

CUANTIFICACION DE ^{235}U Y ^{226}Ra EN MUESTRAS DE SUELO POR MEDIO DE ESPECTROMETRIA GAMMA

QUINTERO P. E., ROJAS M.V.P., MONTES M. F. R., GASO P. M. I., CERVANTES N. M. L.

GERENCIA DE INNOVACIÓN TECNOLÓGICA



MX0100072

RESUMEN

En este trabajo presentamos el método de espectrometría gamma que se realiza en el Laboratorio de Vigilancia Radiológica Ambiental utilizando la opción de deconvolución de un software comercial para la cuantificación de ^{235}U y de ^{226}Ra ; también se presenta el método para la corrección de la actividad del ^{226}Ra .

OBJETIVO

Como se sabe el ^{235}U emite una gamma de energía de 185.7 keV, con una probabilidad del 57.5% que se traslapa con la única emisión gamma del ^{226}Ra de 186.2 keV con una probabilidad del 3.3%. Debido al alto grado de complejidad que presentan, por su cercanía en energía las dos líneas gamma para su análisis por espectrometría, ya que, la diferencia es de 0.5 keV, esta diferencia es inferior a la resolución que proporcionan los detectores de germanio hiperpuro. Por tal motivo, hasta la fecha ningún sistema de espectrometría gamma puede separarlos. Además el ^{226}Ra es emisor alfa, tiene una vida media efectiva de 900 días y el cuerpo humano lo metaboliza como lo hace con el calcio. Por estas razones el objetivo de este trabajo es establecer un método para determinar con suficiente exactitud y precisión la concentración de ^{226}Ra en muestras de suelo, para en trabajos posteriores, conocer la incorporación de éste en el hombre a través de la cadena alimenticia.

METODOLOGIA

El ^{226}Ra solo tiene una emisión gamma de 186.2 keV que se traslapa con la energía de la emisión gamma principal del ^{235}U . Sin embargo, el ^{226}Ra decae a ^{222}Rn , éste se convierte a ^{214}Pb y ^{214}Bi alcanzando rápidamente el equilibrio secular con el ^{226}Ra . La probabilidad de decaimiento de los rayos gamma de estos dos últimos radionúclidos, facilita la medición del radio contenido en las muestras a niveles inferiores de ppm. Sin embargo, el potencial de escape del radón requiere que las muestras de suelo se envasen

en contenedores herméticos y se almacenen durante 30 días aproximadamente para que el ^{214}Pb y ^{214}Bi alcancen el equilibrio secular con el ^{226}Ra [1].

Las muestras seleccionadas para este estudio fueron de dos tipos: unas con concentraciones naturales de ^{235}U y ^{226}Ra , bajo la suposición de que el ^{235}U se encuentra en concentración natural respecto al ^{238}U , y otras con concentraciones artificiales de ^{235}U y ^{226}Ra .

El Laboratorio de Vigilancia Radiológica Ambiental (LVRA) cuenta con tres Espectrómetros Gamma con detectores de germanio hiperpuro (HPGe), con las siguientes características: tres detectores con 10.1%, 27.4% y 25% de eficiencia relativa; y 2.2, 2.0 y 2.0 keV de resolución para la energía de 1332.5 del ^{60}Co respectivamente. Cada detector está dentro de un blindaje graduado de 10 cm de Pb, 0.5 cm de Fe, 0.5 cm de Cu, 1.0 cm de lucita. Las dimensiones internas de los blindajes son: 46x36x36 cm para los dos primeros detectores y de 57x53x53 cm para el último detector.

Muestreo y preparación de las muestras

La periodicidad de colección de las muestras y los sitios de muestreo, están establecidas por los Programas de Vigilancia Radiológica Ambiental anuales del LVRA [2], la preparación de las mismas está reportada en IAEA (1989) [3]. Una vez preparadas las muestras, se colocaron en vasos Marinelli de 0.5 l [4]. Los vasos se sellaron y contaron durante 60,000 segundos para determinar la concentración de radio y uranio usando los tres

espectrómetros gamma antes mencionados. Cada muestra se almacenó para esperar que el ^{226}Ra estuviera en equilibrio con sus hijas ^{214}Pb y ^{214}Bi [5]. Después de 30 días [6] las muestras se volvieron a contar bajo las mismas condiciones del primer conteo.

Cálculos

Sabiendo que la concentración de ^{235}U debe ser la misma si se calcula en cualquiera de sus diferentes líneas de emisión (fotopicos) y considerando que algunas de estas líneas están traslapadas con otros fotopicos, se eligió el fotopico causado por la energía de 163.3 keV, debido a que éste se encuentra libre de interferencias. Las actividades de ^{235}U y ^{226}Ra se obtuvieron con la hoja de cálculo como sigue:

$$A_{\text{U-235}(163\text{ keV})} = A_{\text{U-235}(185\text{ keV})}$$

Siendo:

$A_{\text{U-235}(163\text{ keV})}$: la actividad del ^{235}U calculada en el fotopico de 163.3 keV.

$A_{\text{U-235}(185\text{ keV})}$: la actividad del ^{235}U correspondiente a 185.7 keV.

$$ctas_{netas\ 163} = ctas_{163} - cts_{(FONDO)\ 163}$$

Siendo:

$ctas_{netas\ 163}$: las cuentas netas bajo el fotopico de 163.3 keV.

$ctas_{163}$: las cuentas del fotopico de 163.3 keV más cuentas de fondo en esa región.

$cts_{(FONDO)\ 163}$: el fondo total en la región del fotopico de 163.3 keV.

Entonces:

$$A_{163} (\text{Bq kg}^{-1}) = \frac{ctas_{netas\ 163}}{\epsilon_{163} Y_{163} tc w}$$

En la que:

A_{163} : Actividad del ^{235}U en el fotopico de 163.3 keV.

ϵ_{163} : Eficiencia de conteo para la energía de 163.3 keV.

Y_{163} : Probabilidad de emisión de rayo gamma de 163.3 keV.

tc : Tiempo de conteo de muestra.

w : Masa de la muestra en kilogramos.

Por lo tanto:

$$A_{185} (\text{Bq kg}^{-1}) = \frac{ctas_{netas\ 185}}{\epsilon_{185} Y_{185} tc w}$$

Siendo:

A_{185} : la actividad desconocida del ^{235}U en el fotopico de 185.7 keV.

$ctas_{netas\ 185}$: Cuentas en el fotopico de 185.7 keV del ^{235}U menos el fondo en esa región.

ϵ_{185} : Eficiencia de conteo para la energía de 185.7 keV.

Y_{185} : Probabilidad de emisión de rayo gamma de 185.2 keV.

Entonces:

$$\epsilon_{163} Y_{163} tc w = \frac{ctas_{netas\ 163}}{\epsilon_{185} Y_{185} tc w} = \frac{ctas_{netas\ 185}}{\epsilon_{185} Y_{185} tc w}$$

Por lo tanto:

$$ctas_{netas\ 185} = \frac{ctas_{netas\ 163} \epsilon_{185} Y_{185}}{\epsilon_{163} Y_{163}}$$

Donde:

$ctas_{netas\ 185}$: Area neta del pico de 185.7 keV del ^{235}U , debajo del fotopico de 186.2 keV del ^{226}Ra obtenida con la hoja de cálculo.

La actividad del radio corregida se calculó como sigue:

$$A_{Ra-226(186)} = \frac{ctas_{netas(185+186)} - ctas_{netas\ 185}}{\epsilon_{186} Y_{186} tc w}$$

Donde:

$A_{Ra-226(186)}$: Actividad corregida del ^{226}Ra utilizando el valor de las $ctas_{netas\ 185}$ calculadas.

$ctas_{netas(185+186)}$: Area neta del pico compuesto por el radio y el uranio.

RESULTADOS

En la Tabla I se muestran los resultados obtenidos del primer conteo de las muestras, es decir, los radionúclidos de ^{214}Pb y ^{214}Bi en estado de no-equilibrio respecto al ^{226}Ra calculados con el software y la hoja de cálculo comerciales. En la Tabla II se muestran los resultados de los conteos de las muestras que se consideraron alcanzaron el equilibrio, calculadas con el software y con la hoja de cálculo comerciales.

TABLA I
ACTIVIDADES DE RADIO Y SUS HIJAS EN ESTADO DE NO EQUILIBRIO

Muestra	Actividad en (Bq kg ⁻¹)							
	Software ²²⁶ Ra	Hoja ²²⁶ Ra	Software ²¹⁴ Pb	Hoja ²¹⁴ Pb	Software ²¹⁴ Bi	Hoja ²¹⁴ Bi	Software ²³⁵ U	Hoja ²³⁵ U
001CN	6326.4±51.0	80.8±18.5	40.1±4.0	35.5±3.3	34.8±3.3	34.8±5.8	354.2±31.4	365.0±38.5
002CN	5348.2±368.5	68.7±17.2	37.3±3.1	32.1±5.3	30.7±2.5	32.0±5.3	302.0±39.6	297.5±34.8
003CN	17854.0±857	202.1±28.8	87.0±5.6	79.4±8.2	79.0±4.8	73.5±7.8	1064.0±53.7	911.0±60.5
004CN	6868.9±447.9	80.7±18.5	45.5±3.7	61.9±6.8	35.5±2.9	59.6±6.7	395.8±25.8	380.0±33.8
005CN	1357.5±66.5	28.5±11.6	21.2±1.8	17.7±4.8	18.0±1.5	78.6±4.9	78.6±4.7	69.7±17.3
006CN	25.2±16.1	23.3±10.7	5.6±2.0	5.9±4.6	6.3±1.6	6.2±4.7	<5.8	<12.7
007CN	17.9±4.8	12.5±8.4	3.9±0.7	7.2±4.6	3.5±0.5	7.9±4.6	<1.8	<5.3
008CN	50.1±24.3	16.1±11.2	11.9±2.5	11.7±4.9	12.1±4.8	12.1±4.8	<10	<11.7
009CN	25.8±2.3	21.0±10.8	11.6±1.4	10.0±4.6	9.6±4.6	10.5±4.6	<5.2	<5.7
010CN	32.0±18.4	29.5±2.1	12.2±2.1	10.5±1.8	11.0±1.8	10.8±4.9	<5.6	<10.0
011CN	28.4±13.2	32.3±3.9	12.6±1.7	16.3±0.8	10.7±1.4	18.1±0.9	<4.7	<7.3
012CN	27.7±6.1	23.3±10.6	12.1±1.2	10.8±4.6	12.4±1.1	13.1±4.7	<2.5	<4.1
013CN	17.2±9.4	18.7±9.8	9.1±1.4	8.8±4.6	8.2±4.2	8.0±4.6	<4.0	<6.0
015CN	23.9±10.4	26.8±11.3	13.1±1.9	12.1±4.6	11.4±1.1	12.7±4.7	<4.7	<7.9
003MA	22.1±11.6	27.2±11.4	15.3±1.3	13.2±4.7	12.3±1.0	12.5±4.7	<3.6	<5.9
004MA	28.8±7.5	31.4±12.1	18.2±1.6	14.6±4.7	17.2±1.4	15.3±4.5	<3.2	<4.8
005MA	28.4±10.0	16.5±9.3	18.6±1.4	14.3±4.7	15.8±1.2	15.2±4.7	<3.6	<5.7
006MA	16.2±11.5	10.5±7.9	12.6±1.3	10.9±4.6	11.7±2.0	12.3±4.7	<3.8	<5.6
007MA	32.1±27.9	27.0±11.8	16.6±2.3	15.8±4.8	15.2±1.8	14.9±4.9	<6.4	<8.1
008MA	20.2±6.3	17.5±9.5	11.9±1.1	10.7±4.6	11.6±1.0	11.8±4.5	<2.9	<4.6
009MA	66.7±18.0	64.5±2.4	31.1±2.4	28.0±5.1	28.6±2.1	29.0±4.5	<3.6	<5.9
010MA	395.2±31.0	388.7±40.0	344.6±16.8	305.1±25.0	309.2±15.0	328.2±26.8	26.0±3.2	23.8±5.7
011MA	476.3±50.0	472.9±43.7	226.5±16.3	200.7±14.5	218.0±16.0	218.0±10.0	<9.7	<18
013MA	24.8±7.0	16.4±11.2	13.8±4.7	11.9±4.7	12.7±1.0	13.4±4.7	<3.1	<5.5
014MA	2570.9±183.8	1948±88.4	1412±97.7	1255.0±100	1302.0±90.0	1358±109.1	<19.7	<28.2
015MA	21.6±8.7	23.1±10.6	11.2±1.1	10.3±4.6	10.3±1.0	10.6±4.5	<3.0	<5.4
016MA	17.3±8.1	14.2±8.8	10.2±1.0	8.8±4.6	9.3±1.0	8.8±4.6	<2.8	<5.2

TABLA II
ACTIVIDADES DE RADIO Y SUS HIJAS EN ESTADO DE EQUILIBRIO

Muestra	Actividad en (Bq kg ⁻¹)							
	Software ²²⁶ Ra	Hoja ²²⁶ Ra	Software ²¹⁴ Pb	Hoja ²¹⁴ Pb	Software ²¹⁴ Bi	Hoja ²¹⁴ Bi	Software ²³⁵ U	Hoja ²³⁵ U
001CN	6601.5±329.7	86.9±18.6	84.5±6.1	79.4±7.9	79.9±5.6	85.5±8.4	380.2±28.9	368.7±38.4
002CN	5154.9±354.7	69.9±17.3	74.3±5.3	67.5±7.1	67.5±7.1	69.5±7.2	290±27.2	294.2±34.6
003CN	18410.0±888	216.9±29.8	213.2±11.2	197.2±18.3	185.2±18.3	202.4±17.1	1062.0±90.4	936±61.4
004CN	7172.1±467.6	83.0±18.8	86.0±6.1	79.3±7.9	78.8±5.5	78.1±7.9	403.2±67.0	302.0±38.0
005CN	1420.1±69.6	28.0±11.5	29.2±1.9	24.8±5.0	25.3±1.6	26.7±5.1	84.1±5.2	71.8±17.5
006CN	20.7±15.8	24.7±10.9	22.6±2.2	23.8±5.1	20.5±1.9	25.8±5.2	<5.6	<12.6
007CN	23.5±9.4	14.3±8.8	13.9±1.4	10.7±4.8	12.5±1.1	12.3±4.6	<3.9	<5.3
008CN	27.5±16.5	22.8±10.6	19.8±2.8	17.5±5.0	17.0±3.4	18.6±6.3	<5.1	<9.0
009CN	21.7±11.9	23.4±10.7	14.9±1.5	11.4±4.9	13.9±1.6	12.7±4.7	<5	<5.8
010CN	27.3±19.0	24.2±10.8	16.2±2.2	15.2±4.9	15.1±1.9	15.1±5.1	<5.9	<9.7
011CN	26.6±11.2	27.7±12.2	20.4±2.3	12.2±4.7	18.9±2.1	13.0±4.8	<5.0	<7.3
012CN	23.6±5.4	21.6±10.3	16.0±3.2	14.2±4.7	15.8±4.8	15.2±4.7	<1.6	<4.5
013CN	19.2±9.5	22.7±10.4	16.2±1.7	14.5±4.7	14.8±1.6	15.0±4.8	<3.2	<6.1
015CN	12.6±11.9	10.4±7.9	15.4±1.5	14.6±4.7	13.0±1.8	14.3±4.7	<2.5	<7.3
003MA	21.2±10.2	23.8±10.7	21.1±1.6	18.1±5.3	19.6±1.3	19.3±4.8	<3.8	<5.9
004MA	28.8±7.5	29.1±11.7	18.8±1.6	17.0±4.7	17.5±1.5	18.0±4.8	<3.2	<5.0
005MA	16.1±8.8	21.8±10.4	16.0±1.3	16.2±4.7	14.1±1.5	17.4±4.8	<3.1	<5.2
006MA	16.2±11.5	13.6±8.6	16.6±1.5	15.1±4.7	16.1±1.5	17.5±4.8	<3.3	<5.8
007MA	26.2±6.8	29.9±11.8	22.9±2.9	21.5±4.9	22.5±1.8	24.3±5.0	<3.2	<5.2
008MA	20.8±5.3	18.7±9.7	13.8±4.3	17.1±4.7	12.8±5.3	17.9±4.9	<2.8	<4.6
009MA	60.9±9.3	62.7±16.5	51.9±3.6	59.0±6.5	52.3±3.7	52.3±6.3	<3.7	<5.8
010MA	463.8±31.1	420.0±78.6	447.2±21.6	396.9±35	447.0±21.6	422.3±44.3	20.1±4.6	25.3±5.6
011MA	466.9±50.6	445.6±42.2	376.8±56.5	416.5±34.0	369.7±69.8	413.7±34.0	<10.8	<23.0
013MA	19.1±7.0	15.3±9.0	19.1±1.5	17.1±4.7	18.6±1.2	18.0±4.8	<2.8	<5.0
014MA	2142.0±186.6	1945.4±88.3	2068.0±165	2004±142.0	1917±142.0	2177±174.7	<20.3	<40.0
015MA	24.4±6.2	24.0±11.0	19.0±1.7	24.7±5.3	20.0±1.7	23.1±5.0	<3.3	<5.7
016MA	20.5±8.4	18.2±8.8	18.3±1.1	14.8±1.6	17.8±1.0	13.8±4.6	<3.4	<5.8

CONCLUSIONES

Por los resultados obtenidos de las muestras 001CN, 002CN, 003CN, 004CN y 005CN de las tablas I y II, el software no pudo calcular correctamente la actividad de ^{226}Ra debido a que los fotopicos de 163.3 y 143.8 del ^{235}U no cumplieron con los valores de forma a 1/2, 1/10 de FWHM esperado para las distribuciones gaussianas de esa energía [6], por lo que el software no los reconoció como fotopicos y concluyó falsamente que el área del fotopico de 185.7+186.2 en el espectro de estas muestras era causada únicamente por radio. Sin embargo los valores de plomo y bismuto contradicen desde el primer conteo este resultado.

Sin tomar en cuenta las muestras arriba mencionadas, la razón entre las concentraciones de ^{226}Ra calculadas con el software y la hoja de cálculo varió entre 0.7-41.9% para el primer conteo; y de 1.0-30.1% en los resultados de las muestras consideradas en equilibrio. Por lo tanto, los resultados de las muestras en condiciones de equilibrio entre el ^{226}Ra y sus hijas fueron más exactos. El crecimiento hasta el equilibrio secular del ^{214}Pb y ^{214}Bi respecto al primer conteo se encontró en el intervalo del 30-55%, diferente al establecido en la literatura que reporta un crecimiento entre 10-20% [5], creemos que ésto se debe al tipo y tamaño de muestra [7].

Creemos que las incertidumbres (a 2σ) tan grandes asociadas a los resultados del ^{226}Ra , se deben a que el fotopico se encuentra en la región más alta del fondo Compton.

Para resolver problemas de Protección Radiológica, cuando se tiene la necesidad de tener un valor estimado de la concentración de ^{226}Ra en muestras de suelo sin que el ^{235}U está presente en concentraciones diferentes a las naturales, el análisis de las muestras en contenedores no herméticos y el conteo inmediato de las mismas, así como el uso de softwares comerciales no producen errores significativos. Sin embargo, para trabajos de investigación, en los que se desea conocer los resultados con mayor exactitud y precisión,

deben sellarse los contenedores de las muestras y esperar que el radio alcance el equilibrio con sus hijas, para realizar el análisis de las muestras.

AGRADECIMIENTOS

Agradecemos a los Técnicos Valentín A. G. y a Benítez H. R., por la toma y preparación de las muestras.

BIBLIOGRAFIA

1. Harbottle G., and Evans Christine V., (1997). Gamma-Ray Methods for Determining Natural and Anthropogenic Radionuclides in Environmental and Soil Science, Radioa. and Radiochem., 8. 1. 38-44
2. M. I. Gaso, (1992) Report of the results of the Environmental Radiological Programme from SCRW at Maquixco, January-December 1991, Technical Report GSR 116, ININ, México, (in Spanish).
3. IAEA "Measurement of Radionuclides in Food and the Environment a Guidebook", Technical Report Series No. 295 (1989). 27-28.
4. Debertin Klaus and Jianning Ren, (1989) Measurement of the activity of Radioactive Samples in Marinelli Beakers. Nucl Instrum and Meth Phys Res. A 278 541-549.
5. Jodlowski P., Kalita S. J. and Niewodniczanski J., (1996). Time Factor in ^{226}Ra Determination By its Daughters Decay, Proceedings of International Conference Technologically Enhanced Natural Radiation Caused by Non-Uranium Mining. Katowice Poland, 251-255.
6. Blaauw M., Fernández V., Westmeier W. (1997) IAEA γ -ray spectra for testing of spectrum analysis software. Nucl Instrum Meth Phys Res. At 387 410-415.
7. Gwozdz R., and Grass F., (1999) Application of a Radial Geometry for Counting Samples of Mass 10 g to 300 g with a Germanium Detector. Environ Radiochem Analysis. G. W. A. Newton 289-300.