
Medición por Centelleo Líquido de ^{226}Ra Coprecipitado en BaSO_4

H. López del Río, J.I. Dávila Rangel*, V.E. Badillo Almaraz, F. Mireles García, L. Quirino Torres, J.F. Lugo Rivera, J.L. Pinedo Vega, and C. Ríos Martínez
Unidad Académica de Estudios Nucleares, UAZ
Ciprés 10 Fracc. La Peñuela, Zac. 98068 México
Apdo. Postal 579C
idavila@cantera.reduaz.mx

Resumen

El ^{226}Ra es uno de los núclidos más radiotóxicos ya que al ingresar al organismo sigue metabólicamente al calcio, acumulándose principalmente en el tejido óseo donde se convierte en una fuente interna de radiación. Para el análisis de radio en agua generalmente se aplican los métodos de emanación de radón y coprecipitación con sulfato de bario. Este último es rápido y eficiente, y el radio en el precipitado puede ser medido por espectrometría alfa o gamma, o por centelleo líquido disolviendo el precipitado con EDTA. En este trabajo se propone un procedimiento para la medición de radio en agua basado en la coprecipitación con sulfato de bario y en la detección por centelleo líquido. El precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ es acarreado con agua y mezclado con el líquido centellador OptiPhase HiSafe 3, evitando la disolución con EDTA. Un $92 \pm 1.4\%$ de radio fue recuperado y se alcanzó una actividad mínima detectable de $4.2 \pm 0.9 \text{ mBq}\cdot\text{L}^{-1}$. El procedimiento se ensayo con muestras de agua mineral natural con una concentración en actividad de ^{226}Ra conocida. El resultado analítico coincidió con el valor reportado con un error relativo de 9%.

1. INTRODUCCION

La radiactividad en agua proviene principalmente del uranio, torio y de sus descendientes de decaimiento, algunos de los cuales son emisores de radiación alfa (^{226}Ra , ^{220}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po). Estos radioisótopos emisores alfa tienen particular importancia para la salud porque al ingresar al organismo y decaer, transfieren gran cantidad de energía en pequeños volúmenes de tejido. De especial interés es el radio porque una vez en el interior del organismo se acumula en el tejido óseo [1] en donde puede inducir la formación de sarcomas .

El radio tiene cuatro isótopos radiactivos naturales: ^{228}Ra (5.75 y, β^-), ^{226}Ra (1600 y, α), ^{224}Ra (3.66 d, α), y ^{223}Ra (11.44 d, α). Los isótopos ^{228}Ra y ^{224}Ra pertenecen a la serie de decaimiento del ^{232}Th , el ^{226}Ra proviene de la serie del ^{238}U , y el ^{224}Ra es un miembro de la serie del ^{235}U . Debido a su abundancia y a su vida media, el ^{226}Ra es el isótopo más importante en agua. Cuando ingresa al organismo a través de la ingesta

* Autor para correspondencia.

de agua, sigue al calcio en los procesos metabólicos, depositándose finalmente en el tejido óseo y convirtiéndose él y sus descendientes radiactivos en una fuente de irradiación interna [2].

Las técnicas clásicas para el análisis de radio en agua se basan en la medición del gas radón emanado de la muestra con radio [3], y en la coprecipitación con sulfato de bario [4]. Sin embargo, la técnica de emanación de radón presenta algunas desventajas: (i) se necesitan largos periodos de tiempo para el crecimiento de radón; (ii) se requieren grandes volúmenes de muestra para muestras con bajo contenido de radio; y (iii) no hay estándar interno para asegurar la calidad del análisis. Aunque se han desarrollado otros métodos para la separación y análisis de radio en agua, como la adsorción de radio en discos impregnados con óxido de manganeso [5], extracción con extractantes selectivos [6], adsorción en membranas de extracción en fase sólida [7], o intercambio iónico [8], la separación de radio por coprecipitación con sulfato de bario sigue siendo un método rápido y eficiente para separar radio en agua. El precipitado de sulfato de bario-radio puede ser montado en un disco y analizado directamente con un sistema de espectrometría alfa o gamma [9,10], pero su eficiencia depende del espesor del precipitado y del crecimiento de los descendientes del radio. También se ha reportado la medición de radio por centelleo líquido, disolviendo el precipitado con una solución de EDTA y mezclándolo en un líquido de centelleo apropiado [11]. Recientemente Kim *et al.* [12] han reportado la medición de ^{226}Ra con un contador de centelleo líquido suspendiendo el precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ en un gel formado por la mezcla de dos líquidos centelladores. En este trabajo se presenta un método para la medición directa del ^{226}Ra en agua por centelleo líquido basado en la mezcla directa del precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ en una mezcla de agua y líquido de centelleo OptiPhase HiSafe 3, evitando la etapa de disolución del precipitado con EDTA.

2. PARTE EXPERIMENTAL

El precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ se obtuvo agregando a las muestras de 3 L de agua, 50 mg de Ba^{+2} y 20 mL de H_2SO_4 concentrado, calentando y agitando durante 30 min [10]. El precipitado se recuperó por filtración en papel filtro y se lavó con algunos mililitros de agua desionizada. El precipitado se arrastró con 8 mL de agua desionizada y se transfirió a un vial de polietileno de 20 mL, se agregaron 12 mL de líquido centellador OptiPhase HiSafe 3, y el vial se agitó vigorosamente.

La actividad del ^{226}Ra se midió con un contador de centelleo líquido Wallac 1411 durante 6 horas. El equipo ofrece la opción de análisis de forma de pulsos (PSA), que permite separar los pulsos originados por radiación alfa y beta cuando ambos tipos de radiación están presentes en la muestra. De acuerdo a un trabajo previo [13], el valor del PSA óptimo para una relación 12:8 de líquido de centelleo OptiPhase HiSafe 3 y agua, es de 49. A este valor la discriminación de pulsos alfa y beta es efectiva, con 14% de interferencias entre espectros y una eficiencia de detección de radiación alfa de 90%. El nivel de apagamiento, expresado por el parámetro SQP(E), causado por el agua es de 740 unidades.

El porcentaje de recuperación químico de radio se obtuvo analizando muestras con una actividad conocida de ^{226}Ra , preparadas a partir de una solución estándar NIST-SRM # 4965. Las muestras estándar y blancos se sometieron al mismo procedimiento para obtener la misma composición en la muestra de conteo.

3. RESULTADOS

El nivel de apagamiento con el precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ fue de 738 ± 5 unidades. Con este valor es aplicable la eficiencia de conteo e interferencias reportadas para una relación 12:8 de líquido de centelleo y agua. Esto demuestra que el precipitado tiene un efecto de apagamiento despreciable en la solución centelladora. Bajo las condiciones de conteo el porcentaje de recuperación de radio fue de $92.0 \pm 1.4\%$.

En la Figura 1 se presenta un espectro de ^{226}Ra obtenido para una muestra estándar. Debido a las cortas vidas medias de los descendientes del ^{226}Ra , otros emisores alfa pueden estar presentes durante el conteo de la muestra.

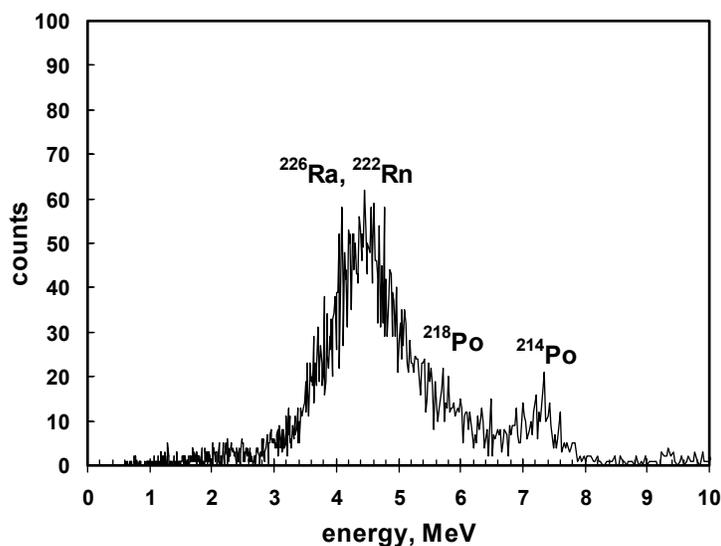


Figura 1. Espectro alfa para el $\text{Ba}(^{226}\text{Ra})\text{SO}_4$

La Actividad Mínima Detectable (**AMD**) se calculó con la razón de conteo de las muestras blanco. Basado en el porcentaje de recuperación de ^{226}Ra (**Y**), la eficiencia de conteo alfa (**ϵ**) y las cuentas alfa del fondo (**B**), el **AMD**, expresada por la ecuación (1)

[14], da un valor de $4.2 \pm 0.9 \text{ mBq}\cdot\text{L}^{-1}$ para 21600 s de tiempo de conteo (**t**) y 3 L de volumen de muestra (**V**).

$$\text{AMD} = \frac{2.71 + 4.65\sqrt{B}}{t \cdot \varepsilon \cdot V \cdot Y} \cdot 10^{-3} \text{ mBq}\cdot\text{L}^{-1} \quad (1)$$

Para labores de rutina en monitoreo radiológico ambiental cualquier método de análisis aplicado debe presentar una sensibilidad con una actividad mínima detectable que sea menor a los valores de regulación de las concentraciones de actividad de los radioisótopos de interés, las regulaciones mexicanas para la concentración de actividad alfa y beta total en agua de consumo son de 560 y 1850 $\text{mBq}\cdot\text{L}^{-1}$ [15], respectivamente, sin embargo, aun no se dispone de regulación en específico para el contenido de radio.

La agencia de protección al medio ambiente en los Estados Unidos de Norteamérica (U.S. EPA) ha establecido regulación para el contenido de radio en agua como un nivel máximo permitido, así como una actividad mínima detectable de $37 \text{ mBq}\cdot\text{L}^{-1}$ para los procedimientos de análisis aplicados [16], nuestro procedimiento objeto de este trabajo presenta una actividad mínima detectable aproximadamente 9 veces menor a lo establecido por la U.S EPA., lo que indica su viabilidad para análisis de radio en agua.

El procedimiento fue ensayado con muestras de agua mineral natural del manantial de San Diego Alcalá, Chih., cuya concentración en actividad de ^{226}Ra ha sido previamente reportada [17]. Este acuífero esta localizado en las afueras de la ciudad de Chihuahua, sobre una zona rica en mineral de uranio. En la Tabla I se presenta el resultado obtenido. El valor medido se ajustó al valor reportado, con un error relativo de 9%.

Tabla I. Actividad de ^{226}Ra en muestras de referencia

Muestra (origen)	Este método $\text{mBq}\cdot\text{L}^{-1}$	Valor de referencia(17) $\text{mBq}\cdot\text{L}^{-1}$	Error, %
San Diego Alcalá, Chih.	734 ± 12	674 ± 78	9

4. CONCLUSIONES

El procedimiento aquí desarrollado permite que una vez que el precipitado de sulfato de bario-radio se añade al líquido de centelleo la actividad del radio sea medida directamente en el contador de centelleo líquido.

Por su especificidad, simplicidad y rapidez en la preparación y medición de la muestra el procedimiento aquí propuesto es aplicable para el análisis de ^{226}Ra en agua y puede considerarse como un método ha utilizar al igual que los procedimientos convencionales.

REFERENCIAS

1. Whicker FW and Schultz V, *Radioecology: Nuclear Energy and the Environment, Vol I*, CRC Press, Inc., Boca Raton, FL (1982).
2. Tandon L, Iyengar GV, and Parr RM, "A review of radiologically important trace elements in human bones", *Appl. Radiat. Isot.*, **49**, p. 903-910 (1998).
3. Krieg HL and Whittaker EL, *Prescribed procedures for measurement of radioactivity in drinking water*, Report EPA-600/4-80-032, USEPA, (1980).
4. Sill WC, "Separation and radiochemical determination of uranium and the transuranium elements using barium sulphate", *Health Phys.*, **17**, p. 89-107 (1969).
5. Einkenberg J, Tricca A, Vezzu G, Bajo S, Reuthi M, and surbeck H, "Determination of ^{228}Ra , ^{226}Ra and ^{224}Ra in natural waters via adsorption on MnO_2 -coated disc", *J. Environ. Radioactivity*, **54**, p. 109-131 (2001).
6. Blanco MP, Vera Tomé F, Lozano JC, and Gómez Escobar V, "Sequential method for the determination of uranium, thorium and ^{226}Ra by liquid scintillation alpha spectrometry", *Appl. Radiat. Isot.*, **52**, p. 705-710 (2000).
7. Smith LL, Alvarado JS, Markun FJ, Hoffmann KM, Seely DC, and Shannon RT, "An evaluation of radium-specific, solid-phase extraction membranes", *Radioactivity & Radiochemistry*, **8**, p. 30-37 (1997).
8. Higuchi H, Uesugi M, Satoh K, and Ohashi N, "Determination of radium in water by liquid scintillation counting after preconcentrating with ion-exchange resin", *Anal. Chem.*, **56**, p. 761-763 (1984).
9. Lim TP, Dave NK, and Cloutier NR, "High resolution alpha-particle-spectrometry for radium analysis – the effects of sample thickness and filter pore size", *Appl. Radiat. Isot.*, **40**, p. 63-71 (1989).
10. Kanh B, Rosson R, and Cantrell J, "Analysis of ^{228}Ra and ^{226}Ra in public water supplies by a γ -ray spectrometer", *Health Phys.*, **59**, p. 125-131 (1990).

11. Manjón G, Vioque I, Moreno H, García-Tenorio R, and García-León M, "Determination of ^{226}Ra and ^{224}Ra in drinking waters by liquid scintillation counting", *Appl. Radiat. Isot.*, **40**, p. 535-540 (1997).
12. Kim YJ, Kim ChY, and Lee JL, "Simultaneous determination of ^{226}Ra and ^{210}Pb in groundwater and soil samples by using the liquid scintillation counter - suspension gel method", *Appl. Radiat. Isot.*, **52**, p. 275-281 (2001).
13. Dávila Rangel JI, López del Río H, Mireles García F, Lugo JF, Pinedo JL, Rios C, and Rodríguez BL, "Calibración de un contador de centelleo líquido para monitoreo radiológico de agua", *X Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana*, Acapulco, México (1999).
14. Currie LA, "Limits for qualitative detection and quantitative determination", *Anal. Chem.*, **40**, p. 586-593 (1967).
15. Diario Oficial de la Federación, "Modificación a la Norma Oficial Mexicana NOM-127-SSA1-1994, Salud ambiental. Agua para uso y consumo humano. Límites permisibles de calidad y tratamientos a que debe someterse el agua para su potabilización", DOF, NOM-127-SSA1-1994, 22 de noviembre (2000).
16. USEPA, "National Interim Primary Drinking Water Regulations", USEPA, Final Rule, Federal Register 41, p. 28402-28409 (1976).
17. Villalba L, Martínez Aguirre A, Colmenero Sujo L, and Montero Cabrera ME, "Determinación de uranio y radio en muestras de agua de los alrededores de la ciudad de Chihuahua", *XII Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana*, Zacatecas, México (2001).