UNIVERSIDAD NACIONAL DE COLOMBIA

Medida del Contenido de Material Radioactivo en las Aguas de Consumo Humano por Centelleo Líquido en la Ciudad de Medellín

Óscar Arturo Marín Díaz

Universidad Nacional de Colombia - Sede Medellín
Facultad Ciencias, Escuela de Física
Medellín, Colombia
2014

Medida del Contenido de Material Radioactivo en las Aguas de Consumo Humano por Centelleo Líquido en la Ciudad de Medellín

Óscar Arturo Marín Díaz

Tesis presentada como requisito parcial para optar al título de:
Magister en Ciencias - Física

Director:
MSc Javier Morales Aramburo

Grupo de Investigación:
Física Radiológica

Universidad Nacional de Colombia - Sede Medellín
Facultad Ciencias, Escuela de Física
Medellín, Colombia
2014

A quienes la vida puso conmigo para aprender a vivir, confiaron sus anhelos en mi, a quienes compartieron este tiempo conmigo, los que supieron estar en mi lucha y compartir mi triunfo.

"Para aquellos que no conocen las matemáticas, es difícil sentir la belleza, la profunda belleza de la naturaleza... Si quieres aprender sobre la naturaleza, apreciar la naturaleza, es necesario aprender el lenguaje en el que habla."
Richard Feynman

Agradecimientos

A los profesores Javier Morales Aramburo y Jorge Anselmo Puerta Ortiz, por su constante supervisión y consejos vitales para este trabajo, les debo mantener el amor a ciencia que sembró mi familia.

Al Organismo Internacional de Energía Atómica, a través del cual se adquirió el Contador de Centelleo Líquido para la universidad, también a la señora Karina Parelle de Holecek, Asistente de Gestión de Proyectos sección Latinoamérica del OIEA, por su colaboración en todo cuanto a la beca de entrenamiento.

A la profesora Montserrat Llauradó Tarragó y a todo el equipo del Laboratorio de Radiología Ambiental de la Universidad de Barcelona, España, por su acompañamiento y tutoria durante mi entrenamiento en sus instalaciones.

Resumen

La radioactividad natural llega a las aguas de consumo humano por diferentes mecanismos. Internacionalmente se ha establecido límites para la concentración de actividad para emisores alfa grueso de 0.5Bq/L y para emisores beta grueso de 1Bq/L, como criterios de potabilidad radiológica.

La técnica de Contadores de Centelleo Líquido (Liquid Scintillation Counter LSC) ofrece una mayor eficiencia en la detección que la técnica utilizada tradicionalmente con contador proporcional a flujo de gas. Este trabajo puso a punto el Contador de Centelleo Líquido del laboratorio de Física Radiológica y diseño el método analítico para la medición del parámetro alfa/beta grueso en las aguas de consumo humano en la ciudad de Medellín.

Palabras clave: alfa beta grueso, Centellador líquido, LSC, Medellín, radiactividad natural.

Contenido

Agradecimientos v

Resumen vi

1. Introducción 2

2. Principios LSC 4
2.1. Radiación Nuclear . . . 4
2.1.1. Radiación β^- y β^+ . . . 4
2.1.2. Radiación α . . . 5
2.2. Sistema Contador de Centelleo Líquido LSC . . . 7
2.2.1. Solución del cóctel de centellador líquido . . . 7
2.2.2. Tubos Fotomultiplicadores . . . 9
2.2.3. Circuitos de coincidencia . . . 11
2.2.4. Cámara de conteo . . . 11
2.2.5. Blindaje . . . 12
2.3. Proceso de Centelleo del Centellador Líquido . . . 13
2.3.1. Excitación de una Molécula Orgánica . . . 16
2.4. Discriminación Alfa/Beta . . . 18
2.4.1. Sistema PSA . . . 19
2.5. Quenching . . . 22
2.5.1. Quenching en el Quantulus 1220 . . . 24

3. Protocolo Alfa/Beta Grueso 26
3.1. Sistema de acueducto del área metropolitana de Medellín . . . 26
3.2. Método Analítico . . . 26
3.2.1. Cálculos de Actividad . . . 30
3.3. Aseguramiento de la Calidad . . . 32
3.3.1. Control Interno del Equipo . . . 33
3.3.2. Control Interno del Método . . . 33
3.3.3. Control de Balanzas . . . 34

4. Análisis de Resultados 37

A. Certificado de radiactividad de las Fuentes del Quantulus1220 **42**

B. Cartas Control Eficiencia y Blancos **45**

C. Formato control de balanzas granatarias **49**

D. Lista de chequeo y registro para Alfa Beta Grueso **51**

Bibliografía **54**

Lista de Figuras

2-1. Espectro de emisión continua, típico de una partícula β 5
2-2. Esquema de decaimiento del Radio-226 [27]. 6
2-3. Esquema de decaimiento del Cesio-137 [27]. 6
2-4. Detección por Centelleo Líquido [18] 7
2-5. a)Solutos primarios y b)Solutos secundarios Nombre-formula-longitud de onda de emisión [25]. 9
2-6. Tubos Fotomultiplicadores [29] 10
2-7. Circuito de coincidencia [18] 12
2-8. Plataforma transportadora [22] 13
2-9. Cámara de conteo [22] 13
2-10.Blindaje Pasivo [22] 14
2-11.Proceso de transferencia de energía en el cóctel centellador [18] 15
2-12.Diagrama de estados en el cóctel centellador [10] 16
2-13.Niveles de energía en una molécula orgánica [12] 17
2-14.Relación de la altura de pulsos entre diferentes partículas [10] 19
2-15.Forma del pulso para partículas alfa y beta [29] 20
2-16.Obtención de la PSA [29] 21
2-17.Curva de calibración de PSA [7] 21
2-18.Diferentes formas de Quenching [18] 23
2-19.Espectro de Tritio con variaciones en la concentración de HNO_3. 24
2-20.Parámetro de Quenching Externo SQP[E] [18]. 25

3-1. Configuración General del sistema de acueducto de la Ciudad de Medellín [24] 28
3-2. Puntos de muestreo (Amarillo) y plantas potabilizadoras: Manantiales, La Ayurá, La cascada, La montaña y Villa Hermosa (rojo) 28
3-3. Diagrama de flujo planteado por la OMS [20] 31
3-4. Carta Control de Eficiencia Carbono-14 y su respectivo SQP[E] 35
3-5. Carta Control de Blancos y su respectivo SQP[E] 36

4-1. Resultados de los diferentes puntos de muestreo 40
4-2. Resultados de los diferentes puntos de muestreo, comparativo con el límite internacional 41

B-1. Carta Control de Eficiencia Carbono-14 y su respectivo SQP[E] 46
B-2. Carta Control de Eficiencia Tritio y su respectivo SQP[E] 47
B-3. Carta Control de Eficiencia BKG y su respectivo SQP[E] 48

Lista de Tablas

3-1. Plantas potabilizadoras de Medellín 27
3-2. Lugares de Muestreo y códigos asignados 29

4-1. Fechas de recolección de las muestras 38
4-2. Concentraciones de Actividad para los diferentes puntos de muestreo 39

1. Introducción

El objetivo primordial de los sistemas de vigilancia ambiental, es detectar la presencia y evolución en el tiempo de los materiales radiactivos; y si es necesario tomar medidas correctivas [8]. En este caso el objetivo es detectar la presencia de material radiactivo en las aguas de consumo humano; material que llega a las fuentes hídricas por distintos mecanismos.

La radiactividad natural se debe principalmente al decaimiento del Potasio ^{40}K y las cadenas radiactivas del Uranio ^{235}U, ^{238}U y del Torio ^{232}Th. Estas cadenas se encuentran activas durante muchísimos años, ya que su periodo de decaimiento es comparable a la edad de la tierra. El Uranio, aunque es un elemento radiactivo natural ampliamente distribuido en la corteza terrestre (en una gran variedad de minerales, rocas sedimentarias, zonas carboníferas, petrolíferas y en el agua del mar), usualmente sólo está presente a nivel de trazas [19]. De la cadena del Uranio se tiene como producto el ^{226}Ra y de la cadena del Torio el ^{228}Ra, los cuales son de gran interés puesto que gran parte de la radiación natural que se recibe viene del Radón, que es producto de desintegración del Radio [26]. El Radio es fácilmente incorporado en los huesos y tejidos debido a su comportamiento químico y biológico similar a otros metales alcalinos (Ca, Sr, Ba). El consumo de agua o comida con elevado contenido de las hijas del Radio, las cuales son producidas en corto tiempo, incrementan la contribución a la dosis efectiva anual [11].

Las cadenas naturales radiactivas pueden llegar a las aguas de consumo por diferentes vías naturales -vías atmosféricas, terrestres o acuáticas- o por las actividades humanas en las zonas de influencia de la toma de agua [4], siendo los emisores alfa los de mayor riesgo radiológico al ser incorporados por las personas. La ocurrencia del material radiactivo natural producto de actividades humanas (TENORM: Technologically-Enhanced, Naturally-Occurring Radioactive Materials, como se conoce por su sigla en inglés) es bastante común en la minería y la industria de procesamiento de minerales, en la medida en que el uranio se produce si es del caso, como un subproducto en ciertos sitios de minería de Oro y de Cobre. Otras industrias importantes asociados con el TENORM son el Carbón, el Cobre y los sectores de minerales pesados [2]. Una situación muy peculiar se observa en las minas de Carbón, ocurre cuando, como resultado de la precipitación de aguas que contienen Radio, se van formando depósitos radiactivos y el Radio es liberado a los ríos con los efluentes de las minas en los estanques de sedimentación [2]. Los niveles naturales de tritio en las muestras naturales son principalmente resultado de interacciones de los rayos cósmicos con la atmósfera [28].

En la actualidad la reglamentación internacional establece el límite para el contenido de material radiactivo en las aguas de consumo humano; este límite es parte importante en los criterios para evaluar la calidad del agua potable, unido a otros tales como la flora microbiológica presente y el contenido de compuestos químicos de diferente naturaleza. Estos criterios son considerados como fundamenales ya que afectan directamente la salud de los consumidores. Las concentraciones de actividad radiactiva que son recomendadas para una persona con el mínimo riesgo radiológico estan normadas por organismos internacionales como la Organización Mundial de la Salud (OMS) y la Agencia para Protección Ambiental de los Estados Unidos (EPA). Tales organismos establecen el máximo nivel de contaminación en aguas de consumo humano como 0,5 Bq/L (15 pCi/L) para la radiación acumulada de todos los emisores de radiación alfa y 1,0 Bq/L (50 pCi/L) para la radiación acumulada de todos los emisores de radiación beta[20], parámetro conocido como alfa grueso y beta grueso (alfa total y beta total) y 100 Bq/L para la concentración de actividad de Tritio [3]. En caso de ser superados estos límites, se exige medir cada radionúclido individualmente y estos no deben superar la dosis 0,1 mSv/año como lo indica la OMS [20].

Tradicionalmente el contenido radiactivo del agua, para el parámetro alfa/beta grueso es determinado con el uso de un contador proporcional con flujo de gas, pero el desarrollo de estas técnicas metrológicas a evolucionado hacia sistemas con menor limite de detección y mayor eficiencia. Dentro de esta clase de dispositivos que mejores características poseen para el estudio de contenido radiactivo de aguas están los Contadores de Centelleo Líquido (LSC por sus siglas en inglés: Liquid Scintillation Counting)[1]; debido al principio de la técnica: contacto directo del material radiactivo con el centellador, le permite al equipo resolver energías menores a 0,1 MeV como la energía de emisión del Tritio, que no es considerado en el parámetro beta grueso.

2. Principios LSC

La detección de la radiación ionizante, desde su descubrimiento, ha empleado diferentes métodos; dependiendo de la aplicación, energía y naturaleza de la radiación. Como sabemos, existen varios procesos de decaimiento nuclear: radiación alfa, radiación beta (β^-, β^+) y radiación gamma, que son los tipos de radiación más común emitida desde las cadenas radiactivas naturales, aunque también existe la conversión interna y captura electrónica. Por tanto se debe tener un sistema adecuado para la medición de dichos tipos de radiación para control ambiental.

2.1. Radiación Nuclear

2.1.1. Radiación β^- y β^+

La radiación β^- se produce desde la conversión originada en un núcleo de un protón, y la posterior emisión de un electrón, el cual se conoce como partícula β^-. Dicha partícula está acompañada por un antineutrino $\overline{\nu}_e$.

$$n \rightarrow p + \beta^- + \overline{\nu}_e$$

A nivel nuclear, la masa del núcleo no se verá afectada, pero sí su carga, ahora tiene una partícula cargada cuando antes tenía una partícula neutra en su lugar. Por tanto aumenta su número Z; situación que modifica sustancialmente la identidad del núcleo.

$$^A_Z X \rightarrow ^A_{Z+1} Y + e^- + \overline{\nu}_e$$

La radiación β^+ es originada desde la conversión de un protón en un neutrón, proceso seguido de la emisión de un positrón y neutrino. Proceso en el cual, a nivel nuclear se tiene la disminución de la carga del núcleo, cambiando su número Z y su identidad.

$$\begin{aligned} p &\rightarrow n + \beta^+ + \nu_e \\ ^A_Z X &\rightarrow ^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu_e \end{aligned}$$

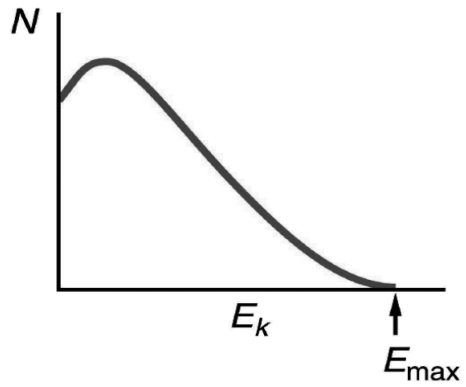


Figura 2-1.: Espectro de emisión continua, típico de una partícula β

El espectro de emisión beta, es muy característico, debido a la doble emisión de partículas; la partícula β no posee un valor discreto de energía sino que es un rango continuo caracterizado por una emisión de máxima energía y mínima probabilidad; para el Tritio la emisión de máxima energía del 18,6 keV, pero su máxima probabilidad se observa a la energía de 5,7 keV

2.1.2. Radiación α

La mayoría de los elementos emisores α son elementos pesados con $Z \geq 83$ [27]. En este fenómeno el elemento tiene una emisión de partículas $\alpha = {}^4_2He$, que son en esencia un núcleo de Helio ionizado, sin sus electrones. Estos los elementos que se desintegran por emisión alfa decrecen sus numero másico y atómico.

$${}^A_ZX \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}Y + {}^4_2He$$

En el caso de la radiación α la energía neta de la desintegración, la cual surge de la diferencia de masas entre el núcleo padre y su progenie, $Q = M_X - M_Y - M_\alpha$; es adquirida en su mayoría por la partícula α , ya que el núcleo remanente es pesado. De ahí que los espectros de radiación α sean discretos, permitiendo la identificación de los nucleidos de manera exacta a través de la energía radiada.

La radiación gamma γ, puede ser producto de cualquier decaimiento nuclear, por ejemplo, el decaimiento β^- del Cesio-137, figura **2-3**, no solo decae al Ba-137 en estado base. Este proceso tiene un 5 % de rendimiento, pero también existe una vía alterna, con el 95 % de

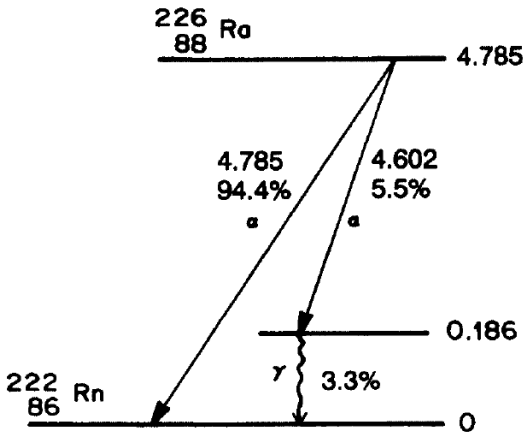


Figura 2-2.: Esquema de decaimiento del Radio-226 [27].

rendimiento, que decae a un estado excitado del Ba-137, este libera un fotón con la energía igual a la diferencia entre ambos niveles nucleares[1].

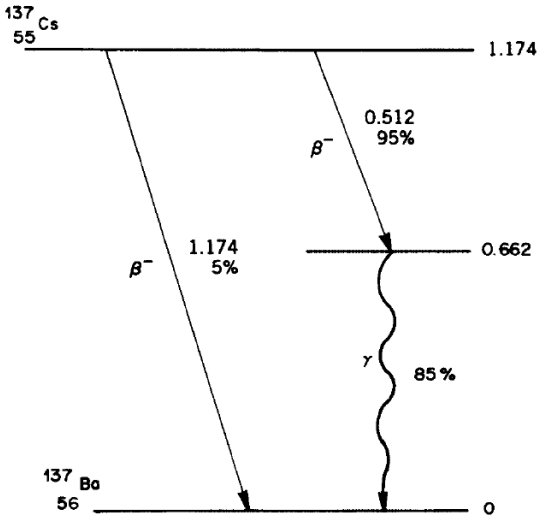


Figura 2-3.: Esquema de decaimiento del Cesio-137 [27].

Alfa Beta Grueso:

El parámetro alfa beta grueso se puede definir como la actividad total debida a las emisiones de partículas alfa o beta, a partir mediciones en una muestra seca [5]. En la detección de la radiación α y β y la cuantificación del parámetro Alfa Beta Grueso, solo es posible emplear

[1] En la figura **2-3** se observa que el fotón γ solo tiene un 85 % de rendimiento, el 10 % restante corresponde al decaimiento del estado excitado del Bario-137 a a través de conversión electrónica

los métodos de Contador Proporcional con Flujo de Gas y Contador de Centelleo Líquido LSC, este último ha permitido la medición en medio acuoso. Otros métodos comúnmente usados para la detección de la radiación ionizante, como son la cámara de ionización y los centelladores sólidos, por ejemplo, Yoduro de Sodio dopado con Talio, NaI(Tl), solo permiten detectar y cuantificar radiación γ, lo cual es un inconveniente muy grande ya que las partículas alfa y beta no atraviesan el cristal, y por tanto no pueden realizar el proceso de excitación dentro del medio activo del detector. Los espectrómetros α requieren matrices específicas; es decir, hay que llevar la muestra a una plancheta de acero inoxidable por electrodeposición luego de haber separado químicamente el emisor alfa deseado, proceso que implica mayor tiempo y conocimiento previo de la naturaleza química del material; mientras lo deseado con el parámetro Alfa Beta Grueso es un indicativo de cuanta radiación de determinado tipo (sea alfa o beta) proviene de la muestra.

2.2. Sistema Contador de Centelleo Líquido LSC

El sistema de Contador de Centelleo Líquido esta compuesto por varias etapas, de las cuales el vial que contiene la muestra con el cóctel centellador es la primera, así como se muestra en la figura **2-4**. La luz producida es colectada por los Tubos fotomultiplicadores PMT y luego conducida al sistema electrónico.

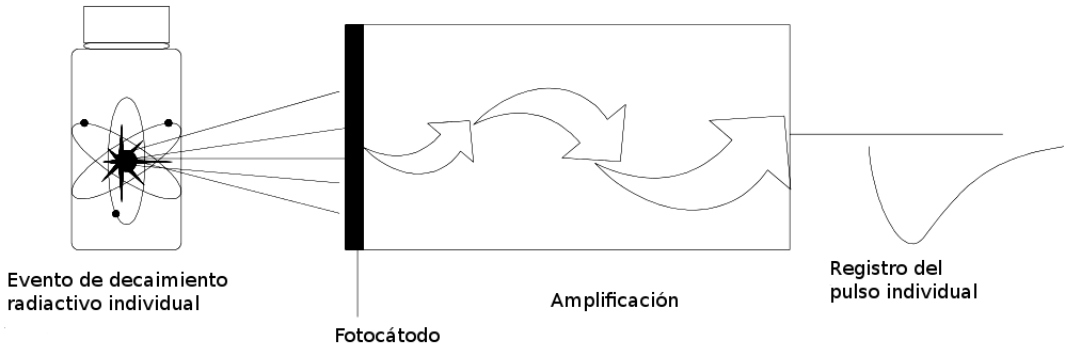


Figura 2-4.: Detección por Centelleo Líquido [18]

2.2.1. Solución del cóctel de centellador líquido

A continuación se describirán los componentes del equipo Contador de Centelleo Líquido LSC de manera general, el proceso de excitación de la molécula que compone el centellador se verá en la sección 2.3.

1. Solventes

   Son los compuestos directamente excitados por el decaimiento nuclear y son seleccionados por su eficiencia, es decir, se requiere que sus estados moleculares sean fácilmente excitables, a través de la radiación incidente. Las moléculas que cumplen con esta característica son las aromáticas donde se encuentran electrones no ligados. La eficiencia de compuestos como el alcohol, ester y cetonas es de solo el 1 % comparada con los compuestos aromáticos, mientras que la de compuestos de hidrocarburos es del 15 % al 50 % de eficiencia relativa a los compuestos aromáticos. A menudo se pueden encontrar solventes secundarios cuya función es actuar como intermediarios en el proceso de transferencia de energía [10].

   Los compuestos que en un principio fueron usados estaban basados en compuestos de xileno, tolueno, dioxano y naftaleno. Pero han sido reemplazados gradualmente por los conocidos somo "safers" que son mucho más seguros para la manipulación y almacenamiento, por tener menor punto de inflamación y menor presión de vapor. Entre ellos están el PXE (Fenilo Xililo Etano) y DIN (Isopropiliden-Naftaleno) [29].

2. Solutos

   Los solutos no son buenos centelladores por si solos, además solo aceptan una porción de la energía de la molécula excitada del solvente. La energía de excitación del soluto es menor a la energía de excitación del solvente y el proceso de transferencia de energía del solvente al soluto no es reversible, porque la energía puede ser liberada por un proceso no radiactivo (sin emisión de luz). Así el rendimiento de la fluorescencia, de la producción de luz propiamente dicho, se puede ver en el hecho de que una molécula de soluto excitada solo puede producir un fotón [10].

   Se presentan dos casos, solutos centelladores primarios y solutos centelladores secundarios, figura **2-5**. Algunos de los solutos emiten energía en longitudes de onda que no coinciden con el rango de operación optimo del tubo fotomultiplicador, entonces el segundo centellador actúa como un escalador de longitud de onda "wavelength shifters"[29]. Así, se corre la longitud de onda del centellador primario, para poder detectar la emisión de luz en los tubos fotomultiplicadores. A pesar de que los equipos más modernos son capaces de detectar la señal emitida por el centellador primario, en la mayoría de cócteles centelladores se conservan los centelladores secundarios para aumentar la eficiencia [25].

A menudo, para permitir la solubilidad de muestras acuosas se agrega al cóctel centellador un surfactante. Esto es porque los mejores solventes para Contadores de Centelleo Líquido son los compuestos orgánicos aromáticos, compuestos hidrófobos, así que no permiten que la muestra acuosa esté en contacto directo con las moléculas de solvente. Los compuestos

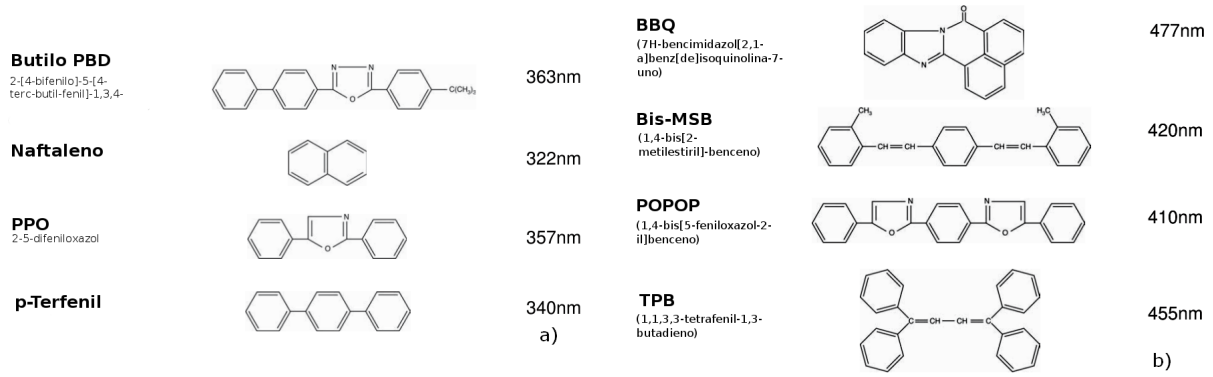


Figura 2-5.: a)Solutos primarios y b)Solutos secundarios Nombre-formula-longitud de onda de emisión [25].

agregados son agentes tensioactivos, que emulsionan la muestra en el solvente orgánico. Cuando se añade agua al detergente este tiende a orientar moléculas para formar micelas con sus cadenas de hidrófobicas hacia fuera en el disolvente, y sus cadenas hidrofílicas en frente, dejando en una pequeña cantidad de agua atrapada [25], aumentando de esta manera la probabilidad de interacción de las partículas en el medio acuoso y el solvente. También pueden ser agregados dioxanos o alcoholes [29].

2.2.2. Tubos Fotomultiplicadores

Los Tubos Fotomultiplicadores PMT ("Photomultiplier tube", por sus siglas en inglés) son una etapa muy importante del sistema del contador de centelleo líquido. Sí la eficiencia del tubo fotomultiplicador es baja, no se puede hacer un recuento de las emisiones de luz provenientes del vial, sin importar cuan bien esté preparada la muestra.

El sistema Quantulus 1220 tiene cuatro tubos fotomultiplicadores, cada uno con apertura angular de 2π. Dos de los cuales son conocidos como tubos de guarda que constituyen el blindaje activo (regresaremos a esta parte más adelante) y los otros dos son usados para contar la muestra. Hay tres partes principales del tubo fotomultiplicador, estas son:

- Fotocátodo. El Fotocátodo convierte los fotones en un número correspondiente de electrones definidos por factores como la energía de los fotones, el número de fotones y la eficiencia.

  El fotocátodo está dentro de una ampolla de vidrio, a través del cual ingresan los fotones provenientes de la muestra. Está construido con una combinación de materiales

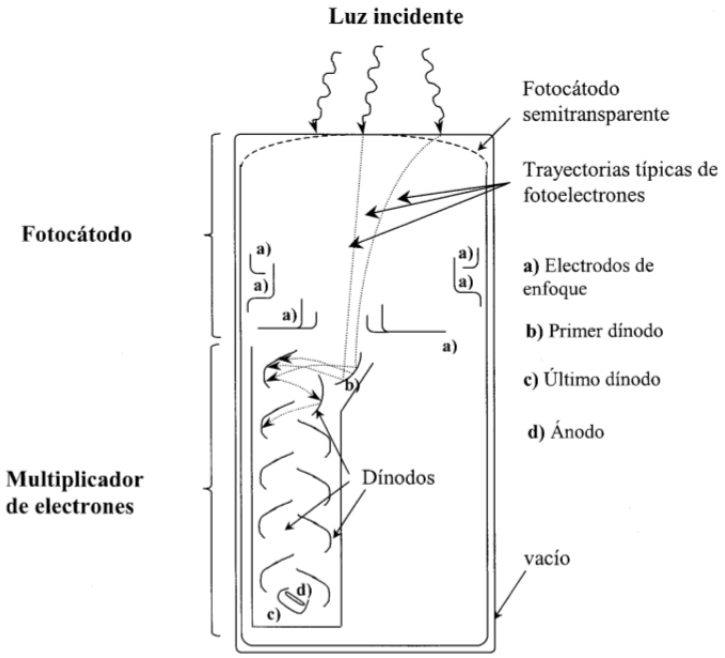


Figura 2-6.: Tubos Fotomultiplicadores [29]

con gran probabilidad de realizar efecto fotoeléctrico: absorber la energía del fotón y liberar un electrón (a veces llamado fotoeléctron). Se requieren materiales con una función de trabajo baja para evitar la perdida de cuentas, pero suficientemente alta para no generar ruido térmico, algunos de estos son el antimonio de cesio (Cs_3S) multialcalino, trialcalino ($CsNa_2KSb$) o bialcalino (K_2CsSb) [10]. Los electrones liberados del fotocátodo son acelerados por una diferencia de potencial hacia el primer dínodo.

La eficiencia del fotocátodo no es sólo función de la energía de los fotones, sino también del área del fotocátodo, la uniformidad del material del que está constituido y la capacidad del material para responder a través de efecto fotoeléctrico, es decir su eficiencia cuántica [10].

- Dínodos. Multiplican el número de electrones, en este proceso un electrón incidente se convierte en tres o cuatro electrones a la salida de cada dínodo. Los electrones liberados del fotocátodo son acelerados por diferencias de potencial aplicados a los dínodos y colisionan con la superficie de estos. La energía depositada en la colisión resulta en la reemisión de varios electrones de la superficie del dínodo. Los dínodos son construidos con materiales, tales que, el salto entre las bandas de valencia y conducción sea mínimo, para garantizar la posibilidad de promover los electrones y generar la emisión [12].

En promedio cada dínodo expulsa 4 electrones por cada electrón incidente, así la ganancia total en los 10 dínodos será del orden de un millón, por cada electrón que golpee el primer dínodo [10].

- Ánodo. Recoge los electrones de los dínodos (total o parcialmente) y convierte la carga total en un pulso, a través de un capacitor. La amplitud del pulso es proporcional al número de electrones colectados por el último dínodo, al número de electrones que se desprendieron por efecto fotoeléctrico en el fotocátodo, así como al número de fotones que emitió el compuesto de fluorescencia y a su vez a la energía de excitación de la partícula radiactiva.

2.2.3. Circuitos de coincidencia

La muestra que está puesta en medio de los tubos fotomultiplicadores produce dos pulsos independientes en cada PMT, estos pulsos son pasados por un circuito de coincidencia: Cuando los pulsos se presentan simultaneamente, dentro de 15 ns, el pulso es registrado en la sección conocida como *Scaler*[2]. Este sistema es diseñado para prevenir y reducir al mínimo los pulsos falso positivos que son resultado de ruido electrónico o background, figura **2-7**. Los *Scalers* son un circuito electrónico ideado para dar un único impulso de salida después de un cierto número de impulsos de entrada, esta la última etapa antes del Analizador Multicanal.

Finalmente, los pulsos son pasados por un conversor Análogo-Digital (ADC) y las señales son guardadas en un analizador multicanal (MCA), el cual clasifica las amplitudes de los pulsos por canales. Cada pulso con un rango de energía es sumado en un determinado canal, a lo que se llama una cuenta, así se forma un espectro de canales vs. cuentas. En el Quantulus 1220 se tiene un MCA de 1024 canales. Este sistema de coincidencia hace parte del blindaje activo diseñado por Wallac.

2.2.4. Cámara de conteo

El software de control del equipo permite acceder a cualquier muestra de manera aleatoria para ser contada. Las muestras están dispuestas en la plataforma transportadora (*"Conveyor"*)y son puestas de manera mecánica en la cámara de conteo. La plataforma transportadora posee tres bandejas de 20 muestras cada una, como se ve en la figura **2-8**.

[2]Este tiempo tiene correspondencia con los tiempos de excitación y relajación de la molécula orgánica, como ve en la sección 2.3 y 2.4

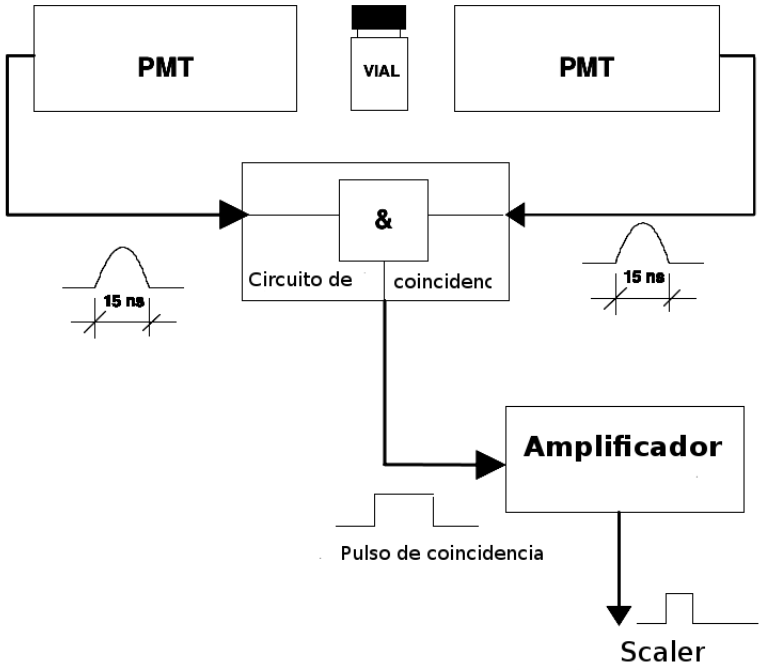


Figura 2-7.: Circuito de coincidencia [18]

La cámara de conteo, es sellada por el pistón que eleva la muestra hasta su posición, los tubos fotomultiplicadores quedan en cercanías de la muestra, figura **2-9**. Luego de entrar en la cámara se elimina la electricidad estática, ya que el vial puede cargarse durante la preparación de la muestra. La carga estática en el vial puede inducir cuentas en el tubo fotomultiplicador, que no pertenecen a fotones procedentes de la muestra.

2.2.5. Blindaje

El blindaje pasivo, consta de un carcasa asimétrica de plomo con bajo contenido de radiactividad y un lamina de cobre en la parte inferior, como se puede ver en la figura **2-10**. La carcasa con un peso total de 630 kg tiene en la parte superior un espesor de 20 cm y en otras direcciones entre 7 y 11 cm [22]. La carcasa también encierra un espacio para los detectores de guarda, estos tubos fotomultiplicadores no miden la muestra como tal, sino que están enfrentados hacia un contenedor con liquido de centelleo de naturaleza mineral [29]. El objetivo del blindaje asimétrico y los tubos fotomultiplicadores de guarda, es reducir al mínimo los efectos de la radiación cósmica y ajustar el nivel del ruido térmico en los tubos fotomultiplicadores.

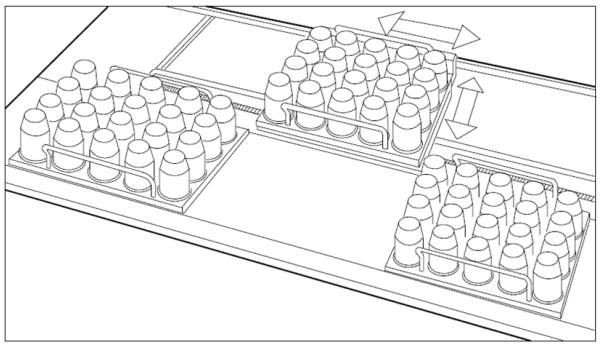


Figura 2-8.: Plataforma transportadora [22]

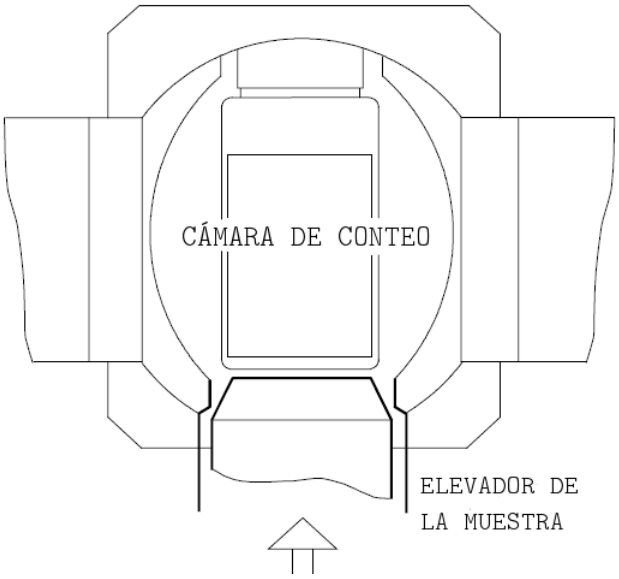


Figura 2-9.: Cámara de conteo [22]

El blindaje activo, es decir que requiere electricidad, son elementos electrónicos diseñados para reducir los eventos falsos positivos en el detector (registrar una cuenta cuando realmente no lo es). Hacen parte de este tipo de blindajes los sistemas de circuitos de conteo en coincidencia y el sistema de Análisis de la Forma del Pulso PSA, se habla del sistema PSA en la sección 2.4.1.

2.3. Proceso de Centelleo del Centellador Líquido

El método de detección por centellador líquido ofrece mejores características para partículas α y β. Esto se debe al contacto directo entre la muestra y el material centellador, puesto que se reducen los obstáculos entre las emisiones radiactivas y el material centellador. La muestra

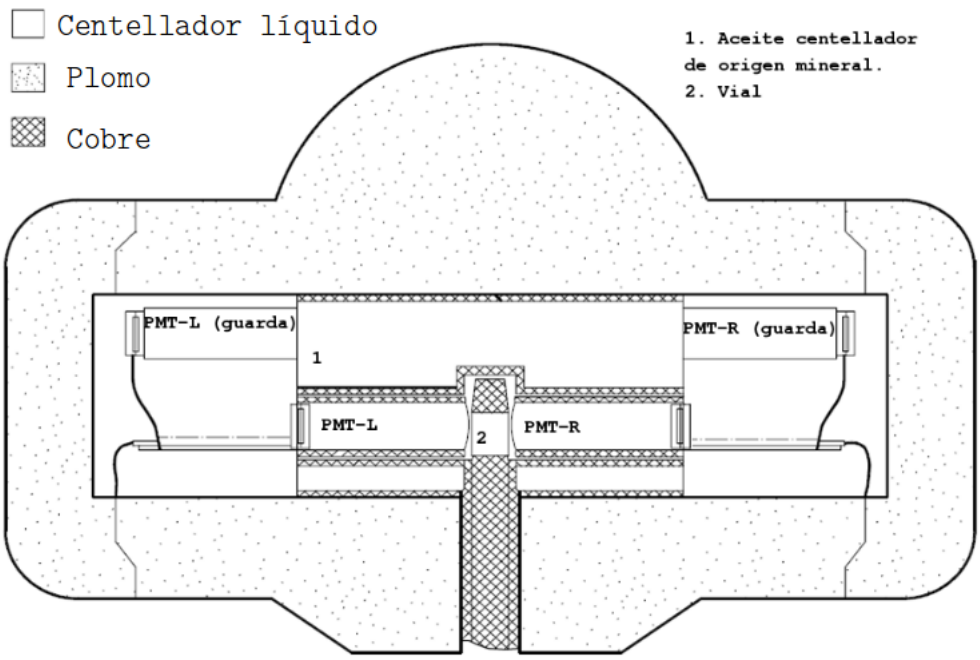


Figura 2-10.: Blindaje Pasivo [22]

está en contacto directo con lo que se conoce como Cóctel Centellador. Los cócteles centelladores absorben la radiación y luego la re-emiten en luz visible. Esta luz, es recolectada en tubos fotomultiplicadores PMT, los cuales entregan una señal eléctrica que es interpretada por la electrónica que está asociada al sistema.

Básicamente el sistema se puede explicar en la figura **2-4**, donde la muestra acuosa se encuentra disuelta con el cóctel centellador dentro del vial. Al interior del vial, la energía producto de un decaimiento nuclear, pasa a las moléculas de centellador que se encuentran en las cercanías, figura **2-11**. A pesar de ser esta la gran ventaja de la técnica es también el origen de su desventaja: el fenómeno conocido como *Quenching*[3] genera una perdidas de las cuentas en el PMT.

El proceso es descrito por L´Annuziata como: "La energía original de desintegración nuclear que es absorbida en el cóctel centellador puede ser pensada como una batería, y el cóctel centellador puede ser considerado como una fuente de luz o lámpara alimentada por la ba-

[3]Extinción en inglés, no lo he traducido para no generar confusiones con la literatura científica en inglés y su traducción literal

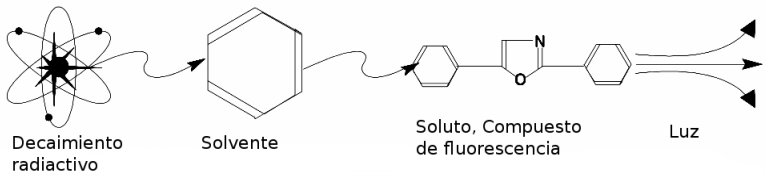


Figura 2-11.: Proceso de transferencia de energía en el cóctel centellador [18]

tería" [13].

Los cócteles centelladores poseen dos subunidades básicas: solvente y soluto centellador que es un compuesto de fluorescencia. El solvente es el que absorbe la energía de la radiación, que por si solo no es un buen centellador, ya que posee poca probabilidad de emisión de fotones y una alta probabilidad de reabsorción, debido a la proporción de este en la solución final [29]. Disuelto en el solvente (formando un solución) están las partículas de fluorescencia que convierten en luz la energía que han absorbido del solvente. La eficiencia de la transferencia depende de la concentración de soluto en la solución final [10].

El cóctel centellador es en esencia una estructura molecular la cual posee varios enlaces de carbono no saturados con presencia de dobles enlaces conjugados. Los enlaces fuertes entre los electrones de valencia de la molécula son conocidos como σ; un carbono no saturado tendría solo algunos de sus cuatro electrones de valencia (dos o tres) en un enlace fuerte σ. Esta situación da lugar a electrones de valencia deslocalizados en la molécula y no asociados a ningún átomo en particular, ocupando estados denominados π, que se extienden sobre los enlaces σ [29].

Los orbitales moleculares se forman como una combinación lineal de orbitales atómicos. Así los enlaces σ son formados por la hibridación de los orbitales en la dirección del eje internuclear, sean $S-S$, $P-P$ ($Px-Px$) y $S-P$ ($S-Px$), o también pueden ser formados con orbitales híbridos de cada átomo que se encuentren en el eje internuclear. Los enlaces π son creados por la hibridación de los orbitales en dirección perpendicular al eje internuclear, es decir por los orbitales Py y Pz, sea $Py-Py$, $Pz-Pz$.

En el enlace π se distinguen dos clases estados, singletes y tripletes. Sea el caso de los espines $S^{(1)}$ y $S^{(2)}$ de dos electrones de valencia de dos átomos de carbono en un enlace químico. Estos se suman de acuerdo a la dirección $S = S^{(1)} + S^{(2)}$, de tal modo que si sus espines son completamente antiparalelos el espín total $S = 0$ y $m = 0$. En el caso de que los espines de los dos electrones no sean antiparalelos, el espín total puede ser diferente de cero, dando valores de $m = -1, 1$. Los estados con espín cero, $S = 0$ son llamados estados sigletes y los estados con magnitud del espín $S = 1$, son llamados estados tripletes [9].

La estructura electrón-π de una molécula orgánica con interés de centelleo posee los niveles singletes con nomenclatura S_0, S_1 y S_2, como se ve en la en la figura **2-12**, y adicionalmente los niveles triplete con nomenclatura T_0, T_1 y T_3. Las energías típicas de absorción entre los niveles S_0 y S_1 están entre 3 y 4 eV [12].

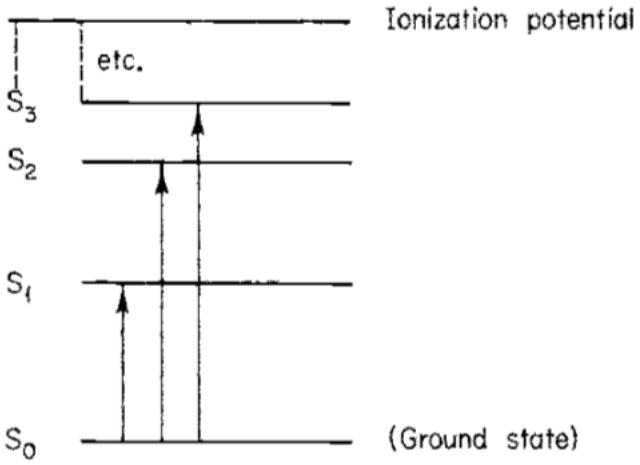


Figura 2-12.: Diagrama de estados en el cóctel centellador [10]

2.3.1. Excitación de una Molécula Orgánica

Cada nivel -Singlete o Triplete- está dividido en estados vibracionales de la molécula, espaciados del orden de los 0,15 eV, muy por encima de la media de la energía térmica (0,025 eV), así que las moléculas a temperatura ambiente están en el estado base; entonces el estado base se denota ahora $S_{0\,0}$ [12].

La transición molecular debida a la excitación de la radiación incidente es proporcional a la diferencia de energía entre los estados de la misma, $E_{n\,0} - E_{(n-1)\,0} = h\nu$. Los estados de energía superiores, tienden a desexcitarse muy rápido (en picosegundos), hasta el estado $S_{1\,0}$. La transición del estado $S_{1\,0}$ al estado $S_{0\,0}$ es responsable de la fluorescencia [10], y tiene una duración alrededor de 80 ns ($10^{-9}s$). Es posible que del estado $S_{1\,0}$ se desexciten en el estado triplete $T_{1\,0}$, lo que se llama entrecruzamiento de sistemas ("inter-system crossing"), figura **2-13**.

Luego del estado $T_{1\,0}$, se decae al estado base $S_{0\,0}$, figura **2-13**. Esta transición ocurre con un tiempo de extinción que comparado con la extinción de estado S_1 al estado S_0 es mucho más largo, cercano a 1 ms (10^{-3} s), lo cual es un evento de fosforescencia; mayor tiempo pero poca probabilidad.

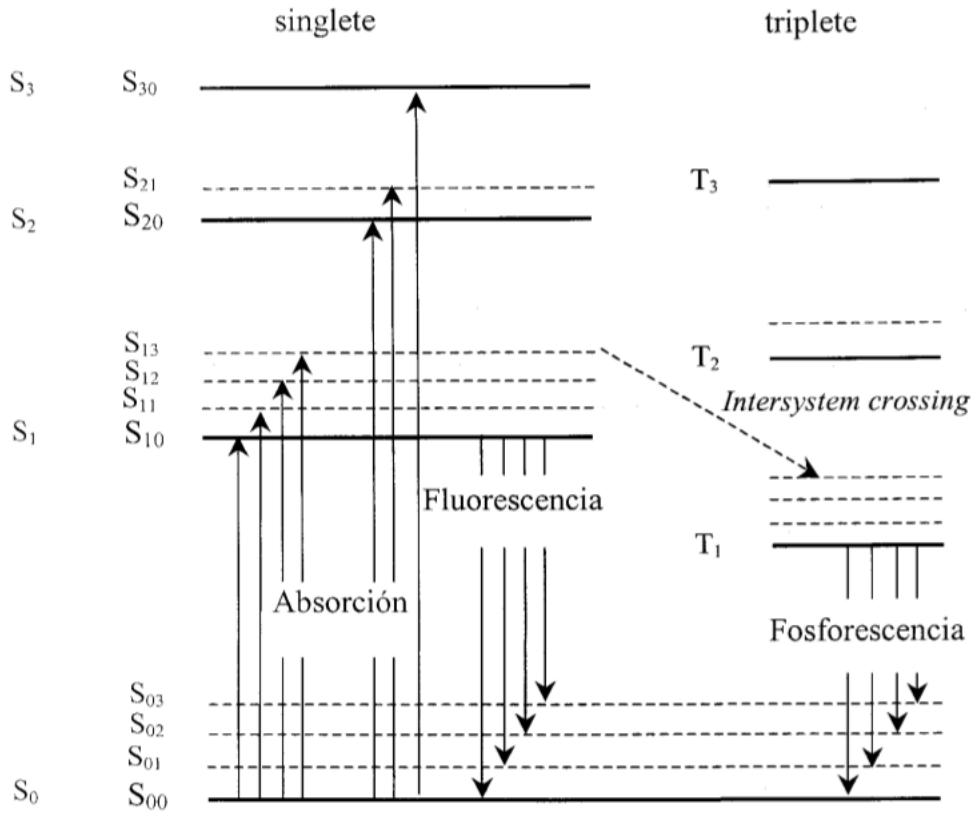


Figura 2-13.: Niveles de energía en una molécula orgánica [12]

La conversión de energía a luz depende también del tipo de partícula. Un partícula cargada deja una línea de moléculas del solvente cargadas, puesto que si la energía de absorción es del orden de los 3 eV, una partícula beta perderá toda su energía cinética solo en varias y sucesivas colisiones; dichas moléculas se desexcitan emitiendo fotones. La transmisión de energía de la partícula cargada alfa o beta al centellador es descrita por la formula semiempírica de Birks; a través de esta se explican ciertos datos experimentales [12].

$$dL/dx = S(dE/dx)\frac{1}{1 + kB\,(dE/dx)} \tag{2-1}$$

Donde

- dL/dx Es la energía de fluorescencia emitida por unidad de longitud
- dE/dx Es la energía específica depositada por partícula cargada (en función del tipo de partícula y su energía)
- S es la eficiencia de centelleo

Según el efecto local de la radiación a las moléculas en su vecindad, estas responden linealmente a la energía incidente, así la relación del parámetro B y k será una fracción de luminiscencia perdida; el parámetro que se puede ajustar es kB, porque no se puede medir separadamente a k o B. Donde B es una constante de proporcionalidad [29].

Si la partícula es de bajo poder de ionización, como las beta, el termino $kB\frac{dE}{dx}$ es despreciable y la fórmula queda:

$$\begin{aligned} \left.\frac{dL}{dx}\right|_{\beta} &= S(dE/dx) \\ \left.\frac{dL}{dx}\right|_{\beta} &= S \\ L = \int_0^E SdE &= SE \end{aligned} \tag{2-2}$$

Como se ver en la ecuación 2-2, la producción de luz debida a la energía incidente es lineal. Tenemos que una partícula alfa, por su alto poder de ionización producirá una saturación de energía depositada a lo largo de su recorrido, con lo cual, tomando en cuenta que el termino $kB\frac{dE}{dx}$ no es despreciable, se llegar a la ecuación simplificada 2-3. [29].

$$\left.\frac{dL}{dx}\right|_{\alpha} = \frac{S}{kB} \tag{2-3}$$

2.4. Discriminación Alfa/Beta

El rendimiento del centellador líquido depende no solo de la energía de la partícula incidente sino también del tipo de partícula. Mientras para electrones la respuesta es lineal, afectada por la ganancia del sistema y el sistema óptico del detector; para las partículas alfa la respuesta no es lineal,a pesar de ser de gran poder de ionización, la energía en su totalidad no es transformada en energía radiante (en luz) [10]. Situación que se atribuye al hecho descrito por la ecuación 2-3 donde se ve que las partículas alfa tienden a dejar "inhabilitadas" algunas moléculas del centellador viéndose afectada la producción de luz en una escala de kB. Entonces el factor k se puede ver como una reducción en las emisiones de luz de las moléculas del cóctel centellador [29].

La desexcitación de un estado triplete T_1 al estado fundamental de la molécula S_0 no es permitida. El proceso es conocido como *aniquilación de tripletes*, en una descripción escueta,

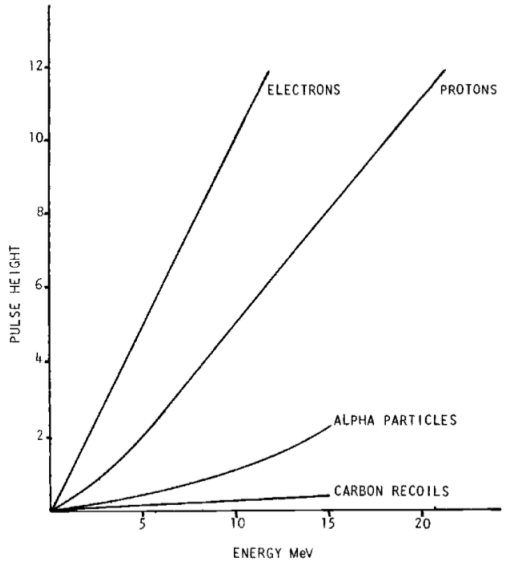


Figura 2-14.: Relación de la altura de pulsos entre diferentes partículas [10]

es la interacción de dos moléculas con estados excitados en tripletes que dan como resultado dos moléculas, una en estado fundamental y otra excitada S_1, que decaerá por fluorescencia con vida media relativamente alta, ecuación 2-4.

$$T_1 + T_1 \rightarrow S_0 + S_1 + fonones \tag{2-4}$$

A esta fluorescencia se conoce como *componente retardada*. La intensidad de esta emisión dependerá de la tasa de energía depositada. La formación de estados triplete requiere una alta capacidad de ionización como la que poseen las partículas alfa, siendo estas las que más cantidad de estados triplete excita en comparación con las partículas beta [29].

Así el decaimiento completo de la molécula presentará la componente de desexcitación normal, sumada con la componente retarda. Lo que hace interesante este hecho es que distintas partículas tendrán un efecto de excitación y desexcitación distinto, así que por análisis del pulso se puede conocer el tipo de partículas que ha generado dicho pulso, en la figura **2-15** se ve como ambas componentes de desexcitación generan dos pulsos distintos.

2.4.1. Sistema PSA

El equipo Contador de Centelleo Líquido LSC posee dos analizadores multicanal MCA, como se mencionó, que permiten la adquisición simultanea de 4 espectros. Se puede programar el

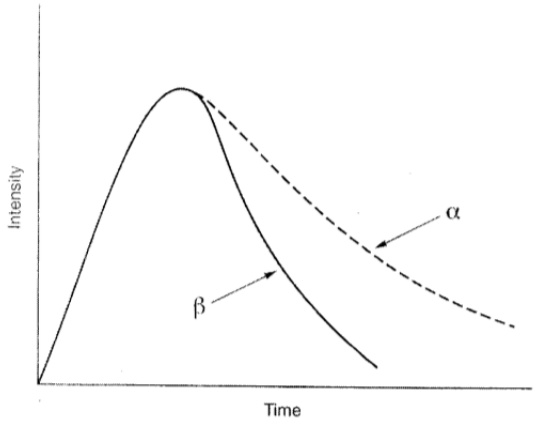


Figura 2-15.: Forma del pulso para partículas alfa y beta [29]

disparo de la señal *Trigger*, para la conversión Análogo-Digital de las señales de cada tubo fotomultipliacador PMT, sea el derecho R o el izquierdo L; así como también los PMT de guarda GR o GL. El analizador de forma de pulso PSA ("Pulse Shape Analyser" por sus siglas en inglés) separa las señales desde la naturaleza de cada partícula, sea α o β, determinando la razón entre la duración temporal de la componente retardada de la señal y su área total. La duración de esta señal es producto de las interacciones de la partícula en el cóctel centellador.

Por las interacciones de cada tipo de partícula, en el cóctel centellador se crean dos componentes de la señal, una rápida o adelantada y una componente retarda, como se vio en el capítulo 2.4. La discriminación de los pulsos se realiza calculando la razón entre el área del pulso cuando han pasado 50 ns y el área total del pulso; 50 ns son suficientes para que los pulsos de la componente rápida, que son de alrededor de 8 ns, se hayan extinguido completamente, así solo se mide la componente retardada, figura **2-16**.

La calibración del factor PSA en el equipo Contador de Centelleo Líquido, se realiza midiendo bajo distintas condiciones de PSA de dos emisores, uno β puro y otro α puro, con el fin de cuantificar las interferencias generadas, definidas: τ_β como la interferencia en los canales α del emisor β puro y τ_α como la interferencia en los canales β de señales que vienen del emisor α puro; ecuaciones 2-5 y 2-6. A partir de estas interferencias se puede hallar el PSA optimo.

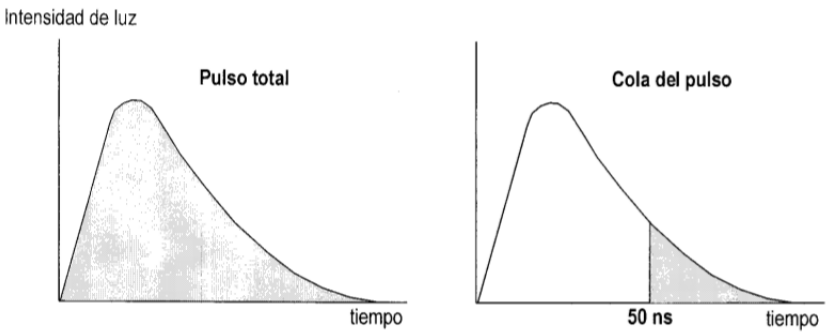


Figura 2-16.: Obtención de la PSA [29]

$$\tau_\beta = \frac{C_\alpha}{C_\alpha + C_\beta} \tag{2-5}$$

$$\tau_\alpha = \frac{C_\beta}{C_\alpha + C_\beta} \tag{2-6}$$

Donde C_α son las cuentas que el software del equipo reporta como cuentas alfa, y C_β las cuentas que el reporta como cuentas beta. $C_\alpha + C_\beta$ son entonces las cuentas totales. y se obtiene la gráfica **2-17**.

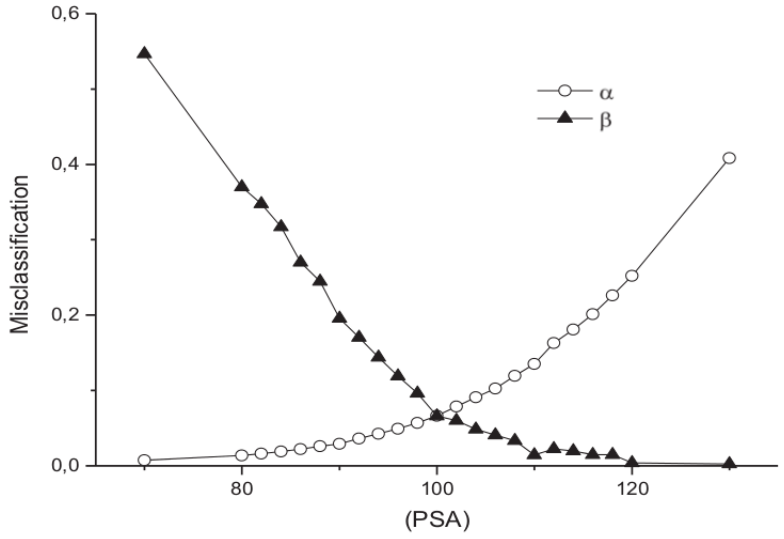


Figura 2-17.: Curva de calibración de PSA [7]

En la figura **2-17** muestra las interferencias tanto α como β versus el valor de la PSA, esta gráfica permite encontrar el punto de mínima interferencia entre ambos. Dicho valor depende del método analítico usado para separar la muestra, el medio ácido y el pH, así como también del cóctel centellador usado.

De esta manera, se tiene un sistema de discriminación de partículas, el cual es muy efectivo como método de cribado, que es el primer paso de un sistema de vigilancia ambiental. Dependiendo la naturaleza de la partícula incidente en el cóctel centellador se tiene una respuesta diferente en el sistema, pero esto no depende del isotopo radiactivo que ha decaído, es decir, el efecto en el cóctel es función de la partícula emitida y no del átomo que ha decaído, además este sistema solo suma contribuciones de las partículas y no puede ser usado como un sistema de espectrometría para identificación del átomo, esto también debido a que la energía de absorción de cada molécula, es menor a la energía de cualquier partícula alfa o beta.

2.5. Quenching

Todo fenómeno que interfiera en la emisión de luz por parte del cóctel centellador, es conocido como *Quenching*. Es una extinción de las cuentas recibidas en el fotomultiplicador y el corrimiento del pulso hacia canales de bajas energías. Dicha extinción se debe a varios procesos que pueden ocurrir en las distintas etapas de la transmisión de energía desde el material radiactivo hasta el compuesto de fluorescencia. Dependiendo como se presente el Quenching este puede ser de varios tipos: Quenching químico, de color o por una barrera física, como se muestra en la figura **2-18**

1. Quenching Químico

   Como se ve en la imagen, el Quenching químico tiene lugar cuando la energía del decaimiento radiactivo no es correctamente transmitida en el cóctel centellador, es decir la cadena planteada en la figura **2-11** se rompe y no se genera emisión de luz. Como explica Villa [29] esto suele deberse a presencia de oxígeno molecular, no se genera la componente retardada, por interacción de una molécula de centellador en estado triplete con la molécula de oxígeno; entonces la energía pasa al oxígeno y no se desexcita produciendo luminiscencia.

2. Quenching de Color

   Ocurre por la presencia de alguna sustancia con color, la cual absorbe las longitudes de onda de la luz proveniente del cóctel centellador. Esto provoca que la cantidad de

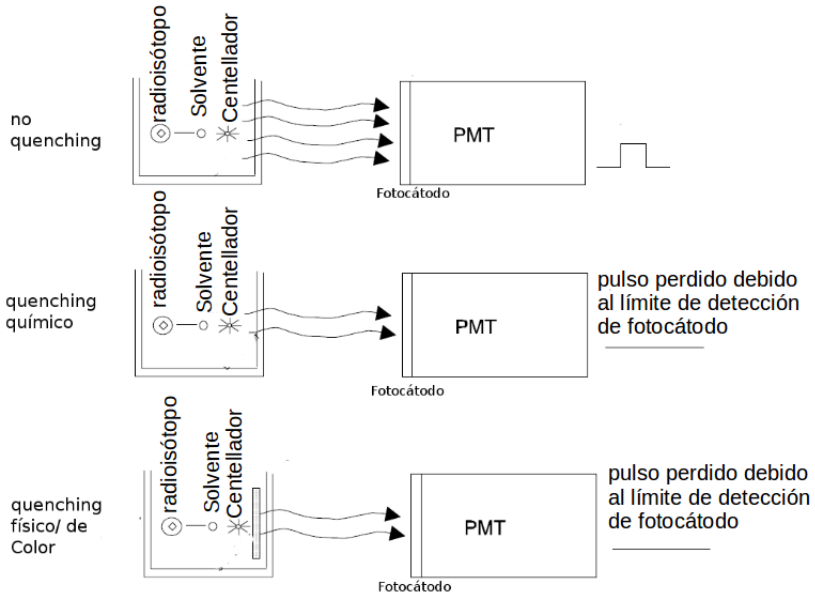


Figura 2-18.: Diferentes formas de Quenching [18]

flashes de luz que ingresan al tubo fotomultiplicador sea menor al producido por el cóctel centellador.

3. Quenching Físico

   Puede generarse por la acción de sólidos disueltos producidos por cristalización, precipitación, que actúan como una barrera. Entonces la intensidad lumínica que llega al tubo fotomultiplicador PMT es menor a la realmente producida.

4. Otros tipos de Quenching

   Sí la ionización de las moléculas de solvente por acción de las partículas cargadas de la muestra, es demasiado alta o en concentraciones muy grandes (muchas moléculas de solvente excitadas en los alrededores); dichas moléculas no transmiten eficazmente la energía al soluto y esta termina disipándose por algún otro mecanismo. Así el rendimiento en producción de luz para una partícula α es mucho menor que el de una partícula β, en función de su poder de ionización [29].

   También, la proporción de soluto primario en composición final del cóctel centellador es importante. En este caso, el cóctel usado es un producto comercial y el fabricante se ha encargado de mantener la proporción óptima. Este es conocido como Quenching por autobsorción o por concentración.

Cuando se mide una muestra con alto contenido de Quenching, el efecto es un corrimiento del espectro hacia canales de bajas energías y una reducción de la altura del pico, como lo muestra la figura **2-19**. Para este caso, a una muestra de Tritio se le adicionó distintas

concentraciones de ácido nítrico, el cual actuó como agente de quenching y atenuó los flashes de luz desde muestra, pero también desplazó el espectro hacia canales de bajas energías.

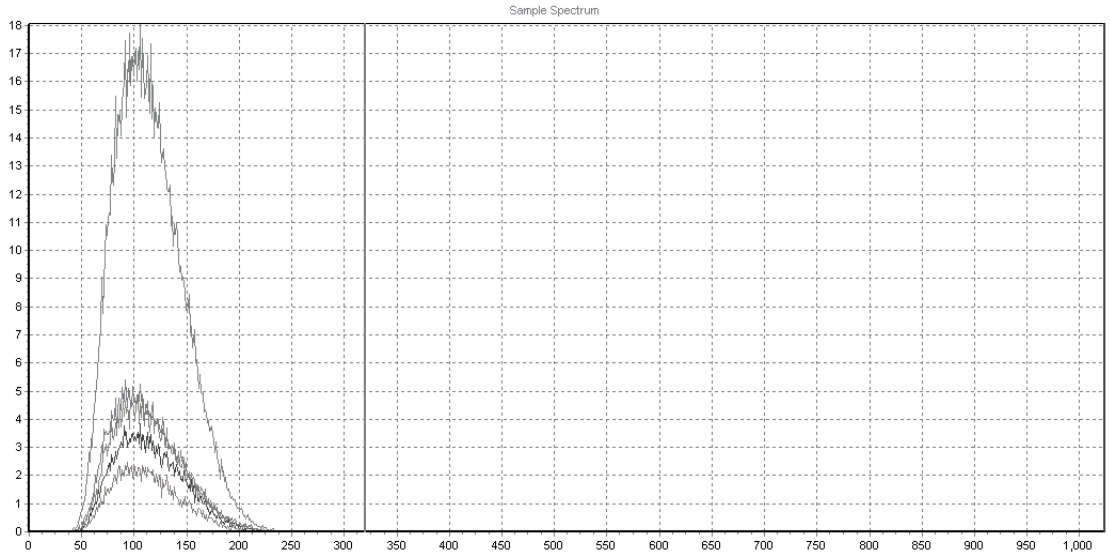


Figura 2-19.: Espectro de Tritio con variaciones en la concentración de HNO_3.

2.5.1. Quenching en el Quantulus 1220

Los Contadores de Centello Liquido Wallac, como el Quantulus 1220, poseen sistemas de medición del grado de "quenching" de una muestra de manera práctica.

- **SCR** Sample Channel Ratio y el **ESR** External Channel Ratio, son técnicas que evalúan la proporción de cuentas en determinadas ventanas y determinan el grado de desplazamiento entre ambas. Este es usado en ciertos modelos de la casa PerkinElmer.
- **SQP[I]** Spectral Quench Parameter of Isotope method y **SQP[E]** Spectral Quench parameter of External Standard method. Usado en contadores como el Quantulus 1220.

Para el caso, el Quantulus 1220 posee el sistema de SQP[E], el cual se puede asociar a la calidad de la preparación de la muestra. Como su nombre lo indica se tiene una fuente radiactiva externa al vial, que es Europio 152, ^{152}Eu, con actividad de 37 kBq (1 μCi). Esta se sitúa en las cercanías de la muestra (del vial), induciendo la producción de electrones Compton, que se comportan igual a las partículas β dentro de la muestra [29].

Luego el Contador de Centelleo Líquido LSC mide durante algún tiempo las cuentas provenientes de la muestra, hasta que las cuentas inducidas cesen, y almacena el espectro. El SQP[E] se define como el número del canal donde se encuentra el punto final de la distribución espectral cuando el 99 % del espectro queda hacia la izquierda (energías inferiores), e indica su grado de atenuación [18]; como puede verse en la figura **2-20**. Por tanto, la forma depende de las condiciones de la muestra y el valor del SQP[E] es prácticamente independiente del volumen de la muestra.

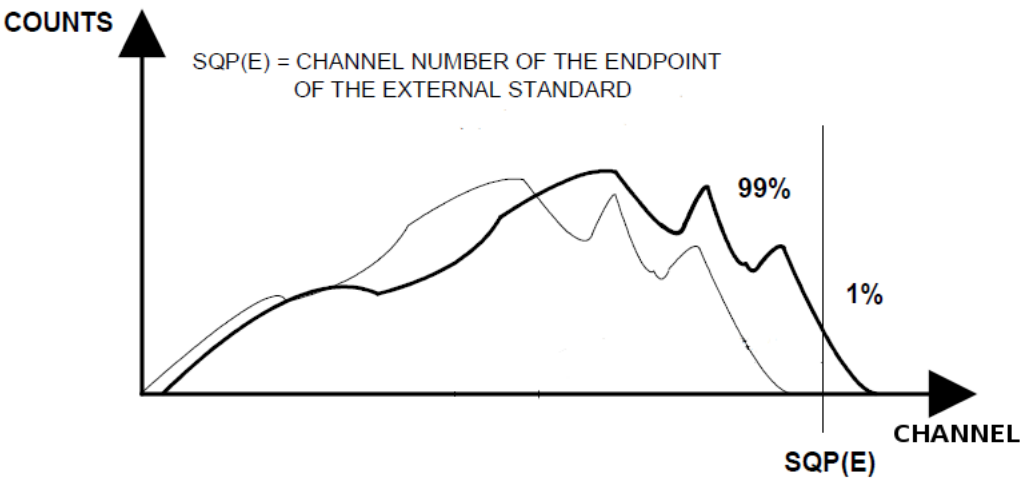


Figura 2-20.: Parámetro de Quenching Externo SQP[E] [18].

Teniendo este parámetro en cuenta, se puede discernir si una muestra está con un nivel aceptable de atenuación por distintos factores de Quenching.

3. Protocolo Alfa/Beta Grueso

3.1. Sistema de acueducto del área metropolitana de Medellín

Empresas Públicas de Medellín EPM, quien presta el servicio de acueducto para la ciudad de Medellín y su Área Metropolitana, cuenta con 10 plantas de potabilización situadas en el Valle de Aburrá. Estas son: Caldas, San Antonio de Prado, Aguas Frías, San Cristóbal, La Ayurá, La Cascada, La Montaña, Villa Hermosa, Manantiales y Barbosa. Medellín poseen un sistema interconectado de conducciones de agua Potable, y existen varios circuitos[1] compartidos que pueden ser abastecidos desde varias plantas de potabilización. De este sistema interconectado hacen parte los subsistemas principales que son abastecidos desde embalses, estos son: Piedras Blancas, Ayurá y Manantiales; y tres subsistemas menores que tienen captaciones directas, los cuales son San Cristóbal y La Cascada [23]. Como se observa en la figura **3-1**, el sistema de La Ayurá posee el embalse de La Fe, el sistema Villahermosa y La Montaña usan el embalse Piedras Blancas, el sistema Manantiales hace uso del embalse Río Grande II. Los embalses además usan estaciones de bombeo para suplir los requerimientos.

Las plantas de La Ayurá, Manantiales y Villa Hermosa tratan el 94 % de la demanda total del sistema de acueducto [23]. En la tabla **3-1** se muestran las plantas potabilizadoras de la ciudad de Medellín y su capacidad de tratamiento [6].

3.2. Método Analítico

A fin de realizar mediciones de la cantidad de material radiactivo en las aguas de consumo humano de la ciudad de Medellín, se ha seguido el protocolo desarrollado por el Laboratorio de Radiología Ambiental de la Universidad de Barcelona (España) [15]. Primero, las muestras son acidificadas para su conservación con HNO_3 hasta alcanzar un pH < 2 [17] y etiquetadas

[1] Un circuito es una zona de distribución a los usuarios finales, consta de tanques de almacenamiento, redes de distribución y un grupo de usuarios [23].

Tabla 3-1.: Plantas potabilizadoras de Medellín

N	Planta	m^3/s	m^3/d	Fuentes
1	Ayurá	9.20	794880	Ríos: Buey, Piedras, Pantanillo. Quebradas: Las Palmas, Potreros, La Miel, Espíritu Santo
2	Manantiales	6.00	518400	Ríos: Grande, Chico. Quebradas: Las Ánimas, Orobajo
3	Villa Hermosa	0.95	82080	Quebradas: La Honda, Piedras Blancas, Chorrillos
4	La Montaña	0.38	32832	Quebradas: La Honda, Piedras Blancas, Chorrillos
5	La Cascada	0.10	8640	Quebrada: Santa Elena
6	San Cristóbal	0.23	19872	Quebradas: La Iguaná, La Puerta, La Tenche
7	San Antonio de Prado	0.10	8640	Quebradas: La Manguala, Despensas, Doña María
8	Aguas Frías	0.03	2592	Quebrada: La Picacha
9	Barbosa	0.06	5184	Quebradas: El Viento, La López
10	Caldas	0.20	17280	Quebradas: La Valeria, La Redentora

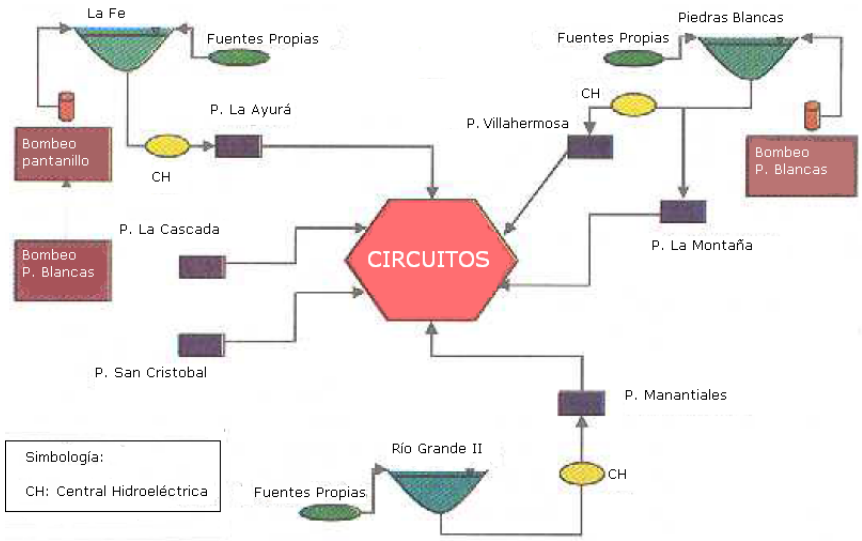


Figura 3-1.: Configuración General del sistema de acueducto de la Ciudad de Medellín [24]

para su transporte. En la figura **3-2** se encuentra el Valle de Aburrá, donde los puntos de muestreo han sido distribuidos aleatoriamente y han sido marcados con amarillo, marcadas en rojo se encuentran las plantas que suministran la mayor cantidad de agua potable para la ciudad: Manantiales, Villahermosa, La Montaña y La Ayurá.

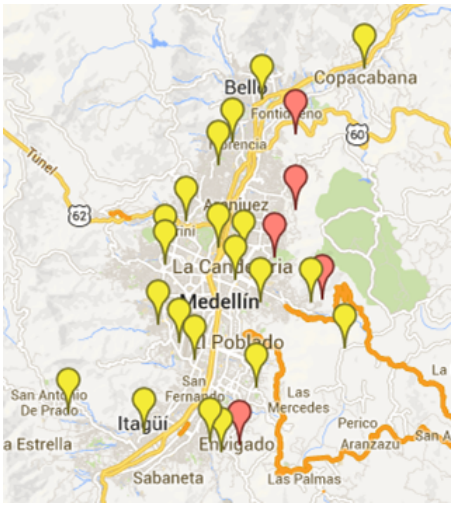


Figura 3-2.: Puntos de muestreo (Amarillo) y plantas potabilizadoras: Manantiales, La Ayurá, La cascada, La montaña y Villa Hermosa (rojo)

Las muestras fueron recogidas en envases plásticos previamente lavados con ácido nítrico al 1 %, identificados por el punto de muestreo y la fecha de recolección. Los puntos para el

muestreo se listan a continuación en la tabla **3-2**, los códigos son asignados para identificar la muestra y asociarla al archivo en el software de medida.

Tabla 3-2.: Lugares de Muestreo y códigos asignados

	Lugar de Muestreo	**Código Muestra**
1	Parque de Bello, Barrio Las Granjas	S1
2	Barrio Nuevo	S2
3	Barrio Pedregal	S3
4	Facultad de Minas, Universidad Nacional	S4
5	Núcleo El Volador, Universidad Nacional	S5
6	Barrio Calazans	S6
7	Barrio La Floresta	S7
8	Barrio Belén Altavista	S8
9	Hospital Las Americas	S9
10	Urbanización Bosque Adentro, Enviagado	S10
11	Hospital Manuel Uribe Angel	S11
12	Barrio El Poblado	S12
13	Barrio La Sierra (Colegio Villa Turbay)	S13
14	Corregimiento de San Antonio de Prado	S14
15	Corregimiento de Santa Elena, Vereda el Plan	S15
16	Barrio Prado Centro	S16
17	Centro de Medellín	S17
18	Barrio Buenos Aires	S18
19	Itagüí	S19
20	Barrio Guayabal	S20
21	Copacabana	S21
22	Embalse Río Grande	S22
23	Embalse La Fe	S23
24	Embalse Piedras Blancas	S24

De cada muestra se toma una alícuota de 100 mL, luego se pone en la plancha calefactora con agitación y es llevada a sequedad a fin de eliminar todos los nitratos. Se deja enfriar a temperatura ambiente. El residuo seco se disuelve usando 10 mL de HCl con el pH= 1,5$\pm$0,5. Después se prepara el vial de 20 mL de polietileno: se agregan 8mL de la muestra concentrada (el residuo disuelto en medio ácido de HCl) y 12 mL de cóctel centellador [7]. El cóctel usado para estas pruebas es Ultima Gold AB, un cóctel comercial de la casa PerkinElmer, el cual es diseñado para discriminar pulsos alfa/beta. La lista de chequeo y el formato para

registro se encuentran en el Anexo D.

Los viales de vidrio poseen un fondo radiactivo mayor que los de polietileno revestidos con teflón, pero tienen un costo mayor que no compensa los resultados obtenidos con los viales de polietileno sin el revestimiento. Los viales de polietileno son una opción que provee resultados aceptables a un costo razonable [17].

La calibración del parámetro PSA, no fue posible, debido a que no se disponía de un emisor α puro para realizar el procedimiento. Entonces se tomo el valor de PSA= 110 reportado por Llauradó [15], dado que las condiciones del método usado son similares .

Antes de medir la muestra debe esperarse 2 horas para que los eventos de fotoluminiscencia se hayan extinguido. Cada muestra es medida durante 400 minutos y se activa el SQP[E] durante 1/10 de minuto.

Se sigue el diagrama de flujo planteado por la OMS, para el análisis de las muestras. Donde se tienen puntos de parada y decisiones a partir de la concentración de actividad encontrada en las muestras tomadas [20], el diagramase muestra en la figura **3-3**. Se establecen entonces los Niveles Guía ("Guidance Level" en inglés), si se han superado los niveles Alfa Beta Grueso, se evalúan los radionucleidos de interés, si estos superan la unidad (1), se requieren tomar acciones de intervención en el medio para mitigar los riesgos. Los niveles guía son entonces definidos como:

$$\sum_i \frac{C_i}{GL_i} \leq 1$$

donde:
C_i es la concentración de actividad medida del radionucleido i, y GL es el nivel de guía del radionucleido i. Estos Niveles Guía garantizan que con una ingestión de 2 L/d durante 1año, dará lugar a una dosis efectiva de 0,1 mSv/año [20].

3.2.1. Cálculos de Actividad

Se registran los datos de peso del vaso de precipitado o beaker, en el cual se ha depositado la alícuota que se denota como P_v , también se registra el peso del vaso con la alícuota (la muestra) P_{v+m} y el peso del vaso con la muestra concentrada P_{v+mc}. Luego de hacer la reducción se toma el peso del vial p_{vi}, el peso del vial con la muestra p_{vi+m}, y el peso del

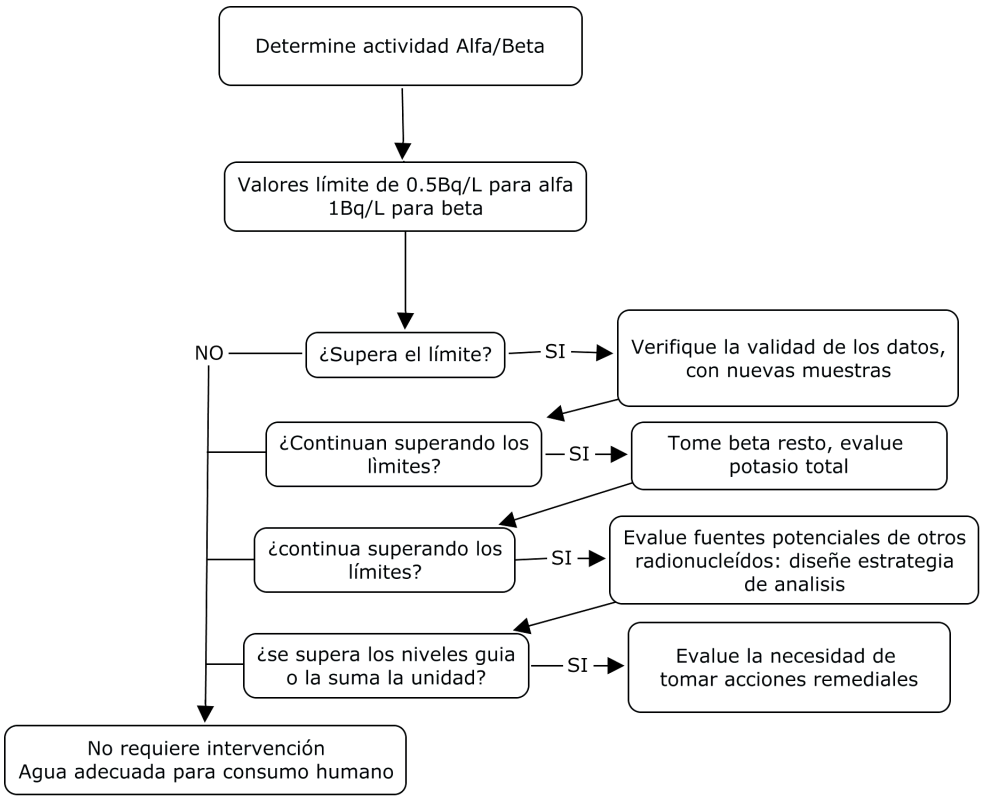


Figura 3-3.: Diagrama de flujo planteado por la OMS [20]

vial con la muestra y el centellador juntos p_{vi+m+c}.

El software EasyView permite entregar las cuentas en distintas unidades: CPM (cuentas por minuto), CPS (cuentas por segundo), cuentas en el detector, DPM (desintegraciones por minuto) o TU (unidades de Tritio). Se han tomado las unidades CPM. El calculo final de actividad es:

$$A_\alpha = \frac{\left(\frac{CPM_{N\,\alpha}}{\varepsilon_\alpha}\frac{60}{1}\right)}{P_{M\,v}}\left(\frac{P_{M\,c}}{P_{M\,i}} * 1000\right)$$

$$A_\beta = \frac{\left(\frac{CPM_{N\,\beta}}{\varepsilon_\beta}\frac{60}{1}\right)}{P_{M\,v}}\left(\frac{P_{M\,c}}{P_{M\,i}} * 1000\right)$$

Donde

$$\begin{aligned} CPM_{N\,\alpha} &= CPM_{T\,\alpha} - CPM_{blanco} \\ CPM_{N\,\beta} &= CPM_{T\,\beta} - CPM_{blanco} \\ P_{M\,v} &= p_{vi+m} - p_{vi} \\ P_{M\,c} &= P_{v+mc} - P_v \\ P_{M\,i} &= P_{v+m} - P_v \end{aligned}$$

Se tiene que ε es la eficiencia, para alfa o beta, según el caso. La actividad es reportada en Bq/kg. Las cuentas netas, son entonces la resta de las cuentas brutas o gruesas que da la muestra menos las cuentas que tiene el blanco. La definición de blanco se encuentra en la sección 3.3.2.

Entonces, $P_{M\,v}$ se puede interpretar como la cantidad de muestra que se toma de la muestra concentrada y que es transferida finalmente al vial, y el factor $\dfrac{P_{M\,c}}{P_{M\,i}}$ es la reducción de humedad en la muestra. Cabe aclarar que estos pesos son tomados en gramos, por eso, en la ecuación se multiplica por el factor de conversión de gramos a kilogramos. La cantidad de líquido centellador adicionado al vial no afecta la actividad (como es de esperarse), pero se sabe que la concentración de soluto tiene consecuencias importantes en el comportamiento y la eficiencia del centellador, es por esto que la proporción de muestra-centellador debe mantenerse según lo especifica el fabricante; para el caso esa proporción es 8 mL de muestra por 12 mL de centellador.

La incertidumbre de las medidas está asociada a la variabilidad estadística de las cuentas en la muestra y al tiempo de medición de las mismas.

$$\begin{aligned} U_\alpha &= 2\frac{A_\alpha}{CPM_{N\,\alpha}}\sqrt{\frac{CPM_{T\,\alpha} + CPM_{blanco}}{t}} \\ U_\beta &= 2\frac{A_\beta}{CPM_{N\,\beta}}\sqrt{\frac{CPM_{T\,\beta} + CPM_{blanco}}{t}} \end{aligned}$$

3.3. Aseguramiento de la Calidad

Para el control de la calidad usamos dos vías, la primera es el control interno del equipo y la segunda, un control interno del método realizando blancos. Ambos controles tienen como fin asegurar que las condiciones bajo las cuales se mide una muestra estén siempre monitoreadas y salte a vista cualquier evento inusual. De manera tal que los valores reportados finalmente posean total confiabilidad.

3.3.1. Control Interno del Equipo

El control se realiza a partir del kit de viales *"unquenched"* entregados con el equipo. Este kit trae tres viales de vidrio ya preparados: Uno de ^{14}C, otro de ^{3}H y el tercero solo contiene el líquido de centelleo usado en los otros dos viales BKG. Las actividades son 245 $000DPM$ para el vial de Tritio y de 128 $500DPM$ para el vial de Carbono-14 (ver Anexo A).

Luego se almacena un historial de medidas de los viales "unquenched" bajo las mismas condiciones de las muestras, es decir 400 min y contadas en las mismas ventanas. Este registro se gráfica en las llamadas cartas control, figura **3-4**. Estas se construyen tomando la media de las medidas, y las regiones son: En 1σ la medida se encuentra dentro de la región de aceptable, en 2σ se investigan las causas de la variabilidad y 3σ se debe repetir la medida y tomar acciones.

Se debe llevar a cabo el control de la eficiencia del detector cada mes y también cada vez que el instrumento se haya apagado, tanto voluntaria como involuntariamente, tras dejar que se estabilice durante algunas horas (claro está que esta periodicidad varia según el flujo de muestras en el laboratorio). Pasado este tiempo se hace el control. Si los valores se encuentran dentro de la normalidad, el equipo se podrá utilizar normalmente. Si los valores no están dentro de los intervalos aceptados se deberá dejar estabilizar el equipo unas horas más y repetir el proceso.

3.3.2. Control Interno del Método

El método de reducción de las alícuotas y la manera en que son llevadas al vial (todo el método descrito en 3.2), son controlados a través de lo que se conoce como muestras blanco, según el CSN "Se definió el blanco como el número de cuentas por unidad de tiempo de una muestra preparada a partir de agua desionizada o destilada y utilizando el método descrito" para tratarlas [14]. Es decir, se toma una matriz parecida a la muestra y se realiza todo el procedimiento igual que con una muestra real, usando los mismos reactivos, equipos, cóctel centellador y trazadores (sí fuera del caso). El procedimiento 1.5 del CSN [14], esta hecho para contador proporcional con flujo de gas, pero la filosofía de los blancos para el control del método es completamente aplicable. Los resultados de alfa grueso y beta grueso de los blancos se grafican también en cartas control, figura **3-5**.

Los blancos permiten establecer si en algún paso del método hay anomalías, y plantear un esquema de acción para corregirlas. También, la medición del parámetro SQP[E] en los blancos, proporciona el nivel de decisión. Cada muestra por fuera de los rangos de medida, debe ser rechazada y vuelta a procesar a partir de una alícuota nueva. La periodicidad de este control debe ser cada mes, o cuando se considere necesario por haber encontrado algún incidente en el procedimiento y que comprometa la confiabilidad de las medidas.

3.3.3. Control de Balanzas

El calculo de la actividad se hace por peso, entregando final Bq/kg, entonces las balanzas juegan un papel importante a la hora de asegurar la calidad y reportar una medida. Las balanzas se pueden calibrar cada año, pero al menos cada mes se debe verificar el estado de la calibración, usando pesas que no varíen de masa, para calcular el grado de desviación de dicha calibración. Se puede entonces confirmar o desmentir los pesos entregados por la balanza.

El calculo de actividades se hace usando pesos, con el fin de no hacer uso de material aforado, que usualmente es muy costoso.

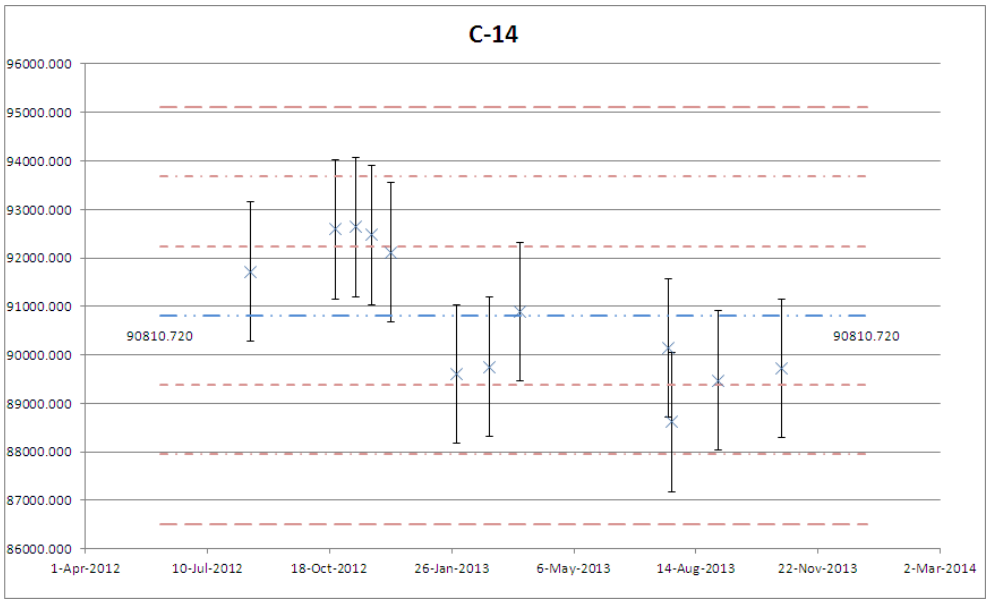
Los cálculos de incertidumbre de la balanza se realizan a partir de la incertidumbre entregada por el fabricante en la calibración u_{cal}, la resolución de la balanza r, y el historial de medidas de los pesos seleccionadas.

$$
\begin{aligned}
u_{med} &= \sqrt{S + \left(\frac{r}{\sqrt{3}}\right)} \\
S &= \text{Desviación estándar de las medidas} \\
u_c &= \sqrt{u_{cal}^2 + u_{med}^2} \\
U &= 2 * u_c
\end{aligned}
$$

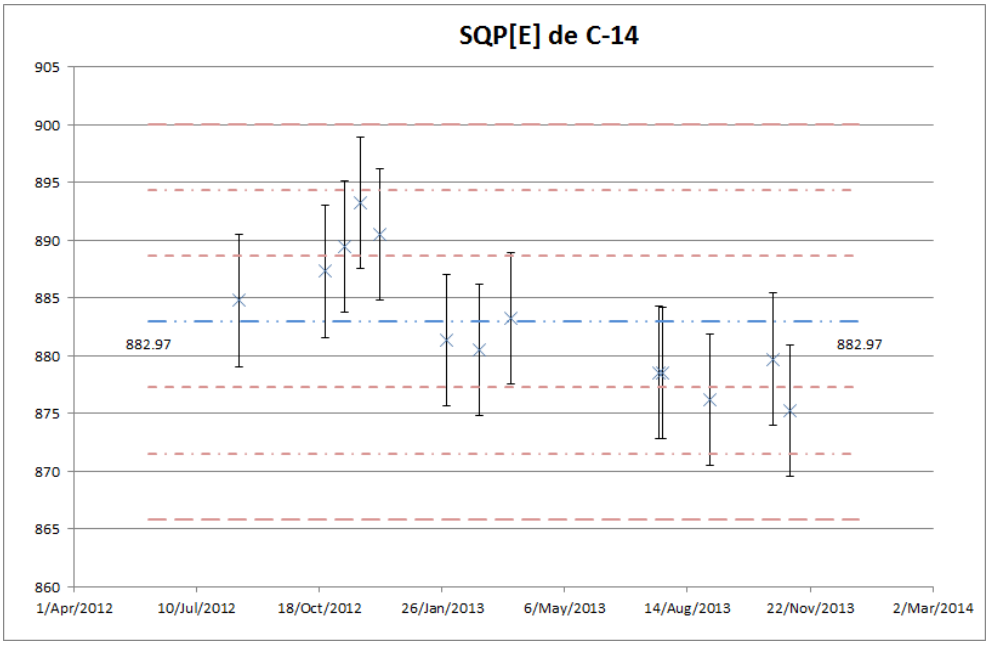
El rango de medidas aceptables de la balanza se presenta a partir del valor U y el promedio de las mediciones de las pesas seleccionadas U_{prom}:

$[U_{prom} - U, U_{prom} + U]$

En este caso se han tomado dos pesas aleatoriamente y se han encontrado los rangos de pesos aceptables para cada una de ellas, [275,2 g, 276,0 g] para la pesa marcada como Pesa1 y de [727,4 g, 728,2 g] para la Pesa2. En el anexo C se encuentra el formato para el control de las balanzas.

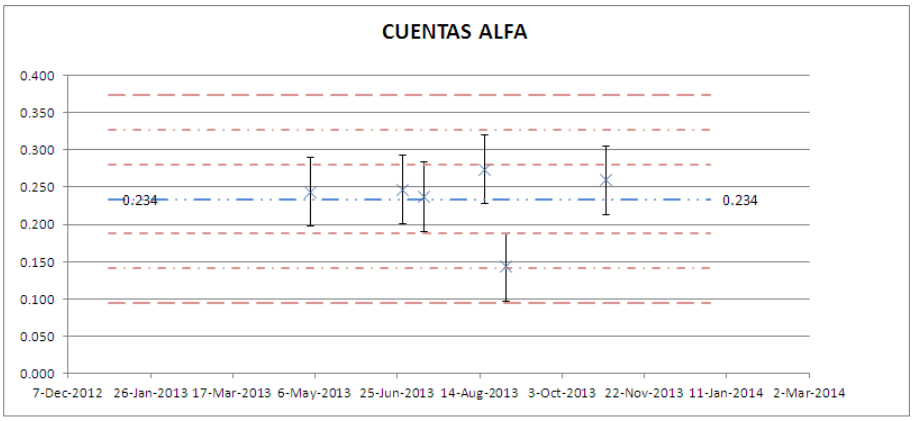


(a)

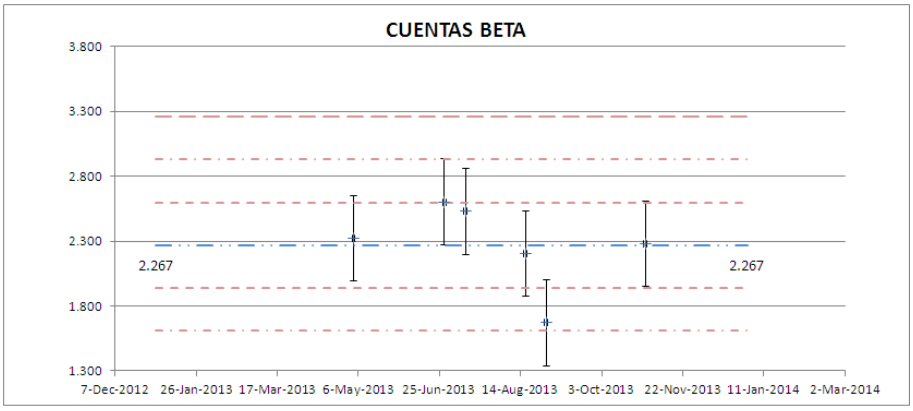


(b)

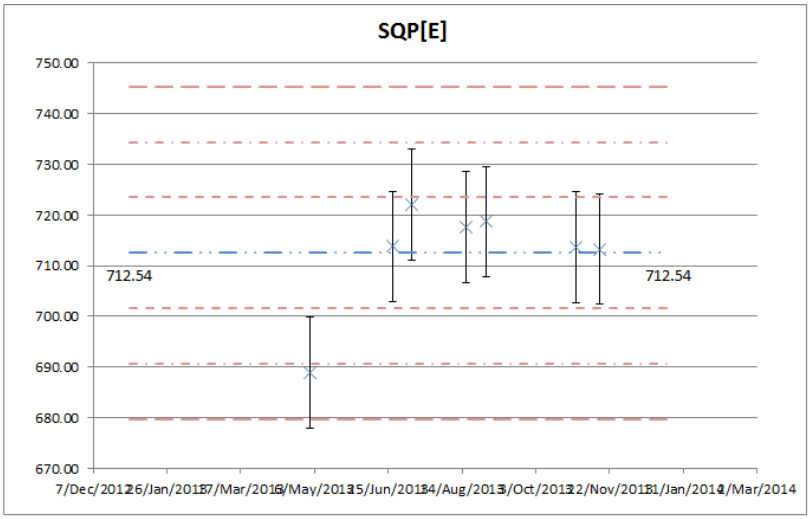
Figura 3-4.: Carta Control de Eficiencia Carbono-14 y su respectivo SQP[E]



(a)



(b)



(c)

Figura 3-5.: Carta Control de Blancos y su respectivo SQP[E]

4. Análisis de Resultados

Las muestras fueron recogidas en las fechas consignadas en la tabla **4-1**, las muestras de los embalses son tomadas en la temporada de sequía. En tanto que, muestras como $S1$ a $S5$ fueron tomadas en meses con lluvias frecuentes.

Los resultados mostrados a continuación, para cada muestra tienen el respectivo error asociado. Las muestras que tuvieron cuentas menores a las cuentas de los blancos son consideradas por debajo de la actividad mínima detectable, MDA ("Minimum Detectable Activity", por sus siglas en inglés) [16]. La MDA ha sido calculada por el software de visualización de resultados "EasyView" [21], de la siguiente forma:

$$MDA = (\frac{1}{\varepsilon}) \cdot \frac{\left(3{,}29\sqrt{B_g \cdot t_g \cdot (1 + \frac{t_g}{t_{Bg}})} + 3\right)}{t_g}$$

Se tiene entonces que ε es la eficiencia (según el caso, para alfas o betas), B_g es la tasa de cuentas del blanco, t_g el tiempo de medición de la muestra, t_{Bg} es el tiempo de medición del blanco, el resultado final está expresado en CPM. Se ha transformado a Bq y la MDA para nuestro método se calculó en $2{,}14 \times 10^{-03}\ Bq$ para alfa y $6{,}27 \times 10^{-03}\ Bq$ para beta. La tasa de cuentas para el blanco B_g son tomadas de las cartas control de blancos.

En la tabla **4-2** se encuentra el consolidado de las concentraciones de actividad para cada uno de los puntos de muestreo. Se nota que los valores del parámetro SQP[E] no varían en mas de diez (10) unidades y se mantienen al rededor del valor medio de SQP[E] para los blancos, lo que presume que el método usado es muy estable y confiable.

La figura **4-1** se tienen los resultados para los puntos de muestreo. Las concentraciones de actividad para los puntos reportados que superen la MDA. Las muestras que no superan el MDA no se han graficado.

En la figura **4-2** se observa el comparativo entre las medidas obtenidas y los límites para el parámetro Alfa Beta Grueso. Se ve que para todos los puntos, las concentraciones de actividad se encuentran muy por debajo del límite. Esto hace que no sea necesario realizar otras

Tabla 4-1.: Fechas de recolección de las muestras

Código	Fecha de Recolección
S1	26-Octubre-2013
S2	3-Septiembre-2013
S3	4-Septiembre-2013
S4	4-Septiembre-2013
S5	2-Septiembre-2013
S6	26-Octubre-2013
S7	26-Octubre-2013
S8	26-Octubre-2013
S9	26-Octubre-2013
S10	26-Octubre-2013
S11	26-Octubre-2013
S12	26-Octubre-2013
S13	25-Enero-2014
S14	26-Octubre-2013
S15	26-Octubre-2013
S16	26-Octubre-2013
S17	26-Octubre-2013
S18	26-Octubre-2013
S19	26-Octubre-2013
S20	26-Octubre-2013
S21	26-Octubre-2013
S22	25-Enero-2014
S23	25-Enero-2014
S24	25-Enero-2014

Tabla 4-2.: Concentraciones de Actividad para los diferentes puntos de muestreo

Código Muestra	SQP[E]	Alfa [Bq/kg]	U($k = 2$) [Bq/kg]	Beta [Bq/kg]	U($k = 2$) [Bq/kg]
S1	710,32	$3{,}62 \times 10^{-02}$	$1{,}75 \times 10^{-02}$	$1{,}82 \times 10^{-01}$	$6{,}62 \times 10^{-02}$
S2	711,70	<MDA	-	$1{,}24 \times 10^{-01}$	$5{,}81 \times 10^{-02}$
S3	713,17	<MDA	-	$1{,}56 \times 10^{-01}$	$5{,}68 \times 10^{-02}$
S4	711,25	<MDA	-	$1{,}28 \times 10^{-01}$	$7{,}02 \times 10^{-02}$
S5	707,49	$1{,}60 \times 10^{-02}$	$1{,}41 \times 10^{-02}$	$1{,}77 \times 10^{-01}$	$5{,}77 \times 10^{-02}$
S6	711,23	<MDA	-	<MDA	-
S7	723,45	<MDA	-	<MDA	-
S8	703,37	<MDA	-	<MDA	-
S9	708,30	<MDA	-	$2{,}36 \times 10^{-02}$	$6{,}20 \times 10^{-02}$
S10	707,27	<MDA	-	<MDA	-
S11	710,83	<MDA	-	<MDA	-
S12	711,57	<MDA	-	<MDA	-
S13	706,78	$3{,}76 \times 10^{-03}$	$1{,}35 \times 10^{-02}$	<MDA	-
S14	714,29	$6{,}62 \times 10^{-03}$	$1{,}53 \times 10^{-02}$	$1{,}9 \times 10^{-02}$	$6{,}16 \times 10^{-02}$
S15	710,48	<MDA	-	<MDA	-
S16	717,23	<MDA	-	<MDA	-
S18	708,48	<MDA	-	<MDA	-
S19	703,51	<MDA	-	<MDA	-
S20	703,34	$6{,}82 \times 10^{-03}$	$1{,}28 \times 10^{-02}$	$4{,}22 \times 10^{-02}$	$5{,}21 \times 10^{-02}$
S21	707,43	<MDA	-	<MDA	-
S22	683,15	<MDA	-	<MDA	-
S23	703,98	<MDA	-	<MDA	-
S24	704,69	<MDA	-	<MDA	-

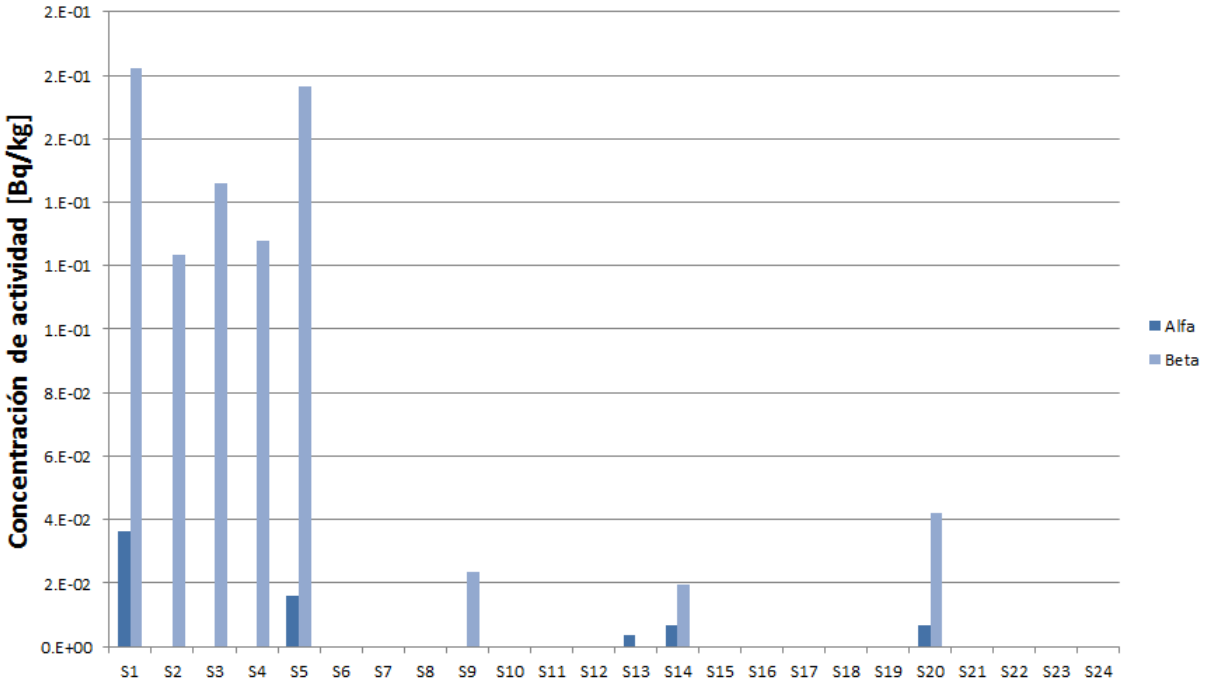


Figura 4-1.: Resultados de los diferentes puntos de muestreo

mediciones en busca de radionucleidos específicos, siguiendo el diagrama de flujo planteado por la OMS en la figura **3-3**.

Se observa que las fechas de recolección de las muestras tienen una repercusión directa en la concentración de actividad de la muestra.

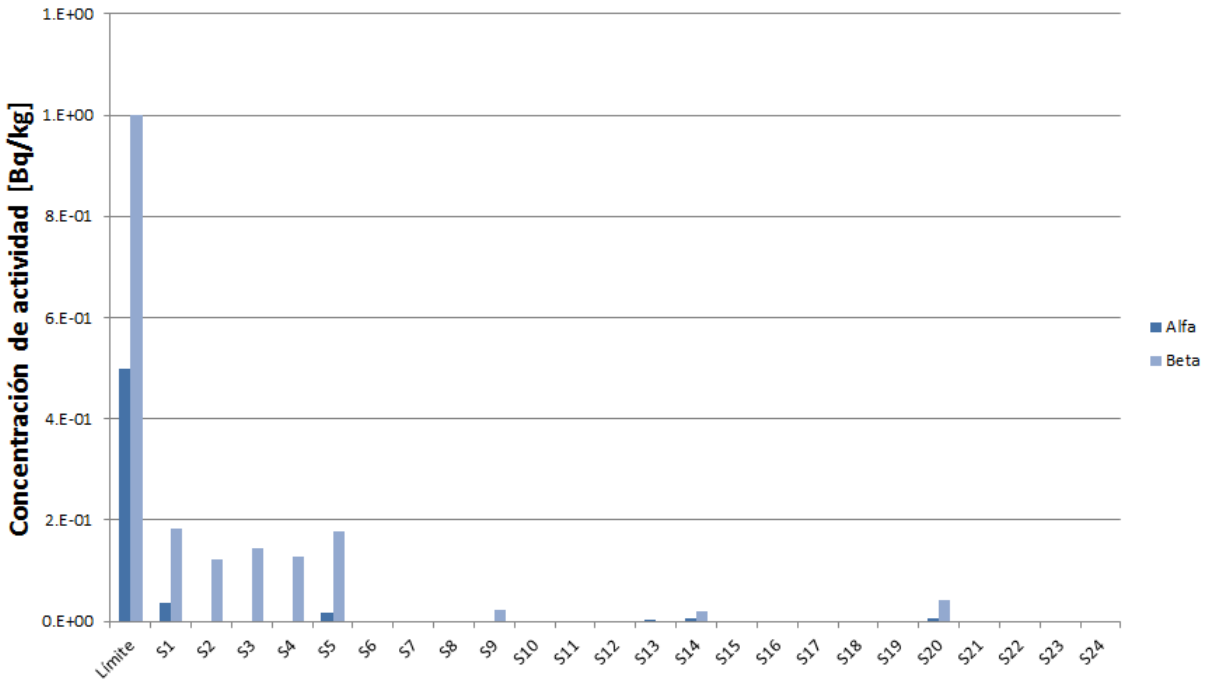


Figura 4-2.: Resultados de los diferentes puntos de muestreo, comparativo con el límite internacional

A. Certificado de radiactividad de las Fuentes del Quantulus1220

A continuacion encontramos el certificado del kit de viales estandard del Quantulus1220, este kit trae tres viales de vidrio: uno de Carbono-14 ^{14}C, uno de Tritio ^{3}H y el tercero es simplemente el líquido centellador usado en los otros dos, BKG.

PerkinElmer 2200 Warrenville Road, Downers Grove, IL 60515 Tel. No. 630 969-6000 Fax No. 630 322-5510

PerkinElmer®

CERTIFICATE OF RADIOACTIVITY

Unquenched Reference Standards for Liquid Scintillation Counting
Part Number 6008500/1215-111

Radionuclide	Activity	Lot No. = Assay Date	Serial No.
Tritium (^{3}H)	245,000 dpm/std ± 1.6%	July 23, 2010	138
Carbon-14	128,600 dpm/std ± 1.3%	July 23, 2010	138

REFERENCE STANDARD:

National Institute of Standards and Technology SRM 4947C (^{3}H) and SRM 4222C (^{14}C)

METHOD OF STANDARDIZATION:

The ^{3}H bulk solution is standardized by liquid scintillation counting using SRM 4947C as the reference material.

The ^{14}C bulk solution is standardized by liquid scintillation counting using SRM 4222C as the reference material.

I hereby certify that the above information is accurate.

Lilibeth Haden
Chemist

PERKINELMER TRACEABILITY INFORMATION

CATALOG NO.: 6008500/1215-111
DESCRIPTION: Set of Unquenched Standards

1. TRACEABLE ITEMS:

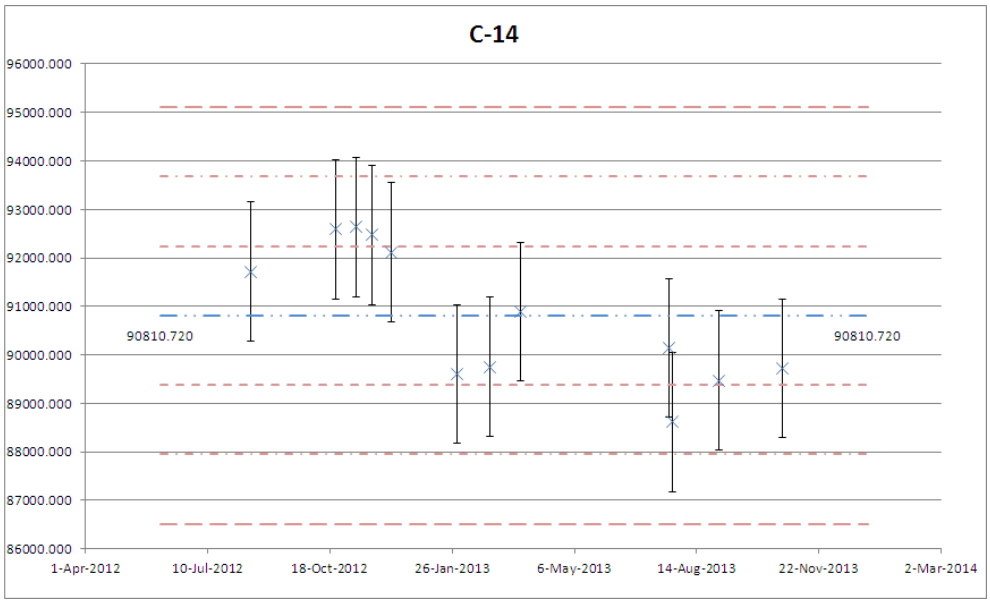
Part Number	Description	Activity	Reference Date	Serial Number
6008511	Background Std	None	JULY 2010	None
6008512	H-3 Std	~0.135 uCi	23 JULY 2010	138
6008513	C-14 Std	~0.067 uCi	23 JULY 2010	138

2. SHIPPER INSTRUCTIONS:

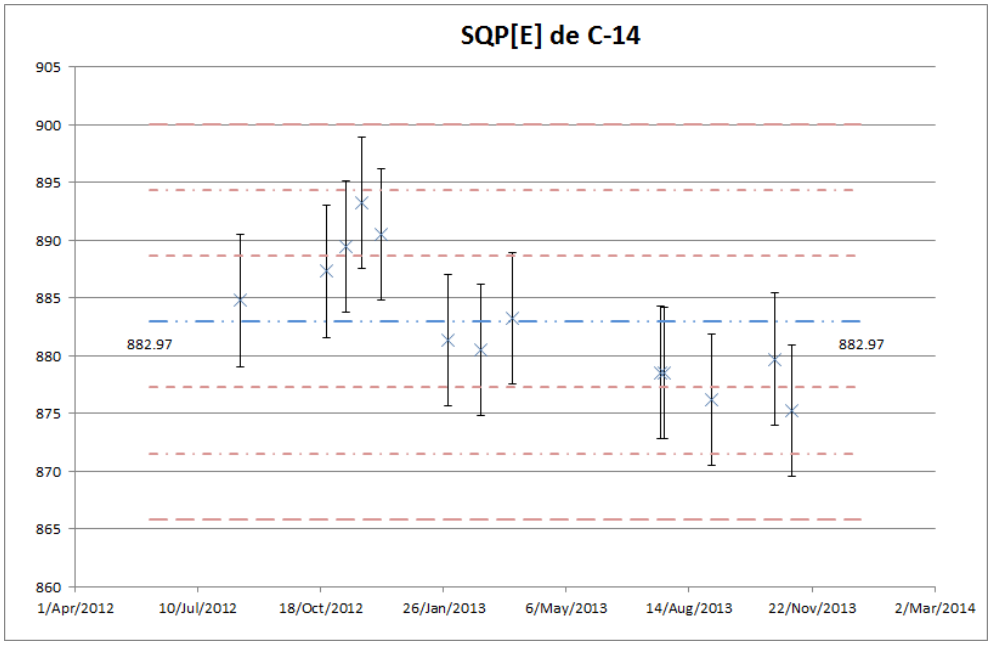
Copy 1 - to customer (or TSE)
Copy 2 - to Room M-118

Attach shipping label here:

B. Cartas Control Eficiencia y Blancos

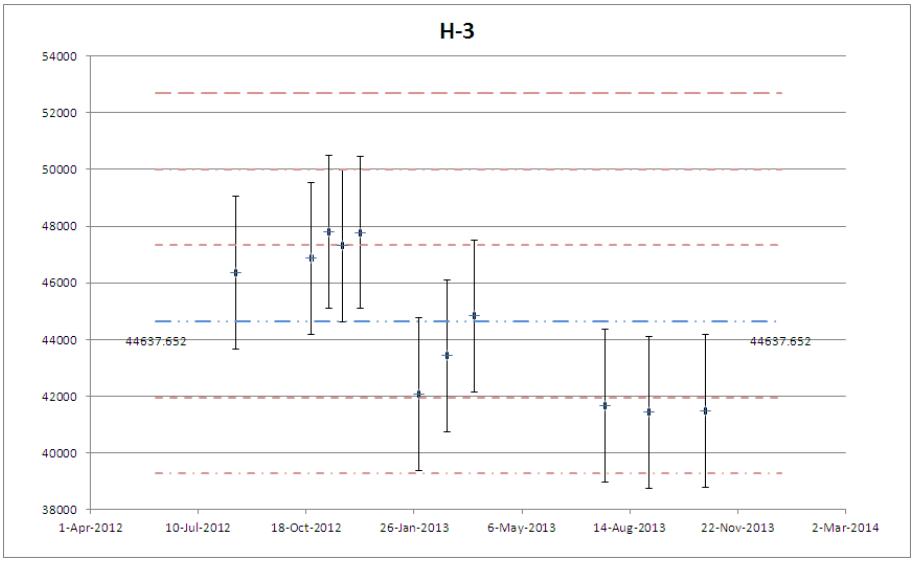


(a)

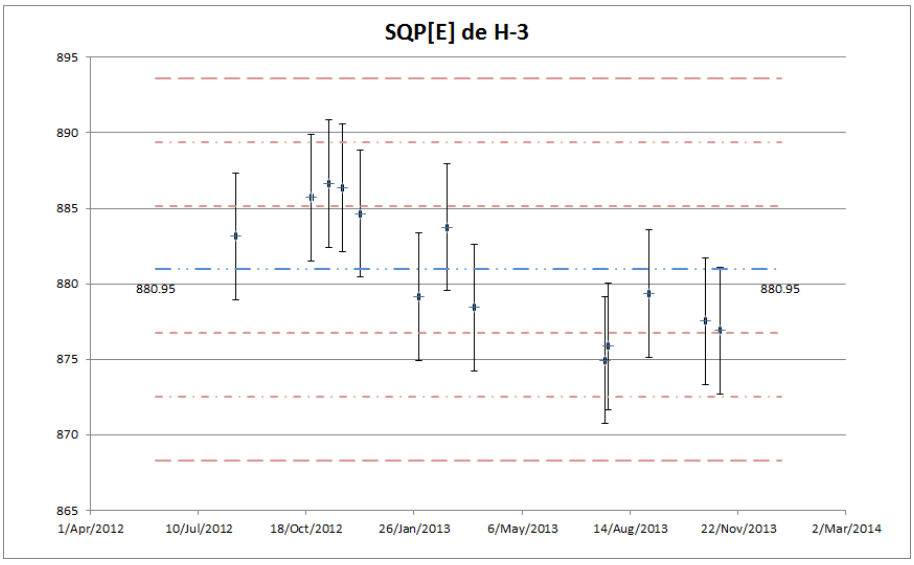


(b)

Figura B-1.: Carta Control de Eficiencia Carbono-14 y su respectivo SQP[E]

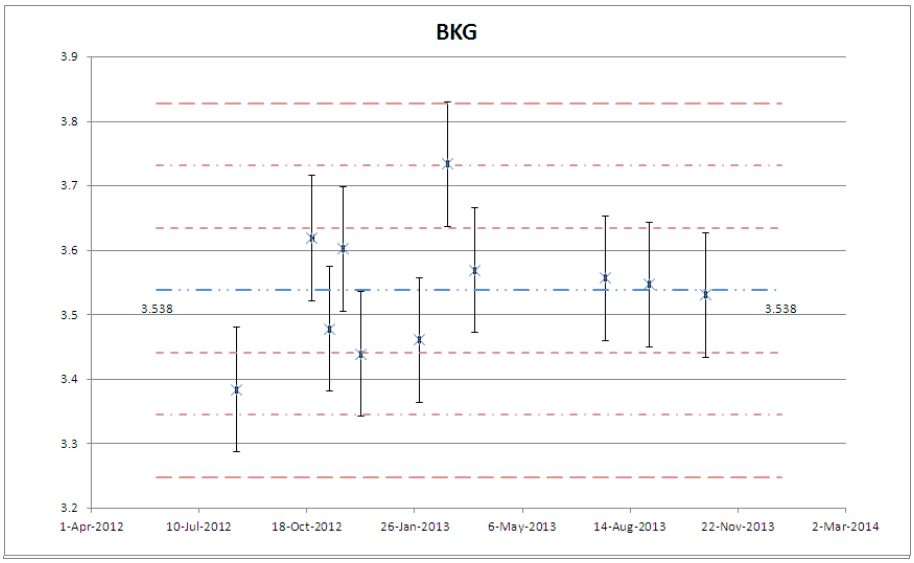


(a)

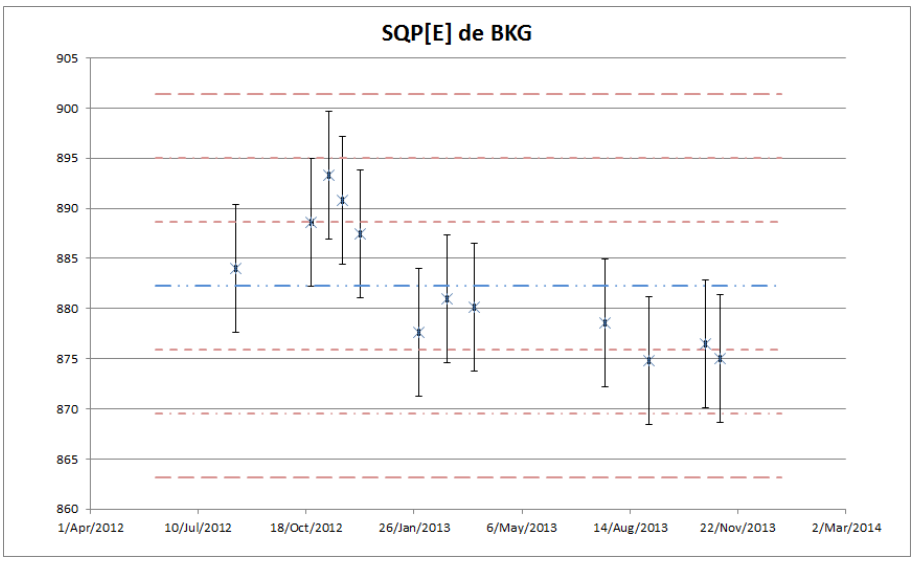


(b)

Figura B-2.: Carta Control de Eficiencia Tritio y su respectivo SQP[E]



(a)



(b)

Figura B-3.: Carta Control de Eficiencia BKG y su respectivo SQP[E]

C. Formato control de balanzas granatarias

Control de Balanzas granatarias

HOJA # _____

FECHA	Pesa 1	Pesa 2	Realizó
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			
dd/mm/aa			

D. Lista de chequeo y registro para Alfa Beta Grueso

Estos son los registros ideados para los ensayos de Alfa Beta Grueso. El registro posee la información necesaria para luego realizar los cálculos de actividad. Los pesos introducidos en gramos.

Universidad Nacional de Colombia - Sede Medellín
Laboratorio Bioanálisis

Registro Preparación de Muestras ALFA/BETA Grueso

HOJA # _____

	Preparación Muestra					Preparación Viales			
Código Muestra	Fecha	Peso Vaso	+ Muestra	pH	concentrado	Peso Vial	+ Muestra	+ Ultima Gold AB	Observaciones
	dd/mm/aa								
	dd/mm/aa								
	dd/mm/aa								
	dd/mm/aa								
	dd/mm/aa								
	dd/mm/aa								

Universidad Nacional de Colombia
Sede Medellín

Check-List

CL-AB-1

Protocolo Alfa / Beta Grueso Aguas de consumo humano

Código	
Fecha de preparación	dd/mm/aa

1	Filtre si es necesario			
2	Pesar el vaso de precipitado (250mL)		gramos	Pvaso *
3	Mida 100mL de muestra en la probeta			
4	Adicione los 100mL al vaso de precipitado medido			
5	Pesar el vaso+Muestra		gramos	Pvaso+muestra
6	Poner la muestra en la plancha calefactora sin que se produzcan salpicaduras			
7	Tomar un vaso de 100mL, con 50mL de agua desionizada			
8	Ajustar pH a 1.5±0.5 con H Cl		pH	
9	Lleve la muestra a sequedad			
10	Deje enfriar a temperatura ambiente			
11	Adicione 10mL del agua con el pH ajustado (pipeta)			
12	Pesar la muestra concentrada		gramos	P concentrado
13	Dejar el vaso en agitación magnética por 5minutos			

Viales

14	Pesar Vial		gramos	Pvial
15	Añadir 8mL de muestra concentrada (pipeta con punta nueva)			
16	Pesar vial + muestra		gramos	Pvial+Muestra
17	Añadir 12mL de Ultima Gold AB			
18	Pesar vial + muestra + Ultima Gold AB		gramos	Pvaso+muestra+UG-AB
19	Agitar manualmente los viales			
20	Limpiar los viales en exterior De ahora en adelante: **Manipular los viales solo por la tapa**			

Observaciones. NECESARIO: Procedencia de la muestra

* Anotar los pesos y ph en el registro

Bibliografía

[1] ASTM International: *Standard Test Method for Alpha Particle Radioactivity of Water*. 2005

[2] Chałupnik, S. ; Aguado, J.: RADIUM LEACHING FROM MINE DEPOSITS AND OTHER MATERIALS. En: *IAEA Naturally occurring radioactive materials (NORM IV) Proceedings of an international conference held in Szczyrk, Poland*. Suiza : OIEA, 17–21 May 2004

[3] Desideri, D. ; Roselli, C. ; Feduzi, L. ; Meli, M.A.: Radiological characterization of drinking waters in Central Italy. En: *Microchemical Journal* 87 (2007)

[4] Eisenbound, Merril ; Gesell, Thomas F.: *Environmental radioactivity from natural, industrial and military sources*. Academic Press Inc., 1997

[5] EPA. *Terms of Environment: Glossary, Abbreviations and Acronyms*. `http://www.epa.gov/OCEPAterms/`. 2013

[6] de epm, Biblioteca: *Acueducto*. – Fuera de circulación

[7] Fons, J. ; Zapata-García, D. ; Tent, J. ; Llauradó, M.: Simultaneous determination of gross alpha, gross beta and 226Ra in natural water by liquid scintillation counting. En: *Journal of Environmental Radioactivity* (2013). – ISSN 0265–931X

[8] González-Calvo, Ana ; Marugán, Inmaculada ; Rey, Carmen ; Salas, Rosario ; Sterling, Agustina ; Ramos, Lucila: Programas de vigilancia radiológica ambiental, Resultados 2004 / CSN. España, 2004. – Informe de Investigación

[9] Griffiths, David J.: *Introducction to Quantum Mechanics*. EE. UU. : Prentice Hall Inc., 1995

[10] Horrocks, Donald L.: *Applications of liquid scintillation counting*. EE. UU. : Academic Press Inc., 1974. – ISBN 978–0124316102

[11] Jia, Guogang ; Jia, Jing: Determination of radium isotopes in environmental samples by gamma spectrometry, liquid scintillation counting and alpha spectrometry: a review of analytical methodology. En: *Journal of Environmental Radioactivity* 106 (2011)

[12] Knoll, Glenn F.: *Radiation Detection and Measurement*. 3era Edición. John Wiley and Sons Inc., 1999

[13] L′Annunziata, Michael F.: *Handbook of Radioactivity Analysis*. 2da Edición. EE. UU. : Academic Press, 2003. – ISBN 978–0–12–436603–9

[14] Llauradó, M. ; Vallés, I. ; Abelairas, A. ; Alonso, A. ; Díaz, M. F. ; García, R. ; Robador, L. ; Ruiz, P. ; Suárez, J.A.: Procedimientos de determinación de los índices de actividad beta total y beta resto en aguas mediante contador proporcional / Consejo de Seguridad Nuclear - Procedimiento 1.5. España, 2004. – Colección Informes Técnicos 11

[15] Llauradó, Montserrat: *Procediment Normalitzat de Treball, Laboratori de Radiologia Ambiental*. Barcelona: Universitat de Barcelona

[16] Mingote, Raquel M.: Comunicación Personal. En: *e-mail* (2013), Agosto

[17] Mingote, Raquel M. ; da Costa, Heliana F. ; Vavassori, Giullia: Determinação De atividades Alfa E Beta Total em água para consumo humano por Lsc. En: *IX Latin American IRPA Regional Congress on Radiation Protection and Safety – IRPA2013*. Rio de Janeiro, Brasil, Abril 14-19

[18] Mäkinen, Pekka O.: *Handbook of Liquid Scintillation Counting*. Finlandia : Turku Institute of Technology, Department of Telecommunications, 1995

[19] OIEA. *Uranium Developed Features*. `http://www.iaea.org/newscenter/features/du/du_qaa.shtml`. 2012

[20] OMS (Ed.): *Guidelines for drinking-water quality: incorporating 1st and 2nd addenda*. Vol. 1. Tercera edición. Suiza : Organización Mundial de la Salud, 2008

[21] PerkinElmer: *User Manual EASY View, 1224-534 Spectrum analysis program for 1220 Quantulus*. Octubre 1998

[22] PerkinElmer: *Wallac 1220 Quantulus Instrument Manual*. Diciembre 2000

[23] Restrepo-Benítez, Juan C.: *Modelo De Despacho Óptimo Del Sistema De Acueducto De Las Empresas Públicas De Medellín E.S.P*. Medellín, Universidad Nacional de Colombia - Facultad de Minas - Posgrado En Aprovechamiento De Recursos Hidráulicos, Tesis de Grado, Enero 2001

[24] Restrepo-Benítez, Juan C. ; Smith, Ricardo A.: Modelo de despacho óptimo del sistema de acueducto de las Empresas Públicas de Medellín E.S.P (EEPPM). En: *Avances en recursos hidráulicos* (2001), Septiembre, Nr. 8

[25] Staf: *Principles and Applications of Liquid Scintillation Counting, A PRIMER FOR ORIENTATION.* National Diagnostics Laboratory. EE. UU., 2004

[26] Thomasz, Esteban: *Radioprotección en Aplicaciones Medicas.* Argentina : ARN, 2000

[27] Turner, James E.: *Atoms, Radiation and Radiation Protection.* Alemania : Wiley-VCH, 2007

[28] Villa, M: Low-level measurements of tritium in water. En: *Applied Radiation and Isotopes* 61 (2004)

[29] Villa-Alfageme, María.: *Técnicas experimentales para la medida por centelleo líquido de la actividad emisores beta en el medioambiente.* España, Universidad de Sevilla, Tesis de Doctorado, 2004