EML	LAFNA	EML	LAFNA	EML
K-40	303 ± 49	315 ± 20	1193 ± 99	1130 ± 70		
Mn-54					7.7 ± 0.4	6.7 ± 0.3
Co-60			32 ± 5	32.4 ± 1.6	13.2 ± 0.6	10.7 ± 1.1
Sb-125					21.6 ± 1.0	16.1 ± 0.8
Cs-134					34.0 ± 1.3	28.2 ± 0.8
Cs-137	893 ± 35	810 ± 40	708 ± 29	624 ± 31	8.8 ± 0.4	7.3 ± 0.3

Tabla 2: Resultados de la espectrometría gamma de bajo nivel, para muestras de suelo, vegetal y filtro de aire para el año 1998 y el inicio de 1999. Valores comparativos dentro del programa QAP (Quality Assurance Program) con el Environmental Measurements Laboratory (EML) Departamento de Energía, E.E.U.U. y el Laboratorio de Física Nuclear (LAFNA), Universidad de Costa Rica. Los valores se expresan en Bq/kg y Bq/filtro.

QAP 9803 (marzo a junio, 1998)						
Muestra	Suelo (Bq/kg)		Vegetal (Bq/kg)		Aire (Bq/filtro)	
Isótopo	LAFNA	EML	LAFNA	EML	LAFNA	EML
K-40	453 ± 63	314 ± 10	920 ± 83	708 _{pm25}		
Mn-54					4.7 ± 0.2	5.4 ± 0.5
Co-60			13.2 ± 4.7	10.6 ± 0.2	7.6 ± 0.4	9.1 ± 0.7
Sb-125					10.0 ± 0.6	12.2 ± 1.2
Cs-134					15.6 ± 0.6	19.7 ± 1.4
Cs-137	429 ± 17	330 ± 9	225 ± 10	182 ± 7	9.1 ± 0.4	11.9 ± 0.9

QAP 9809 (setiembre a noviembre, 1998)						
Muestra	Suelo (Bq/kg)		Vegetal (Bq/kg)		Aire (Bq/filtro)	
Isótopo	LAFNA	EML	LAFNA	EML	LAFNA	EML
K-40	328 ± 58	314 ± 13	546 ± 74	460 ± 20		
Mn-54					8.3 ± 0.4	4.9 ± 0.4
Co-60			24.3 ± 3.2	20 ± 1.0	16.2 ± 0.7	9.2 ± 0.6
Sb-125					16.4 ± 0.2	8.9 ± 0.6
Cs-134						
Cs-137	1179 ± 47	954 ± 38	464 ± 19	390 ± 20	38.5 ± 1.5	22.5 ± 1.1

QAP 9903 (marzo a junio, 1999)						
Muestra	Suelo (Bq/kg)		Vegetal (Bq/kg)		Aire (Bq/filtro)	
Isótopo	LAFNA	EML	LAFNA	EML	LAFNA	EML
K-40	453 ± 63	314 ± 10	920 ± 83	708 ± 25		
Mn-54					4.7 ± 0.2	5.4 ± 0.5
Co-60			13.2 ± 4.7	10.6 ± 0.2	7.6 ± 0.4	9.1 ± 0.7
Sb-125					10.0 ± 0.6	12.2 ± 1.2
Cs-134					15.6 ± 0.6	19.7 ± 1.4
Cs-137	429 ± 17	330 ± 9	225 ± 10	182 ± 7	9.1 ± 0.4	11.9 ± 0.9