

REVISTA INVESTIGACIONES Y APLICACIONES NUCLEARES

SERVICIO GEOLÓGICO COLOMBIANO • BOGOTÁ D.C. • ISSN: 2590-7468

Revisión sobre la Producción de Radionúcleos en Reactores Nucleares y sus Aplicaciones como Radiotrazadores

Radionuclides produced in Nuclear Reactors and its Applications as Radiotracers

Estimación de los Parámetros de Flujo Neutrónico f y ϕ_{th} a partir de la Irradiación de Suelos de Referencia y Monitores de Al-Au

Estimation of Neutron Flux Parameters f and ϕ_{th} by using both Reference Soil materials and Al-Au alloy Irradiation

Montaje para la determinación *In-Situ* por espectrometría Gamma de Descargas Líquidas de ^{131}I en Servicios de Terapia

A Setup for *In-situ* measurements of liquid discharges of ^{131}I by Gamma Spectrometry in Radiotherapy Services

Implementación del Laboratorio de Termocronología de Baja Temperatura: Inter-comparación del Servicio Geológico Colombiano-Universidad Grenoble Alpes

Implementation of the Low-temperature Thermochronology Laboratory: Intercomparison of the Colombian Geological Survey-Grenoble Alpes University

Implementación del Método para la Determinación de Isótopos Estables de Carbono ($\delta^{13}\text{C}$) en Carbones Mediante Espectrometría de Masas de Relaciones Isotópicas (IRMS)

Implementation of the Method for the Determination of Stable Isotopes of Carbon ($\delta^{13}\text{C}$) in coals by Isotope Ratio Mass Spectrometry (IRMS)

INVESTIGACIONES Y APLICACIONES NUCLEARES

Revista
INVESTIGACIONES Y APLICACIONES NUCLEARES

Revista Técnica y Científica
Dirección de Asuntos Nucleares

Director General Servicio Geológico Colombiano
Oscar Eladio Paredes Zapata

Director de la Revista IAN
Fernando Mosos Patiño

Secretario General del Servicio Geológico Colombiano
Iván A. Sarmiento Galvis

Gestión Editorial

MSc. Guillermo Parrado L.
PhD. Diana Carolina Herrera.
MSc. David Alonso C.
Andrés Porras

Comité Editorial Servicio Geológico Colombiano

Armando Espinosa Baquero

Presidente del Comité Editorial

Alberto Ochoa Yarza
Marta Calvache Velasco
Gloria Prieto Rincón
Héctor Enciso Prieto
Fernando Mosos Patiño
Margarita Bravo Guerrero
Juan Manuel Herrera

Viviana Dionicio
Teresa Duque
Gustavo Garzón
Guillermo Parrado Lozano
Julián Escallón
Nehify Andrea Pablos Corredor

Comité Científico Nuclear Dirección Asuntos Nucleares

Guillermo Abel Parrado
Mary Luz Peña
Fernando Mosos Patiño
Camilo Andrés Sevilla
Julián Niño Castañeda
Mauricio López Rodríguez
Rubén Quintero
Oscar Alberto Sierra

David Leonardo Alonso
Cindy Lizeth Urueña
Pedro Nel Casallas
Diana Carolina Herrera Muñoz
Claudia Reyes
Jaime Sandoval Lagos
José Esaú Garavito Castellanos
Laura Mercedes López

Grupo de Participación Ciudadana y Comunicaciones

Lilia Milena Castelblanco Cárdenas

Concepto y diseño de cubierta

Diana Paola Abadía y Adriana Carolina Mogollón Castellanos

Impresión

Imprenta Nacional de Colombia
Carrera 66 No. 24-09 - PBX: 4578000
www.imprenta.gov.co

ISSN 2590-7468

© Servicio Geológico Colombiano (SGC)
Bogotá, D.C. - Colombia

PRESENTACIÓN DE LA REVISTA A CARGO DEL DIRECTOR GENERAL SGC

Óscar Eladio Paredes Zapata..... 4

EDITORIAL A CARGO DEL DIRECTOR DE LA REVISTA

Fernando Mosos Patiño..... 4

1. REVISIÓN SOBRE LA PRODUCCIÓN DE RADIONÚCLIDOS EN REACTORES NUCLEARES Y SUS APLICACIONES COMO RADIOTRAZADORES

Radionuclides produced in Nuclear Reactors and its Applications as Radiotracers:

A review

David L. Alonso, Víctor M. Pabón, Guillermo A. Parrado y J. Carolina Parada6

2. ESTIMACIÓN DE LOS PARÁMETROS DE FLUJO NEUTRÓNICO f Y Φ_{th} A PARTIR DE LA IRRADIACIÓN DE SUELOS DE REFERENCIA Y MONITORES DE Al-Au

Estimation of Neutron Flux Parameters f and Φ_{th} by using both Reference Soil materials and Al-Au Alloy Irradiation.

Oscar A. Sierra, Guillermo A. Parrado, David L. Alonso, Diana C. Herrera, Mary L. Peña y

Andrés F. Porras..... 24

3. MONTAJE PARA LA DETERMINACIÓN *IN SITU* POR ESPECTROMETRÍA GAMMA DE DESCARGAS LÍQUIDAS DE ^{131}I EN SERVICIOS DE TERAPIA

A setup for In situ measurements of liquid discharges of ^{131}I by Gamma Spectrometry in Radiotherapy Services

Fernando Mosos, Angela Abadía, Johnny W. Gómez y Pedro Casallas..... 30

4. IMPLEMENTACIÓN DEL LABORATORIO DE TERMOCRONOLOGÍA DE BAJA TEMPERATURA: INTERCOMPARACIÓN DEL SERVICIO GEOLÓGICO COLOMBIANO - UNIVERSIDAD GRENOBLE ALPES

Implementation of the Low-temperature Thermocronology Laboratory: Intercomparison of the Colombian Geological Survey-Grenoble Alpes University

Sergio Amaya, Cindy Urueña, Mary L. Peña, Lorena Rayo y Matthias Bernet..... 38

5. IMPLEMENTACIÓN DEL MÉTODO PARA LA DETERMINACIÓN DE ISÓTOPOS ESTABLES DE CARBONO ($\delta^{13}\text{C}$) EN CARBONES MEDIANTE ESPECTROMETRÍA DE MASAS DE RELACIONES ISOTÓPICAS (IRMS)

Implementation of the Method for the Determination of Stable Isotopes of Carbon ($\delta^{13}\text{C}$) in Coals by Isotope Ratio Mass Spectrometry (IRMS)

Maribel Moreno, Mary L. Peña y Ricardo Álvarez..... 50

PRESENTACIÓN

Revista "Investigaciones y Aplicaciones nucleares"

En el marco de la nueva institucionalidad que surge para el Servicio Geológico Colombiano-SGC, a partir de la expedición de los Decretos No. 4131 de 2011 y 2703 de 2013, que reglamentan sus funciones y estructura organizacional respectivamente, esta Administración ha focalizado sus esfuerzos en la consecución de resultados tangibles que otorguen identidad de ciencia y tecnología a esta centenaria y emblemática entidad, patrimonio de la sociedad colombiana en su conjunto.

De esta forma hemos privilegiado, mediante el Acuerdo No. 08 de 2014, Política de Gestión de la Información Geocientífica del Servicio Geológico Colombiano y las Resoluciones D-325 del 10 de julio de 2015, Sistema de Publicaciones del Servicio Geológico Colombiano y D-326 del 10 de julio de 2015, creación del Comité Editorial del Servicio Geológico Colombiano, la adopción de los instrumentos que posibilitan la expresión formal del proceso de investigación y conocimiento del Territorio Nacional y de los Usos Pacíficos de la Energía Nuclear, como es la divulgación de resultados a través de las publicaciones científicas.

Las publicaciones, como esta que presentamos hoy a la Comunidad Científica: **REVISTA DE INVESTIGACIONES Y APLICACIONES NUCLEARES "IAN"**, representan el compromiso del Servicio Geológico Colombiano para hacer accesibles a todos los públicos, los conocimientos teóricos y aplicados que se generan en nuestras modernas instalaciones y tecnologías.

En este primer número de la Revista IAN, se recoge una producción técnica representativa de los logros en materia del conocimiento y aprovechamiento seguro de la energía nuclear en nuestro país, donde esta entidad como rectora de esta temática, cumple con las expectativas técnicas generadas hace algunos años y empieza ahora un círculo virtuoso de producción continua de este saber científico para beneficio de todos los ciudadanos de esta Nación.

OSCAR PAREDES ZAPATA

Director General

EDITORIAL

Nueva serie de la publicación y nuevos desafíos

La Revista de Investigaciones y Aplicaciones Nucleares (IAN), es una nueva etapa de la Revista Nucleares del antiguo Instituto de Asuntos Nucleares, treinta años después que apareciera su primer número en 1986. Aunque esta publicación adquiere un nombre diferente, su Comité Científico consideró que el nombre "Investigaciones y Aplicaciones Nucleares", además que refleja su razón de ser, rescata como homenaje la sigla IAN, de tan grata recordación para muchos colegas y personas de nuestra comunidad científica.

El "Plan Estratégico del Conocimiento Geológico 2014-2023" del Servicio Geológico Colombiano (SGC), documento cuya última versión es de diciembre de 2014, y que sirve como una de las guías estratégicas para orientar los esfuerzos misionales del Instituto, incluye un apartado dedicado a las temáticas nucleares, en cuyo contenido se ha establecido una visión a 10 años en investigaciones y aplicaciones radiactivas, nucleares e isotópicas, en donde se pueden destacar las siguientes metas:

- Disponer de una infraestructura que soporte la investigación asociada a la tecnología de irradiación, a la metrología de las radiaciones y a la gestión de desechos radiactivos.
- Consolidar las aplicaciones nucleares directamente relacionadas con el Reactor Nuclear como son Análisis por Activación Neutrónica, Huellas de Fisión, Neutrones Retardados, Producción de Radioisótopos y demás laboratorios de geocronología.
- Participación activa en los proyectos de investigación asociada a las técnicas nucleares con particular énfasis en la generación de conocimiento geo-científico y la seguridad radiológica.

Esta entrega de la Revista "IAN" consta de cinco artículos que de manera secuencial se presentan en una cronología que corresponde

a un reconocimiento de nuestra propia historia, del presente y de los nuevos desafíos de la institucionalidad nuclear colombiana. Es así como los primeros dos trabajos guardan relación directa con la recuperación de capacidades del Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1 conseguidas en las décadas anteriores, para tal efecto se presenta una revisión bibliográfica detallada de la producción de radiotrazadores en reactores nucleares de investigación con énfasis en las aplicaciones de diversas áreas o tópicos selectos orientados a determinar las potencialidades del reactor nuclear colombiano frente al escenario definido en el plan estratégico del SGC; en seguida se muestra la presentación de los primeros resultados concretos del SGC obtenidos por la reactivación de la operación del reactor nuclear IAN-R1 de los últimos años, en particular con la técnica de Análisis por Activación Neutrónica.

El tercer artículo es una propuesta técnica para resolver una de varias situaciones sobrevinientes, que la reciente actualización de la normativa nuclear ha traído a las instalaciones radiactivas del país; uno de los aspectos más importantes derivados de la mencionada actualización es el establecimiento de requisitos de seguridad en los vertimientos radiactivos de instalaciones y en virtud de ello se presenta una alternativa técnica para determinación *in situ* de I-¹³¹, habida cuenta de su especial interés radiológico.

Los artículos científicos cuarto y quinto, son trabajos que presentan los importantes avances que el SGC ha tenido en el último lustro y que han situado a la geocronología y a la geología isotópica como dos de las nuevas líneas de investigación de las técnicas nucleares que muestran un futuro más promisorio. Se presenta la implementación de los laboratorios de termocronología y de isótopos estables en muestras sólidas, instalaciones únicas en el país y que tienen aplicación directa en los productos de conocimiento geocientífico que entrega nuestra entidad.

A través de la publicación de la Revista "IAN", se establece un canal de comunicación, divulgación y apropiación del conocimiento nuclear colombiano, para que esta institucionalidad liderada por el SGC, presente de forma periódica los resultados de sus trabajos e investigaciones científicas, mismos que lo llevarán en los próximos años a cumplir con el desafío planteado de consolidar las capacidades científicas y tecnológicas de las aplicaciones nucleares y radiactivas en beneficio de toda la población colombiana.

Fernando Mosos Patiño

Director de la Revista IAN

Revisión sobre la producción de radionúclidos en reactores nucleares y sus aplicaciones como radiotrazadores

Radionuclides produced in nuclear reactors and its applications as radiotracers: A review

D.L. Alonso ^{1,a)}, V.M. Pabón ², G.A. Parrado ¹ y J.C. Parada ¹

¹ Dirección de Asuntos Nucleares, Servicio Geológico Colombiano, Carrera 50 No. 26-20, Bogotá, D.C., Colombia

² Grupo de Investigación en Ciencia y Tecnología Nuclear, Universidad Distrital Francisco José de Caldas
Carrera 4 No. 26B-54, Bogotá, D.C., Colombia

Autor para correspondencia: ^{a)}dalonso@sgc.gov.co

Resumen

Se presenta una revisión acerca de los radionúclidos que se producen en reactores nucleares y sus aplicaciones como radiotrazadores en hidrología, agricultura, industria, medicina, medio ambiente e investigación en general, tanto en Latinoamérica como los que se produjeron en Colombia desde 1965 con el Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1, para que bajo esa mirada sea posible reactivar la producción de radionúclidos como ¹⁹⁸Au, ²⁴Na, ³²P y ⁸²Br en el país.

Palabras clave: Flujo neutrónico, Pureza radionuclídica, Pureza radioquímica, Radionúclido.

Abstract

A review of the radionuclides produced in nuclear reactors and their applications as radiotracers in hydrology, agriculture, industry, medicine, the environment and research in general are presented, both in Latin America and those produced in Colombia since 1965 with the Research Nuclear Reactor IAN-R1, so that under that view it is possible to reactivate the production of radionuclides in the country as ¹⁹⁸Au, ²⁴Na, ³²P and ⁸²Br.

Keywords: Neutron flux, Radionuclidic purity, Radiochemical purity, Radionuclide.

1. INTRODUCCIÓN

La tecnología nuclear se utiliza ampliamente en el mundo en diferentes campos de la ciencia y la industria, por el ahorro significativo de tiempo y esfuerzo que representan sus diversas aplicaciones, en comparación con las técnicas convencionales [1].

La primera aplicación de un radionúclido como radiotrazador o indicador radiactivo se llevó a cabo en 1913 por parte de George de Hevesy¹ y Frederic Paneth, quienes utilizaron el llamado RadioD (²¹⁰Pb, cuyo origen

natural proviene de la desintegración de la familia del ²³⁸U), para estudiar la solubilidad del sulfuro y cromato de plomo [2, 3]. Desde entonces, los radiotrazadores se usan ampliamente para detectar y hacer el seguimiento de la presencia de compuestos en diversos procesos físicos, químicos y biológicos.

En Colombia la producción de radionúclidos en el Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1, inició a finales de los años 60, alcanzando su mayor productividad en la década de los 80, y finalizó en 1992 debido al cambio del combustible del reactor nuclear y la modernización de los sistemas de control, proceso que se llevó a cabo desde 1993 hasta 1997 [4]. Este último año coincidió con el cierre del Instituto de Ciencias Nucleares y Energías Alternativas (INEA), encargado de su operación en esa

1 Premio Nobel de Química en 1943 "por su trabajo sobre el uso de los isótopos como trazadores en el estudio de los procesos químicos".

época, y desde entonces, pese a que dicho reactor fue reactivado en 2005, no se producen radionúclidos por esta vía en el país.

Por lo anterior, el objetivo de este trabajo es realizar una revisión del estado del arte en cuanto a la producción de radionúclidos en reactores nucleares, con énfasis en los que se producen en Latinoamérica y su aplicación como radiotrazadores, así como hacer una evaluación de cuáles radionúclidos pueden ser factibles de producir en el Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1, operado actualmente por el Servicio Geológico Colombiano (SGC), con fines de divulgar e intentar despertar en la comunidad científica nacional y en el sector industrial el interés de reactivar a corto plazo la producción y aplicación de dicha tecnología en Colombia.

2. PRODUCCIÓN Y APLICACIONES

El uso de los radionúclidos como radiotrazadores se basa en la idea que todos los isótopos (estables y radiactivos) de un elemento dado, se comportan químicamente del mismo modo. Por tanto un radiotrazador es un compuesto químico en el que uno o más átomos se han sustituido por un radionúclido. De esta forma se puede realizar el *radiomarcado* de un elemento estable presente en un compuesto químico, permitiendo hacer seguimiento al sistema donde se encuentra, mediante la medición de las radiaciones que emite en virtud de su desintegración, la cual se hace mediante instrumentación nuclear apropiada. Así por ejemplo, es más fácil hacer el seguimiento de los átomos de ^{24}Na (radiactivo), para detectar los átomos de ^{23}Na (estable), ya que basta tan solo un átomo, pues una desintegración detectada corresponde directamente a la emisión gamma de un átomo de este radionúclido [5]. En contraste con técnicas de análisis químico convencional, hoy en día se pueden detectar pequeñas cantidades de una sustancia en el orden de μg o ng , que para el caso del ^{23}Na , estas cantidades corresponderían a tener entre 10^{13} - 10^{16} átomos para obtener una respuesta analítica.

El radiotrazador se puede utilizar para explorar el mecanismo de las reacciones químicas mediante el seguimiento de la ruta que este toma en un sistema dado. Esta técnica emplea detectores que permiten la localización y seguimiento del radionúclido en función del tiempo, con lo cual se determinan diferentes características del

proceso en estudio con la posibilidad de proyectar modelos bi y tridimensionales del mismo [6].

Para que un compuesto pueda usarse como radiotrazador debe cumplir las siguientes condiciones: (a) el comportamiento o interacción con el sistema a estudiar debe ser conocido y reproducible, (b) no debe alterar ni perturbar el sistema y (c) que su concentración se pueda medir con facilidad [7].

Como ventajas del uso de radiotrazadores están las siguientes: (a) son fáciles de detectar y medir con gran precisión con sensibilidades de 10^{-16} hasta 10^{-6} g, (b) la radiactividad es independiente de la presión, la temperatura, el estado físico y químico del sistema, (c) no afectan el sistema en estudio y se pueden utilizar en técnicas no destructivas, (d) si es radioquímicamente puro, no hay interferencias de otros elementos, (e) su medición es independiente de la matriz [8], (f) la mayoría tienen vida media relativamente corta, como se ve en la Tabla 1 (desde horas hasta pocos días), lo cual implica para el personal que los manipula, una dosis baja de exposición a la radiación, ya que los experimentos se deben realizar en tiempos cortos antes que el radionúclido se desintegre y desaparezca totalmente, por lo cual la gestión de residuos radiactivos se reduce al mínimo. En cuanto a desventajas, la más importante es la necesidad de tener un acelerador de partículas o una fuente de neutrones para producirlos cerca al lugar en donde se aplicará el radiotrazador [7].

2.1 Métodos de Producción de Radionúclidos

Inicialmente, los radionúclidos que se utilizaron como radiotrazadores fueron los isótopos radiactivos de elementos de origen natural. Sin embargo, con la invención de Ernest Lawrence en 1932 del primer ciclotrón de protones de 1 MeV (precursor de los actuales aceleradores de partículas de alta energía) y el desarrollo del proceso de fisión durante la Segunda Guerra Mundial (construcción del primer reactor nuclear artificial en 1942), la mayoría de los radionúclidos, especialmente los de interés médico, comenzaron a producirse artificialmente en reactores nucleares y en aceleradores de partículas.

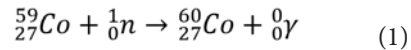
El reactor tiene la ventaja de producir varios radionúclidos por la posibilidad de irradiar simultáneamente diferentes blancos, en comparación con los aceleradores, que solamente pueden producir un radionúclido a la vez [9]. La producción artificial se inició a gran escala en varios países con la puesta en marcha de los reacto-

res de investigación a finales de 1950, construcción que continuó hasta 1970 con múltiples facilidades para la producción de radionúclidos. A partir de 1980, debido a la clausura de algunos reactores viejos (con más de 30 años de uso) y la entrada en operación de otros nuevos, el número de reactores en funcionamiento se ha mantenido constante hasta la actualidad. La mayor parte de la producción mundial de radionúclidos se lleva a cabo en reactores nucleares de alta potencia (> 1 MW), los cuales ofrecen flujos neutrónicos que oscilan entre valores intermedios (10^{13} - 10^{14} n cm⁻² s⁻¹) a valores altos (> 10^{14} n cm⁻² s⁻¹) [10-12].

La producción de radionúclidos mediante una reacción nuclear en un reactor, se logra irradiando un blanco apropiado con los neutrones que se emiten de la fisión del ²³⁵U. Los factores que determinan el tipo de reacción nuclear que tiene lugar y la tasa de producción son: (a) la energía de los neutrones (ε) y su flujo (φ), (b) las características y cantidad del blanco y (c) la sección eficaz de activación (σ) de los átomos

que componen el blanco [13], parámetros que corresponden a la ecuación de activación. En general existen varios métodos de producción de radionúclidos en reactores, los cuales se describen a continuación:

Activación neutrónica: la principal reacción nuclear que se utiliza para producir radionúclidos es la denominada captura neutrónica (n, γ) [8], que ocurre típicamente con neutrones térmicos de 0,025 eV como proyectiles (Ec. 1).



El radionúclido producto, como el ⁶⁰Co, generalmente se desintegra hasta convertirse en un núclido estable, por emisión de radiación β⁻ y γ en el proceso (Figura 1).

Algunos reactores utilizan neutrones rápidos, cuya energía es > 1 MeV, para producir radionúclidos mediante otras reacciones nucleares como (n, p), por ejemplo en la producción de ⁵⁸Co a partir de ⁵⁸Ni (Ec. 2) o con la reacción (n, α) [7].

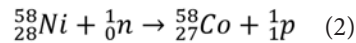
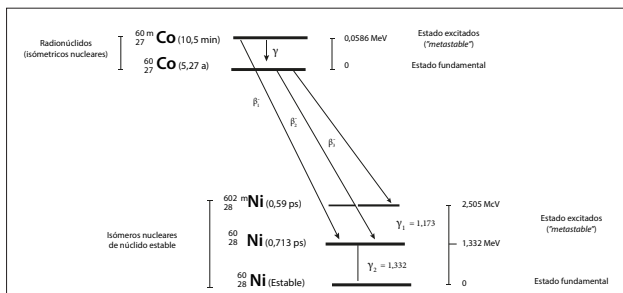


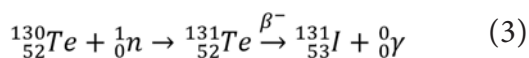
Tabla 1. Principales radionúclidos producidos en reactores nucleares, modificado de [5, 14]

| Radionúclido | Vida media | Material blanco | Reacción Nuclear |
|--------------------|------------|--|---|
| ²⁴ Na | 15,02 h | NaCO ₃ (natural) | ²³ Na(n,γ) ²⁴ Na |
| ³² P | 14,3 d | S (natural) | ³² S(n,p) ³² P |
| ³⁵ S | 87,4 d | KCl (natural) | ³⁵ Cl(n,p) ³⁵ S |
| ⁴⁶ Sc | 83,8 d | Sc ₂ O ₃ (natural) | ⁴⁵ Sc(n,γ) ⁴⁶ Sc |
| ⁴⁷ Ca | 4,54 d | CaCO ₃ (⁴⁶ Ca al 50%) | ⁴⁶ Ca(n,γ) ⁴⁷ Ca |
| ⁵¹ Cr | 27,7 d | Cr (⁵⁰ Cr al 94,6%) | ⁵⁰ Cr(n,γ) ⁵¹ Cr |
| ⁵⁸ Co | 70,8 d | Ni (natural) | ⁵⁸ Ni(n,p) ⁵⁸ Co |
| ⁵⁹ Fe | 44,6 d | Fe ₂ O ₃ (⁵⁸ Fe al 90%) | ⁵⁸ Fe(n,γ) ⁵⁹ Fe |
| ⁶⁴ Cu | 12,7 h | CuO o Cu (natural) | ⁶³ Cu(n,γ) ⁶⁴ Cu |
| ⁷⁵ Se | 119,8 d | Se (⁷⁴ Se al 99%) | ⁷⁴ Se(n,γ) ⁷⁵ Se |
| ⁸² Br | 36 h | CaBr ₂ (natural) | ⁸¹ Br(n,γ) ⁸² Br |
| ⁸⁵ Sr | 64,8 d | SrCO ₃ (⁸⁴ Sr al 57%) | ⁸⁴ Sr(n,γ) ⁸⁵ Sr |
| ⁸⁹ Sr | 50,5 d | SrCO ₃ (⁸⁸ Sr al 90%) | ⁸⁸ Sr(n,γ) ⁸⁹ Sr |
| ⁹⁰ Y | 64,1 h | Y ₂ O ₃ (natural) | ⁸⁹ Y(n,γ) ⁹⁰ Y |
| ^{99m} Tc | 6,02 h | Producto de fisión | ²³⁵ U(n,f) ⁹⁹ Mo → ^{99m} Tc |
| ^{113m} In | 1,66 h | Sn (¹¹² Sn al 80%) | ¹¹² Sn(n,γ) ¹¹³ Sn → ^{113m} In |
| ¹²⁵ I | 60,0 d | Xe (¹²⁴ Xe al 25%) | ¹²⁴ Xe(n,γ) ¹²⁵ Xe → ¹²⁵ I |
| ¹³¹ I | 8,04 d | TeO ₂ o Te ₂ O ₃ (natural) | ¹³⁰ Te(n,γ) ¹³¹ Te → ¹³¹ I |
| ¹³³ Xe | 5,25 d | Producto de fisión | ²³⁵ U(n,f) ¹³³ Xe |
| ¹⁴⁰ La | 1,68 d | La ₂ O ₃ (natural) | ¹³⁹ La(n,γ) ¹⁴⁰ La |
| ¹⁵³ Sm | 1,9 d | Sm ₂ O ₃ (¹⁵² Sm al 99%) | ¹⁵² Sm(n,γ) ¹⁵³ Sm |
| ¹⁶⁵ Dy | 2,3 h | Dy ₂ O ₃ (¹⁶⁴ Dy al 98,4%) | ¹⁶⁴ Dy(n,γ) ¹⁶⁵ Dy |
| ¹⁷⁰ Tm | 128,6 d | Tm ₂ O ₃ o Tm (natural) | ¹⁶⁹ Tm(n,γ) ¹⁷⁰ Tm |
| ¹⁷⁷ Lu | 6,7 d | Lu ₂ O ₃ (¹⁷⁶ Lu al 72%) | ¹⁷⁶ Lu(n,γ) ¹⁷⁷ Lu |
| ¹⁸⁶ Re | 3,7 d | ¹⁸⁵ Re al 99,7% | ¹⁸⁵ Re(n,γ) ¹⁸⁶ Re |
| ¹⁹² Ir | 74,0 d | Ir (natural) | ¹⁹¹ Ir(n,γ) ¹⁹² Ir |
| ¹⁹⁸ Au | 2,70 d | Au (natural) | ¹⁹⁷ Au(n,γ) ¹⁹⁸ Au |

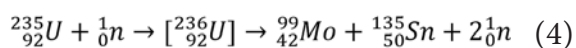
Figura 1. Esquema de desintegración del ^{60}Co [3]



Transmutación neutrónica: tiene el mismo principio de la reacción (n, γ) seguida por desintegración β^- , pero a diferencia de la anterior, conduce a un producto inestable con vida media corta que se desintegra por emisión β^- al radionúclido de interés, el cual posteriormente se separa radioquímicamente del padre, como ocurre en la producción de ^{131}I (Ec. 3).



Productos de fisión nuclear: son los radionúclidos que se obtienen por separación radioquímica de productos de fisión del ^{235}U , como por ejemplo el ^{99}Mo (Ec. 4).



En la Tabla 1 se presenta una recopilación de los principales radionúclidos producidos en reactores nucleares, su vida media, el blanco y la reacción nuclear que se emplea para su producción.

2.2. Síntesis de Radiotrazadores

Una vez producido el radionúclido por alguno de los métodos expuestos anteriormente, es necesario llevarlo a una forma química adecuada para que se pueda emplear en el sistema objeto de estudio. Para ello se selecciona un compuesto químico apropiado (orgánico o inorgánico), dependiendo de las características del medio y sus condiciones fisicoquímicas (pH, temperatura, solubilidad, potencial de oxidación-reducción, entre otras). La obtención del compuesto se realiza mediante una

síntesis química, considerando los parámetros de protección radiológica adecuados, como blindajes y tiempos de exposición, dependiendo del tipo de radiación (β y/o γ) que emita el radionúclido a manipular.

Normalmente, la calidad del producto sintetizado se determina mediante el cumplimiento de las siguientes condiciones: (1) *actividad específica*: entendida como el número de átomos radiactivos por unidad de volumen, la cual depende de las propiedades físicas y químicas del blanco irradiado y de las condiciones de irradiación (flujo neutrónico y tiempo de irradiación), (2) *pureza química*: hace referencia a la posible contaminación por otras especies químicas estables que puedan afectar el desempeño del radiotrazador y que por ende, no debe exceder cierto límite establecido, dependiendo de las necesidades del usuario o el propósito buscado con el estudio, y (3) *pureza radionuclídica*: entendida como la ausencia de contaminación debida a otros radionúclidos que hayan podido formarse durante el proceso de activación o como producto de la propia desintegración de los radionúclidos formados inicialmente [9]. Estos controles se deben realizar previamente como parte de la optimización del proceso de síntesis, con el fin de seleccionar el compuesto radioquímico adecuado para el estudio que se pretende desarrollar.

2.3. Aplicaciones de los Radiotrazadores

Los radiotrazadores se utilizan para seguir el comportamiento de un sistema a gran escala, como el medio ambiente o en un proceso químico simple de laboratorio. Entre las principales aplicaciones de los radionúclidos como radiotrazadores en diferentes campos del conocimiento están las siguientes:

Aplicaciones Médicas

La medicina nuclear hace uso del hecho de que ciertos radionúclidos emiten radiación (gamma, electrones o positrones) con la energía suficiente para ser detectados fuera del cuerpo [15]. Al unir tales radionúclidos a compuestos biológicamente activos, la actividad se localiza bien sea dentro de los tejidos corporales particulares, o tienen la libertad de seguir una ruta bioquímica específica. Dichos radiotrazadores que se utilizan con propósitos de diagnóstico y/o con fines terapéuticos se conocen comúnmente como *radiofármacos* [16]. El término se ha utilizado debido

a las propiedades similares entre estos marcadores y las drogas o productos farmacéuticos que se han desarrollado para tratar enfermedades.

Además, existe otro tipo de radionúclidos que se emplean en compuestos específicos o en forma metálica para el tratamiento de tumores. Si las radiaciones proceden de una fuente externa al organismo se llama *teleterapia*, si vienen de un radionúclido implantado en él, *braquiterapia* o *radioterapia interna*. En la Tabla 2 se relacionan los principales radionúclidos de uso médico, discriminados por el tipo de aplicación y radiación emitida.

Es importante resaltar que el radionúclido que más se utiliza a nivel mundial es el ^{99m}Tc , que abarca el 80% de las aplicaciones médicas, el cual se emplea en la obtención de imágenes diagnósticas. En segundo lugar está el ^{131}I con el 15%, aplicado en el tratamiento del hipertiroidismo y cáncer de tiroides, así como en estudios radiológicos [16].

En los últimos años se han realizado varias investigaciones con radionúclidos de tierras raras (denominados *radiolantánidos*) como ^{140}La , ^{153}Sm y ^{177}Lu , los cuales se utilizan principalmente para tratamientos oncológicos y obtención de imágenes diagnósticas [17-20]. En especial, el ^{177}Lu ($t_{1/2} = 6,7$ d) lo ha promocionado la comunidad médica internacional como un nuevo radionúclido para el tratamiento del cáncer, con la ventaja de emitir partículas β^- de energía media (498 keV) y fotones gamma de 113 y 208 keV sin afectar al tejido sano circundante. Este radionúclido permite obtener imágenes en vivo de su biodistribución en los pacientes, con lo cual se consigue una estimación más precisa de la dosis suministrada al órgano crítico [9].

Aplicaciones Ambientales

Los radionúclidos se pueden usar para entender la química y los procesos biológicos en el medio ambiente [7], como la evaluación del comportamiento de contaminantes (disueltos o suspendidos) en ríos, estuarios, playas costeras, acuíferos, vertederos de residuos, petróleo, gas o reservorios geotérmicos [21]. También para optimizar y evaluar la eficiencia de descontaminación aplicada en plantas de tratamiento

de aguas residuales y el comportamiento de los lodos que se generan durante dichos tratamientos.

El Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA), publicó en el año 2008 una recopilación de diferentes experimentos realizados con radiotrazadores de ^{46}Sc , ^{64}Cu , ^{82}Br , ^{99m}Tc , ^{131}I , ^{140}La y ^{198}Au , para evaluar el tiempo de residencia en diversas aplicaciones ambientales, especialmente para la optimización de sistemas de tratamiento de aguas residuales [22].

Aplicaciones Agrícolas

Con la aplicación de los radionúclidos como radiotrazadores en la agricultura es posible estudiar la velocidad y trayectoria de un elemento dado en una planta, de gran utilidad para investigar la nutrición vegetal, fertilidad de los suelos y relaciones suelo-agua-planta. Nutrientes vegetales como calcio, fósforo, hierro, potasio, cobre, sodio, azufre y cinc, tienen radionúclidos con vidas medias y modos de desintegración apropiadas para utilizarse como radiotrazadores. Estos elementos se pueden incorporar en los fertilizantes para aplicarlos en suelos, con el fin de determinar su efecto en la planta y las vías metabólicas de asimilación. La absorción del fertilizante marcado se puede medir y distinguir fácilmente de la absorción de otro tipo de compuestos presentes naturalmente en el suelo. Como ejemplo, se resalta la utilización de radionúclidos de sodio y potasio (^{24}Na y ^{42}K), en forma de sales tipo cloruros, para medir la cantidad de estos elementos esenciales absorbidos por la planta [13].

También es posible marcar fertilizantes fosfatados con ^{32}P que se usan en cultivos de papa, maíz, habas y otros cereales. De esta forma es posible diferenciar la cantidad de fósforo absorbido por las hojas, tallos, ramas y flores con independencia de la época, la forma de aplicar el fertilizante y las características del suelo [23, 24]. Igualmente, el ^{86}Rb se puede utilizar para cuantificar y evaluar la eficiencia de diferentes fertilizantes.

Tabla 2. Principales radionúclidos de uso médico, modificado de [16, 21]

| Aplicación | Radionúclidos | | Tipo de emisión radiactiva |
|----------------------|---|---|----------------------------|
| | Producidos en acelerador | Producidos en reactor nuclear | |
| Radiodiagnóstico | ⁸⁹ Sr, ⁹⁰ Y, ¹⁰³ Pd, ¹¹¹ In, ¹⁶⁶ Dy, ¹⁶⁶ Ho, ¹⁷⁵ Yb, ²⁰¹ Tl | ⁵¹ Cr, ⁶⁴ Cu, ^{99m} Tc, ¹³¹ I, ¹³³ Xe, ¹⁵³ Sm, ¹⁵³ Gd, ¹⁹² Ir | beta / gamma |
| | ¹¹ C, ¹³ N, ¹⁵ O, ¹⁸ F, ³⁰ P, ^{34m} Cl, ⁵⁷ Co, ⁶⁰ Cu, ⁶¹ Cu, ⁶⁶ Ga, ⁶⁷ Ga, ⁶⁸ Ge/ ⁶⁸ Ga, ⁶⁸ Ge, ⁷⁴ As, ⁷⁶ Br, ⁷⁷ Br, ^{81m} Kr, ⁸² Rb, ⁸⁶ Y, ⁸⁹ Zr, ^{94m} Tc, ⁹⁷ Ru, ¹²⁴ I | | positrones |
| | ¹¹¹ In, ¹²³ I | ¹²⁵ I, ^{195m} Pt | electrones Auger |
| Radioterapia interna | ⁶⁴ Cu, ⁶⁷ Cu, ¹⁰⁵ Rh, ¹¹¹ Ag, ^{117m} Sn, ¹⁴⁹ Pm, ¹⁸⁶ Re | ³² P, ⁴⁷ Sc, ⁶⁴ Cu, ⁸⁹ Sr, ⁹⁰ Y, ¹⁰⁹ Cd, ¹³¹ I, ¹⁵³ Sm, ¹⁶⁵ Dy, ¹⁶⁶ Ho, ¹⁶⁹ Er, ¹⁶⁹ Yb, ¹⁷⁰ Tm, ¹⁷⁵ Yb, ¹⁷⁷ Lu, ¹⁸⁶ Re, ¹⁸⁸ Re ¹⁹² Ir, ¹⁹⁸ Au, ¹⁹⁹ Au | beta / gamma |
| | ⁶⁴ Cu, ⁶⁶ Ga | | positrones |
| | ²¹¹ At, ²¹² Bi, ¹⁴⁹ Tb, ²²³ Ra, ²²⁴ Ra, ²²⁵ Ac, ²²⁷ Th, ²⁵⁵ Fm | ²¹³ Bi, | alfa |
| | ⁵¹ Cr, ⁶⁷ Ga, ⁷⁷ Br, ¹¹¹ In, ¹²³ I, ¹⁴⁰ Nd, ²⁰¹ Tl | ¹²⁵ I, ^{195m} Pt | electrones Auger |

Estudios de este tipo también se realizan con soluciones de cinc (⁶⁵Zn) o de hierro (⁵⁹Fe) para evaluar la movilidad de estos elementos en diferentes variedades de trigo [25] y tomate [26], respectivamente, así como magnesio (²⁸Mg) para el estudio de absorción en cultivos de arroz a diferentes condiciones de pH [27].

Otros ejemplos de aplicaciones agrícolas muestran el uso de radiotrazadores de ²⁴Na, ³²P, ⁴²K, ⁶⁵Zn y ⁸⁶Rb, para evidenciar que los árboles frutales absorben el cinc a través del follaje, mientras que las plantas de algodón lo hacen por medio de la semilla [28], así como para lograr mejores rendimientos en la producción de leche de vaca y huevos de gallina a partir de la información obtenida mediante el seguimiento de dichos radionúclidos en el metabolismo animal [29].

Ciencias de la Tierra y el Mar

Los radiotrazadores se utilizan en el estudio de la producción biológica en los ambientes acuáticos. Por ejemplo, el ³²Si se utiliza para estimar las tasas de captación de silicio por diatomeas, un grupo de algas acuáticas que se constituyen en los mayores contribuyentes a la fijación de carbono, que representan hasta un 75% de la producción marina primaria. Igualmente precipitan la sílice hidratada amorfa en sus paredes celulares, por lo que controlan el ciclo del silicio y contribuyen de manera significativa al flujo

de la sílice, el nitrógeno y el carbono biológicamente producido en la mayoría de las regiones oceánicas. La determinación precisa del crecimiento de las diatomeas es esencial para la comprensión del ciclo de nutrientes marinos a nivel global.

Otros radiotrazadores que se utilizan para mejorar la comprensión del ciclo del carbono en los océanos son el ⁶⁷Cu y el ⁵⁹Fe. Estos micronutrientes son esenciales para el crecimiento del fitoplancton, permitiendo el control de la productividad primaria en grandes regiones oceánicas. Dadas sus vidas medias, de 62 h y 44,6 d, respectivamente, es posible utilizarlos en estudios del océano profundo, sin tener que almacenar y transportar muestras hasta un laboratorio [7].

Recursos Hídricos

Pese a que el agua es esencial para la vida, en muchas partes del mundo es escasa y en otras, la cantidad disponible ha disminuido rápidamente en los últimos años, por ello el estudio del recurso hídrico resulta esencial para la supervivencia humana y la conservación medioambiental.

Entre las muchas técnicas de estudio en este campo, está la hidrología isotópica, la cual emplea tanto isótopos estables como radiactivos, para hacer seguimiento preciso a los recursos hídricos, subterráneos y superficiales. El uso de trazadores estables y radiactivos

ha ido en aumento considerable y hoy es un método esencial en estudios hidroquímicos [30]. Esta técnica es una herramienta analítica importante para la gestión y conservación de los suministros de agua existentes y para la identificación de nuevas fuentes.

Con el uso de radiotrazadores en aguas superficiales se obtiene información acerca de posibles fugas en represas y canales de riego, la dinámica de lagos y embalses, caudales, la velocidad de descarga de los ríos, tasas de sedimentación y transporte de sedimentos en cuencas hidrográficas [6, 31]. Para aguas superficiales y subterráneas, el ^{24}Na , ^{82}Br , ^{131}I y $^{51}\text{Cr-EDTA}$, son los más utilizados para seguir su movimiento y cuantificar el volumen de sus reservas [8, 13].

Aplicaciones Industriales

Radionúclidos como el ^{24}Na , ^{41}Ar , ^{46}Sc , ^{56}Mn , ^{82}Br , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{124}Sb , ^{125}I , ^{131}I , ^{133}Xe , ^{192}Ir y ^{198}Au , tienen una gran variedad de aplicaciones en la industria dadas sus ventajas en cuanto a fácil identificación y seguimiento en diferentes procesos [5, 32, 33].

En la industria petrolera es muy común la utilización de compuestos marcados con radionúclidos miscibles en petróleo, como el $\text{NH}_4^{82}\text{Br}$ [34] y complejos orgánicos con ^{198}Au [35], para detectar fugas en las tuberías, determinar el tamaño de un pozo o para la recuperación secundaria de petróleo. También se utilizan radiotrazadores solubles en agua, como $^{24}\text{NaCl}$, $^{51}\text{Cr-EDTA}$, Na^{131}I y $\text{H}^{198}\text{AuCl}_4$, los cuales se inyectan a fluidos de fracturación hidráulica para determinar el perfil de inyección y la ubicación de las fracturas creadas [36, 37].

En la industria manufacturera, se utiliza la técnica del trazador para la realización de ensayos de homogeneidad de mezclas. Un ejemplo es la producción de chocolate, donde una pequeña cantidad de radionúclidos de corta vida como ^{24}Na o ^{56}Mn , se añaden a los ingredientes principales, con el fin de estudiar la eficiencia de la mezcla, el efecto de la geometría de la cámara, el tiempo de residencia en los reactores químicos, las velocidades de flujo, absorción, etc. [13]. Otros usos frecuentes para evaluar la homogeneidad de mezcla de diferentes materiales, son la adición de $^{24}\text{NaHCO}_3$ a la masa fundida para el control de calidad en la producción de vidrio, o de compuestos orgánicos marcados con ^{95}Zr ($t_{1/2} = 64,02$ d) para seguir la homogeneización de productos derivados del petróleo [8].

En los últimos años se han investigado nuevas aplicaciones industriales, como por ejemplo la preparación de nanopartículas especiales de $^{198}\text{Au-SiO}_2$, para su uso como radiotrazadores en petroquímica y procesos industriales de refinación. Dado que en este tipo de aplicaciones las temperaturas internas son extremadamente altas, los compuestos orgánicos radiomarcados que se utilizan convencionalmente se descomponen, perdiendo su integridad como radiotrazadores, siendo este tipo de nanopartículas una alternativa para solucionar este problema [38].

Aplicaciones en Investigación Científica

Los radionúclidos de fósforo (^{32}P), azufre (^{35}S), calcio (^{45}Ca y ^{47}Ca), escandio (^{46}Sc), hierro (^{55}Fe y ^{59}Fe), cobre (^{64}Cu), cinc (^{65}Zn) y yodo (^{125}I y ^{131}I) se utilizan ampliamente para rastrear la ruta de reacciones bioquímicas [39], así como para realizar el seguimiento de la distribución de una sustancia o su flujo en un sistema natural tal como una célula o un tejido [40]. Otras aplicaciones en el campo de la investigación están relacionadas con la determinación de la eficiencia de reacciones químicas específicas desarrolladas en laboratorios de síntesis química [21].

3. PANORAMA MUNDIAL Y REGIONAL

3.1. Producción Mundial

Actualmente están en operación 243 reactores nucleares en el mundo [41], sin embargo, según Mushtaq [12] solamente 73 reactores se utilizan regularmente para producir radionúclidos.

Dado que el ^{99}Mo ($t_{1/2} = 66$ h) es el radionúclido más utilizado a nivel mundial, con una producción total de aproximadamente 400 TBq/semana (≈ 12.000 Ci/semana), su producción sirve como referente para definir los países que mayor volumen de radionúclidos generan [42]. Bajo esta premisa, se establece que alrededor del 95% de la producción mundial de ^{99}Mo se realiza en solo siete reactores, los cuales se mencionan a continuación junto con su aporte correspondiente [43, 44]:



- NRU: *National Research Universal* (135 MWt), situado en Canadá y puesto en servicio en 1957, suministra el 40% a nivel mundial.
- HFR: *High Flux Reactor* (45 MWt), situado en Holanda y puesto en servicio en 1961, suministra el 30% de la producción mundial.
- SAFARI-1: *South African Fundamental Atomic Research Installation* (20 MWt), en Suráfrica desde 1965, con una participación del 10%.
- BR-2: *Nuclear Research Centre* (100 MWt), en Bélgica desde 1961, con una participación del 9%.
- OPAL: *Open Pool Australian Light Water Reactor* (20 MWt), en Australia desde 2007, con una participación inferior al 3%.
- LVR-15 *REZ Reactor* (10 MWt), en República Checa desde 1957, con una participación inferior al 3%.
- *María Research Reactor* (30 MWt), en Polonia desde 1974, con una participación inferior al 2%.

Además de estos, el reactor de investigación OSIRIS en Francia produjo ^{99}Mo para uso médico desde 1966 hasta su apagado permanente en diciembre de 2015 [43]. El restante 5% de la producción mundial se lleva a cabo principalmente para uso regional en reactores nucleares situados en Rusia, Indonesia, Argentina, Chile, Rumania, Pakistán y Egipto. A su vez, Japón, China y Corea del Sur, desarrollan actualmente ambiciosos proyectos para lograr una mayor participación en la producción mundial de este importante radionúclido.

Como ya se dijo anteriormente, la mayoría de radionúclidos producidos se utilizan en aplicaciones médicas (diagnóstico y terapia), cuyo mercado mundial reportado en el 2014 ascendió a la cifra de US\$12 billones y se espera un incremento de hasta US\$68 billones para el 2030 [42].

3.2. Producción en Latinoamérica

Respecto a la producción de radionúclidos en Latinoamérica, actualmente existen siete reactores nucleares ubicados en México, Argentina, Perú, Chile y Brasil (Tabla 3), que cubren un amplio espectro de aplicaciones, principalmente médicas e industriales [45]. Además, otros dos reactores multipropósito

iniciaron en el 2017 su etapa de planeación, el RA-10 de Argentina y el RMB de Brasil, ambos de 30 MWt tipo piscina [41].

No obstante la producción de radionúclidos a gran escala en los reactores mencionados no cubre la totalidad de la demanda local, y por tanto un porcentaje significativo se importa [45], principalmente el ^{99}Mo (de fisión) y el ^{131}I de Canadá, debido a que actualmente tan solo cinco de los veintiún países de Latinoamérica cuentan con reactores y facilidades adecuadas para ello.

A continuación se describen brevemente las actividades relacionadas con la producción de radionúclidos y sus aplicaciones en cada uno de estos países:

En Argentina, según la recopilación histórica realizada por De Dicco [46], para satisfacer la demanda local se inició en 1970 la producción de radionúclidos en el Reactor RA-3 (10 MW de potencia térmica y flujo neutrónico de $10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ubicado en el Centro Atómico Ezeiza de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). Además en esta facilidad funciona desde 1973 la Planta de Producción de Radioisótopos, que cuenta con cinco celdas para este fin, y desde 1985 la Planta de Producción de Productos de Fisión (con ocho celdas) en la cual se producen industrialmente ^{131}I y ^{99}Mo , a partir de la irradiación durante cuatro días, de una aleación aluminio/uranio en placas, con uranio enriquecido inicialmente al 90% en su isótopo ^{235}U y desde el 2002 a menos del 20%, con la posterior separación radioquímica de los productos de fisión relacionados anteriormente; además de otros de interés comercial como el ^{90}Sr y el ^{137}Cs . De esta manera, se satisface la demanda de estos radionúclidos en Argentina y se genera un saldo exportable capaz de cubrir las necesidades de otros países suramericanos que no cuentan con producción propia [47, 48]. Vale la pena destacar que Argentina es el único país de la región que produce actualmente ^{99}Mo de fisión. También exporta otros radionúclidos como ^{32}P , ^{51}Cr , ^{60}Co , ^{153}Sm , ^{192}Ir , así como la obtención esporádica de ^{24}Na , ^{35}S , ^{177}Lu y ^{125}I , por solicitudes especiales. La cantidad de ^{99}Mo , que en el 2015 alcanzó los 10.228 Ci, posiciona al reactor RA-3 como el principal productor de radionúclidos en Latinoamérica [49].

Por otra parte, el reactor experimental multipropósito RA-6 (1 MWt de potencia y flujo neutrónico de $10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) ubicado en el Centro Atómico Bariloche, se utiliza exclusivamente para actividades

de formación de recursos humanos en diferentes campos de la ciencia y la tecnología nuclear, mediante la realización de experimentos con neutrones que incluyen la irradiación, activación de materiales y producción a escala de laboratorio de algunos radionúclidos [50].

En México, el único reactor nuclear disponible para este tipo de aplicaciones se encuentra en el Centro Nuclear "Dr. Nabor Carrillo Flores" del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ), el TRIGA Mark III (1 MWt de potencia y flujo neutrónico de 10^{13} n cm⁻² s⁻¹) [51], que produce grandes cantidades de los siguientes radionúclidos: ²⁴Na, ³²P, ⁸²Br, ¹³¹I, ¹⁵³Sm y ²⁰³Hg. En los últimos años se ha profundizado en la investigación de elementos radiolantánidos como ¹⁴⁹Pm, ¹⁶¹Tb, ¹⁶⁵Dy, ¹⁶⁶Ho y ¹⁷⁷Lu [52]. Hay que resaltar, que el ¹⁵³Sm se aprovecha para la producción y comercialización a nivel local y regional de dos radiofármacos, el ¹⁵³Sm-EDTMP que se utiliza como paliativo del dolor generado por el cáncer óseo y el ¹⁵³Sm-MH que se emplea para el tratamiento de la artritis reumatoide [53].

Además de las aplicaciones médicas, los radionúclidos se usan en investigación, agricultura e industria, como el caso del estudio realizado por Vizuet y col. [54], que emplearon ²⁴Na₂CO₃ (100 mCi) como radiotrazador para la detección de fugas en varios ductos colectores de agua de una planta embotelladora ubicada en Lerma (Estado de México).

En Perú cuentan con el reactor nuclear de experimentación RP-10 (10 MWt y flujo neutrónico de 10^{14} n cm⁻² s⁻¹) ubicado en el Centro Nuclear RACSO del Instituto Peruano de Energía Nuclear (IPEN) y la Planta de Producción de Radioisótopos, en donde se producen a escala industrial los radionúclidos ¹³¹I, ^{99m}Tc y ¹⁵³Sm, que se emplean en la comercialización de radiofármacos para uso en diagnóstico médico y tratamientos oncológicos [55]. Algunos trabajos de aplicación de ¹³¹I y ^{99m}Tc en medicina y biología, fueron publicados por el IPEN en su Informe Científico y Tecnológico del 2010 [56].

En Brasil, la producción de radionúclidos inicia en 1963 en el reactor nuclear IEA-R1 (5 MW de potencia térmica y flujo neutrónico de 10^{13} n cm⁻² s⁻¹) ubicado en Sao Paulo. Los principales radionúclidos que se producen son ²⁴Na, ³²P, ³⁵S, ⁵¹Cr, ⁶⁰Co, ⁸²Br, ¹³¹I, ¹⁵³Sm, ¹⁹²Ir y ²⁰³Hg, la mayoría para uso médico [21, 57]; siendo el ¹³¹I el de mayor producción con una cantidad de aproximadamente 25 Ci/semana [58]. Otras aplicaciones, incluyen el uso de radiotrazadores en la industria, la agricultura y la investigación.

En Chile, la Comisión Chilena de Energía Nuclear (CCHEN) en sus instalaciones del Centro de Estudios Nucleares La Reina, disponen del reactor nuclear RECH-1 (5 MW y flujo neutrónico de 10^{13} n cm⁻² s⁻¹). La producción de radionúclidos se orienta hacia aplicaciones en medicina, industria, agricultura e investigación científica, siendo los siguientes los de mayor demanda: ²⁴Na, ³²P, ⁵¹Cr, ⁸²Br, ⁸⁶Rb, ^{99m}Tc, ¹³¹I, ¹⁵³Sm y ¹⁹²Ir [21].

Además, investigaciones realizadas por Chandía [59] y Sierralta [60] demostraron la posibilidad de producir ¹⁸F en el RECH-1 a partir de la irradiación de blancos de Li₂CO₃ enriquecidos, cuyas reacciones nucleares son ⁶Li(n,α)³H y ¹⁶O(³H,n)¹⁸F; dicho radionúclido se emplea para la marcación del radiofármaco [¹⁸F]-FDG, utilizado para estudiar el metabolismo celular a nivel cerebral, miocárdico y tumoral. Por otra parte, en el trabajo de Pinto y Godoy [61] irradiaron óxidos de holmio (Ho₂O₃, ¹⁶⁵Ho al 100%) y lutecio (Lu₂O₃, ¹⁷⁶Lu al 2,6%) en el reactor para producir ¹⁶⁶Ho y ¹⁷⁷Lu de uso médico.

Los reactores de Argentina, Brasil y Chile reportan casi el 100% del tiempo de operación dedicado a la producción de radionúclidos, el 66% en México y el 48% en Perú. El número efectivo de horas de irradiación no exceden en ningún caso las 100 h semanales; Argentina en un extremo con 90 h y Perú con 12 h semanales en el otro extremo.



Tabla 3. Reactores para producción de radionúclidos en Latinoamérica [41]

| País | Reactor | Lugar | Tipo | Potencia (kW) | Primera fecha criticidad |
|-----------|----------------|----------------|------------------------|---------------|--------------------------|
| Argentina | RA-3 | Buenos Aires | Piscina/ Investigación | 10.000 | 17/05/1967 |
| Argentina | RA-6 | Bariloche | Piscina/ Investigación | 1.000 | 23/09/1982 |
| Brasil | IEA-R1 | Sao Paulo | Piscina/ Investigación | 5.000 | 16/09/1957 |
| Brasil | IPR-R1 | Belo Horizonte | TRIGA Mark I | 100 | 06/11/1960 |
| Chile | RECH-1 | Santiago | Piscina/ Investigación | 5.000 | 13/10/1974 |
| México | TRIGA Mark III | Ocoyoacac | TRIGA Mark III | 1.000 | 08/11/1968 |
| Perú | RP-10 | Huarangal | Piscina/ Investigación | 10.000 | 30/11/1988 |

Finalmente, a partir de la recopilación de información realizada por el OIEA en el marco del Proyecto de Cooperación Técnica RLA/0/037 en el año 2013, se concluye que “los radioisótopos producidos en los reactores nucleares de Latinoamérica con mayor volumen de demanda anual en la región son, en orden decreciente: ^{99}Mo (77%), ^{131}I (13%), ^{192}Ir (6%), ^{177}Lu (2%), ^{153}Sm (1%), ^{90}Y (1%) ^{125}I (<1%) y ^{32}P (<1%)”. En tanto que, “la producción regional solamente cubre el 52% de la demanda de ^{99}Mo , el 37% del ^{131}I , el 96% del ^{153}Sm y, como máximo, el 23% del ^{192}Ir y el 42% del ^{90}Y ” [45].

4. SITUACIÓN EN COLOMBIA

Desde 1960 el país se encuentra vinculado al OIEA² y en 1965 inició sus actividades nucleares con la puesta a crítico del Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1. A partir de 1970 se inició la producción de algunos radionúclidos de gran aplicación en diferentes campos como la medicina, la investigación, la hidrología y la industria, entre ellos ^{24}Na , ^{82}Br y ^{198}Au como los más importantes, pero con el cierre del INEA en 1997 y el apagado del Reactor IAN-R1 en 1998 [62], hasta la fecha han dejado de producirse, con el consecuente retraso tecnológico y la reducción casi en su totalidad del uso de radiotrazadores en nuestro país. Se describe a continuación ese recorrido histórico:

4.1. De 1965 a 1993

El 20 de enero de 1965, el Instituto de Asuntos Nucleares (IAN) llevó a crítico el reactor nuclear de investigación IAN-R1 a una potencia térmica de 10 kWt [63], reactor que fue donado a Colombia bajo el programa “Átomos para la Paz” del presidente Dwight Eisenhower de Estados Unidos. El reactor lo diseñó y construyó la compañía *Lockheed Nuclear Products*, cuyo combustible del núcleo original era del tipo MTR (*Material Testing Reactor*) de alto enriquecimiento (HEU, al 93% en ^{235}U). Este combustible estaba dispuesto en una matriz de 4 x 4 elementos, rodeada a su vez por 20 elementos reflectores de grafito, así como por otros 6 elementos de grafito con espacios circulares para la irradiación de muestras. El IAN-R1 operó a 10 kWt hasta el 12 de junio de 1967, fecha en la cual comenzó a operarse a 20 kWt [64]. En 1980 se aumentó la potencia para operarlo a 30 kWt [65].

A partir de 1987 con la cooperación del OIEA se llevó a cabo un programa gradual de modernización del reactor, el cual se inició con la instalación de nuevos sistemas de monitoreo de la radiación, cambio del sistema de control y estudios detallados para aumentar su potencia hasta un máximo de 1 MWt [66, 67]. Luego, en 1992 el IAN se reestructuró y cambió su nombre a Instituto de Ciencias Nucleares y Energías Alternativas (INEA) [68].

En cuanto a la producción de radionúclidos en Colombia, el primer acercamiento al tema lo llevó a cabo en 1961 la radioquímica argentina Sonia Nassif, quien en representación del OIEA realizó varias charlas en Bogotá enfocadas a divulgar las aplicaciones de

2 Ley 16 del 25 de septiembre de 1960 “por la cual se aprueba el Estatuto del Organismo Internacional de Energía Atómica”, suscrito por Colombia el 26 de octubre de 1956 en New York.

los radionúclidos como trazadores. Una vez entró en operación el Reactor IAN-R1 los primeros trabajos con los que se empezó a estudiar la factibilidad de producción de algunos de ellos fueron los realizados por Páez y Nassif [69], quienes hicieron una revisión de los principales métodos de la época y su adaptación a las condiciones operacionales del IAN-R1, así como la recopilación realizada por Toro y Múnera [70] sobre los diferentes métodos para producirlos en reactores nucleares y tablas con sus correspondientes actividades de saturación ($\mu\text{Ci/g}$), trabajo en el que se estableció como valor de referencia para este reactor, un flujo neutrónico promedio de $10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ para una potencia de operación de 20 kW, el cual concuerda con el valor mencionado por Toro en su informe de 1972 [64].

Dado el bajo flujo neutrónico de este reactor, no fue posible que el IAN ejecutara un programa intensivo de producción de radionúclidos, como lo hicieron otros países latinoamericanos desde finales de la década de 1960 e inicios de la de 1970, debido a que resultaba inviable la producción de la mayoría de radionúclidos de uso médico frecuentemente utilizados en la época. Por ejemplo, para producir tan solo 20 mCi de ^{131}I se necesitaba irradiar 100 g de dióxido de telurio (TeO_2) durante 90 horas continuas, lo que resultaba ser sumamente peligroso e impráctico [64].

A pesar de las limitaciones, el IAN realizó continuamente desde 1970 la producción de algunos radionúclidos de vida media corta, como el ^{24}Na , ^{82}Br y ^{198}Au , los cuales se utilizaban en la industria, hidrología e ingeniería en general, además pequeñas cantidades de ^{32}P en experimentos agrícolas de invernadero [62, 71]. Adicionalmente, se hicieron pruebas en el IAN-R1 para producir algunos radionúclidos de uso médico, como por ejemplo la irradiación de óxido de molibdeno natural (MoO_3) para la obtención de pequeñas cantidades de ^{99}Mo empleadas en investigaciones para evaluar la factibilidad de generar $^{99\text{m}}\text{Tc}$. También se irradiaron semillas de oro para implantación hipofisiaria de ^{198}Au , que se llevó a cabo en el Instituto Nacional de Cancerología de Bogotá [64, 72].

Es importante resaltar, que desde 1984, el IAN creó el Fondo Especial de Radioisótopos, mediante el cual se importaba ^{131}I (cerca de 36 Ci/año) y generadores de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ (580 Ci/año) para uso médico que se distribuían internamente a unos 150 usuarios en todo el país (en 1987: 63% en Bogotá, 13% en Medellín y

9% Cali). El ^{131}I se dosificaba en la celda caliente del Instituto y se comercializaba en presentaciones de unidosis, mientras que el $^{99\text{m}}\text{Tc}$ se distribuía como multidosis en estuches para marcación (kits de cinco viales). Adicionalmente, el IAN realizó la importación de fuentes radiactivas selladas, especialmente de ^{192}Ir , para utilizarlas en ensayos no destructivos en diversas aplicaciones industriales [73, 74].

A continuación se presentan algunos estudios realizados en Colombia a partir de 1970 y hasta 1992, sobre la utilización de radionúclidos producidos en el IAN-R1, como radiotrazadores en diferentes campos del conocimiento:

Hidrología

La aplicación de radiotrazadores en hidrología se inició en 1972, siendo el ^{82}Br el de mayor uso. Su producción llegó a ser tan alta que en 1987 alcanzó una actividad total de 12.200 mCi [73], la más alta para un radionúclido producido en el IAN-R1. Los estudios hidrológicos que se llevaron a cabo en esta época, se realizaron en ríos, represas, mares y aguas subterráneas, con el propósito de evaluar parámetros hidráulicos como fugas, filtraciones, tiempos de tránsito, tiempos de residencia y aforos, parámetros hidrogeológicos como porosidad, permeabilidad y transmisibilidad [75].

Cabe destacar el estudio realizado por Plata y col. [76], en el cual el IAN y la empresa de servicios públicos EMPOISLAS, ante el grave problema de abastecimiento de agua potable en la isla de San Andrés, emprendieron el estudio del comportamiento del acuífero kárstico ubicado en la isla, para lo cual emplearon ^{82}Br con el fin de determinar parámetros hidrogeológicos, sitios de recarga, tiempos de residencia, estudios de la intrusión salina, porosidad y transmisibilidad de dicho acuífero.

En otros estudios, realizados por Sánchez y col., se utilizó el radiotrazador $\text{NH}_4^{82}\text{Br}$ para localizar posibles fugas en los embalses de Tominé y Chingaza (departamento de Cundinamarca) [77, 78]. Este radiotrazador también se usó para evaluar tiempos de tránsito y coeficientes de dispersión de algunos ríos importantes como el Suárez y el Fonce en el departamento de Santander, el río Cabrera en Huila y Tolima [79], el río Bogotá y sus afluentes en Cundinamarca y el río Magdalena en su paso por los departamentos del Tolima y Cundinamarca [73, 75].

Agricultura

El ^{32}P se utilizó para la marcación de fertilizantes fosforados en el estudio de diversos cultivos de interés nacional. Para ello, el área de aplicaciones en agricultura del IAN contaba con un laboratorio de radionúclidos en donde se preparaban soluciones de ^{32}P , ^{59}Fe y ^{65}Zn , cuya radiación β^- emitida se medía en un contador de centelleo líquido [75].

Se resaltan los estudios realizados en cultivos de papa (*Solanum tuberosum* L) situados en Chocontá (Cundinamarca), para evaluar la influencia de la época de aplicación del ^{32}P -Superfosfato triple, en la eficiencia de fertilización y productividad de la papa [80], así como los realizados con la variedad *Pardo Pastusa* en un suelo volcánico ubicado en la Granja de Experimentación e Investigaciones Agrícolas de Obonuco en Pasto (Nariño), como parte de un trabajo conjunto con el Instituto Colombiano Agropecuario (ICA), investigación en la que se compararon diferentes dosis y formas de aplicación de fósforo al utilizar superfosfato triple marcado con ^{32}P , para luego evaluar la eficiencia de fertilizantes fosforados y su influencia en el desarrollo radicular [81].

Igualmente, se realizaron experimentos en cultivos de arroz ubicados en el Centro Regional de Investigaciones Agrícolas del ICA en El Espinal (Tolima), para evaluar la actividad radicular de la variedad de arroz (*Oriza Sativa*, L) por la absorción de ^{32}P y ^{15}N a diferentes distancias y profundidades de la planta (5, 10 y 15 cm) [81], así como en cultivos de trigo la variedad *Bonza 63* en el Centro Regional de Investigación San Jorge del ICA en Soacha (Cundinamarca), en donde se determinó la eficiencia de varias fuentes naturales de fósforo usadas como fertilizantes por los agricultores [73].

Industria

Aunque este tipo de aplicaciones estaban limitadas por la baja *actividad específica* alcanzada al irradiar los blancos en el reactor IAN-R1, en 1984 se produjeron 860 mCi de oro radiactivo (^{198}Au) para su utilización como radiotrazador en la industria petrolera [81]; en 1987 dicha producción ascendió a 3.315 mCi [72]. El ^{198}Au producido se utilizaba para marcar compuestos químicos solubles en agua y en petróleo, los cuales en esa época tuvieron una alta demanda por parte de grandes compañías de exploración petrolera como *GO International*, *Wellex Corp.*, *Halliburton*, *Western Atlas International* y *Core Laboratories* [82]. Dicho

radionúclido empezó a producirse para aplicaciones en la industria petrolera a partir de 1970 [83] y se produjo continuamente hasta 1992 [62], siendo la investigación desarrollada por Martínez y Rodríguez [84], una de las últimas realizadas en este campo. En ella, se sintetizó un complejo marcado con ^{198}Au miscible en hidrocarburos para su utilización en la recuperación primaria y secundaria de petróleo.

También se utilizó el ^{82}Br como radiotrazador en trabajos conjuntos del IAN con la Empresa Colombiana de Petróleos (Ecopetrol) en 1985, con el propósito de detectar fugas en un depósito de agua contra incendio en la planta de producción de Facatativá (Cundinamarca) [79].

4.2 . De 1994 a 1998

En 1994, el OIEA y el INEA suscribieron un contrato tripartito con *General Atomics* para realizar una conversión del combustible nuclear del IAN-R1 de HEU a LEU [4], que incluía la fabricación de los conjuntos de combustible tipo TRIGA (*Training, Research, Isotopes, General Atomics*) con LEU (19,7%, de bajo enriquecimiento en ^{235}U) para reemplazar los conjuntos originales de placas de combustible tipo MTR HEU, capacitación de los operadores, aumento de la potencia del reactor a 100 kWt, modernización de los sistemas de control y sistemas auxiliares.

Finalmente el nuevo núcleo se entregó oficialmente en 1997, con la capacidad de operar a una potencia nominal de 100 kWt. Este núcleo está conformado por 8 grupos de combustible TRIGA estándar, con 3 barras de combustible cada uno y un tubo guía para las barras de control; su reflector radial consta de 20 elementos de grafito, 6 de los cuales se utilizan como posiciones para la irradiación de muestras [85]. Esta nueva configuración fue puesta a crítico con éxito el 29 de agosto de 1997 [68] y operado con una licencia parcial de funcionamiento hasta el 31 de marzo de 1998, fecha en la cual fue puesto en condición de parada prolongada por término indefinido [86], situación debida a la liquidación del INEA en 1997 y su cierre definitivo en 1998.

4.3. De 1999 a 2016

Desde el cierre de dicho Instituto la utilización de radiotrazadores en la industria, hidrología e investigaciones en general se redujo casi en su

totalidad, siendo el ^{131}I el único que se sigue empleando esporádicamente en aplicaciones industriales. Esto se debe principalmente a que gracias a su vida media relativamente prolongada ($t_{1/2} = 8,04$ d), es posible utilizarlo sin pérdidas considerables de actividad, luego del tiempo que toma su transporte aéreo desde el país de producción, los trámites de importación y el transporte hasta su sitio de aplicación.

En 1999 el Gobierno nacional le asignó al Instituto Colombiano de Geología y Minería (Ingeominas), la responsabilidad de operar el Reactor Nuclear IAN-R1 y sus facilidades, quien en su momento se encargó de su mantenimiento y el aseguramiento de la condición de parada prolongada. En el 2005, el Gobierno decidió reactivar el reactor bajo la supervisión técnica del OIEA, alcanzando criticidad el 21 de octubre de ese año, con una operación inicial a 100 W durante una hora y en los días posteriores incrementándose su potencia hasta 30 kW [87]. Desde entonces, el IAN-R1 ha tenido licencias de operación y autorizaciones especiales otorgadas por la Autoridad Reguladora Nuclear del Ministerio de Minas y Energía, enfocándose principalmente en actividades de entrenamiento de personal, caracterización de flujo neutrónico e irradiación de muestras para análisis por activación neutrónica y datación por huellas de fisión.

Pese a que desde 1992 han dejado de producirse radiotrazadores en el IAN-R1, se han realizado importantes esfuerzos por reactivar la investigación en este campo, como los trabajos conjuntos realizados entre Ingeominas y la Universidad Distrital Francisco José de Caldas del 2006 al 2008, periodo en que se lograron sintetizar tres radiotrazadores de ^{198}Au . Estos se produjeron con una fuente isotópica de neutrones de $^{241}\text{Am-Be}$ (flujo neutrónico de 10^6 n cm^{-2} s^{-1}); en estos trabajos se sintetizaron el sulfato de sodio, $\text{Na}_3^{198}\text{Au}(\text{SO}_3)_2$, soluble en agua para su utilización en aplicaciones hidrológicas [88], así como los complejos orgánicos marcados con ^{198}Au , cloruro áurico de triocil y tridodecilamina, los cuales son miscibles en petróleo y con aplicaciones en el perfilaje de pozos y la recuperación secundaria de petróleo [35]. Estos trabajos fueron proyectados como una alternativa para el entrenamiento del personal en el campo de la producción de radionúclidos y la síntesis radioquímica.

En la actualidad, el Servicio Geológico Colombiano (anteriormente Ingeominas), cuenta con infraestructura y personal técnico especializado necesario para

reactivar la investigación básica en este tema. Se dispone de los blancos para la producción de ^{24}Na , ^{64}Cu , ^{82}Br , ^{140}La y ^{198}Au (de acuerdo con la información de la Tabla 1), dos sistemas neumáticos para la irradiación de blancos tanto en la periferia como en el interior del núcleo del Reactor IAN-R1, una celda caliente con telemanipuladores para el manejo de material radiactivo, una cabina de extracción con blindaje de plomo, blindajes móviles, sistemas de espectrometría gamma de alta y baja resolución, GeHp y NaI(Tl), así como equipos básicos para el monitoreo de niveles de radiación y contaminación superficial. Si bien es posible reactivar esta línea de investigación con los recursos disponibles actualmente, para lograr una producción de radionúclidos a gran escala, se requiere una inversión considerable para la construcción de una planta piloto para síntesis de radiotrazadores que cumpla con las condiciones mínimas establecidas por el OIEA [89, 90], así como la ampliación del tiempo de operación diaria del reactor con el fin de alcanzar las actividades específicas necesarias para la mayoría de aplicaciones relacionadas en el presente trabajo.

4.4. Discusión final

En reactores nucleares de bajo flujo neutrónico ($< 10^{12}$ n cm^{-2} s^{-1}) como lo es el IAN-R1, la fluencia disponible también suele ser baja debido a que el reactor solamente se opera durante un turno (9 h/día, como máximo). Debido a esto, el tiempo de desplazamiento hacia el sitio de aplicación del radiotrazador, limita la producción de radionúclidos de vida media corta, incluso si se logra la actividad de saturación, ya que debido a su rápida desintegración se deben aplicar rápidamente. Según el OIEA [9, 10], para reactores con este tipo de limitaciones, los radionúclidos generalmente se producen a petición de usuarios locales, como ^{24}Na , ^{32}P , ^{41}Ar , ^{56}Mn , ^{64}Cu , ^{82}Br y ^{198}Au ; aunque no se debe descartar la realización de investigación básica, mediante irradiación de blancos enriquecidos de ^{99}Mo , así como la producción de bajas actividades de otros radionúclidos de vida media más larga para usarlos con fines de investigación, como por ejemplo ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{192}Ir , ^{177}Lu , ^{99}Mo , ^{186}Re , ^{35}S , ^{153}Sm , ^{90}Y y ^{169}Yb .

Lo más importante, es necesaria la vinculación del talento humano multiprofesional estable, con conocimientos profundos y experiencia en física



nuclear, radioquímica, radiofarmacia, radiogeología, protección radiológica y últimamente en radiobiología, pues la formación de expertos en el campo nuclear es un proceso que requiere un tiempo considerable, para que ese grupo interdisciplinario, amante de la investigación y sus aplicaciones, se encargue de hacer realidad el propósito de reactivar la producción de radionúclidos en el reactor colombiano y fomentar el uso de los radiotrazadores en los diferentes campos del conocimiento.

5. CONCLUSIONES

Los radionúclidos se utilizan ampliamente a nivel mundial en diversas aplicaciones, siendo la medicina el campo que demanda la mayor parte de la producción, especialmente de ^{99}Mo y de ^{131}I .

En Latinoamérica solamente cinco países cuentan actualmente con las facilidades necesarias para la producción de radionúclidos a gran escala; siendo el reactor nuclear RA-3 de Argentina el principal productor en la región.

Con base en los argumentos expuestos en esta revisión sobre la producción de radionúclidos en el Reactor IAN-R1 en la época del IAN y del INEA, y dadas las nuevas condiciones de potencia y facilidades de irradiación de blancos dentro del núcleo, es posible retomar dicha producción e intentar mediante investigación, la posibilidad de obtener nuevos radionúclidos que permitan ampliar las posibilidades de aplicación en diferentes campos del conocimiento, teniendo en cuenta en todo momento que los reactores tipo TRIGA, debido a su poder limitado, solo pueden producir radionúclidos con una vida media corta de algunas horas y máximo de unos pocos días.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al grupo del Reactor Nuclear IAN-R1 por permitir el acceso a documentos históricos de la instalación. Igualmente, al personal de la Biblioteca Central del Servicio Geológico Colombiano y del Archivo General del Ministerio de Minas y Energía, por la valiosa información suministrada.

REFERENCIAS

- [1] IAEA, Nuclear Technology for a Sustainable Future, Vienna: IAEA, 2012.
- [2] I. Cohen y J. Furnari, “Las Tendencias Modernas de la Radioquímica y sus Aplicaciones,” *Revista Química Viva*, vol. 11, n° 2, 2012. Disponible: <http://www.quimicaviva.qb.fcen.uba.ar/v11n2/cohen.html> [Último acceso: 15 marzo 2017].
- [3] V.M. Pabón, Radioquímica Básica, Bogotá, Universidad Distrital Francisco José de Caldas (en edición), 2017.
- [4] H. Múnera, Tecnología nuclear no médica en Colombia. Pasado, presente y futuro, Bogotá: Tecnicontrol S.A., 2011.
- [5] W. Loveland, D. Morrissey y G. Seaborg, Modern Nuclear Chemistry, New Jersey: John Wiley & Sons, 2005.
- [6] IAEA, Use of radiotracers to study surface water processes, IAEA-TECDOC-1760, 2015, p. 4-64.
- [7] T. Ruth, “The uses of radiotracers in the life sciences,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 72, n° 1, 2009.
- [8] G. Choppin, J-O Liljenzin and J. Rydberg, Radiochemistry and Nuclear Chemistry, Amsterdam: Academic Press, Fourth edition, 2013, p. 513-590.
- [9] IAEA, Applications of Research Reactors, Nuclear Energy Series No. NP-T-5.3, 2014, p. 28-37.
- [10] IAEA, The applications of research reactors, IAEA-TECDOC-1234, 2001, p. 17-19.
- [11] V. Raina et al., “Multipurpose research reactor,” *Nuclear Engineering and Design*, 236, p. 770-783, 2006.
- [12] A. Mushtaq, “Producing radioisotopes in power reactors,” *J Radioanal Nucl Chem*, 292, p. 793-802, 2012.
- [13] S. Sukadev y S. Sonali, “Production and Applications of Radioisotopes,” *Physics Education*, p. 5-11, 2006.
- [14] INDC - International Nuclear Data Committee, Proceedings of the IAEA Consultants’ Meeting on data requirements for Medical Radioisotope Production, IAEA, 1988, p. 37.

- [15] R. Dahl, T. Chaly y R. Maticchieri, "Production of radioisotopes at North Shore University Hospital," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 99, p. 817-820, 1995.
- [16] K. Matthews et al., The Workshop on Signatures of Medical and Industrial Isotope Production - WOSMIP, Strassoldo, Italy, 1-3 July 2009. *Journal of Environmental Radioactivity*, 110, p. 1-6, 2012.
- [17] G. Ehrhardt, A. Ketring y L. Ayres, "Reactor-produced radionuclides at the University of Missouri Research Reactor," *Appl. Radiat. Isot.*, 49, p. 295-297, 1998.
- [18] F. Knapp et al., "Production of therapeutic radioisotopes in the ORNL High Flux Isotope Reactor (HFIR) for applications in nuclear medicine, oncology and interventional cardiology," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 263, p. 503-509, 2005.
- [19] M. Venkatesh y S. Chakraborty, Production of therapeutic radionuclides in medium flux Research Reactors, p. 285- 298. En: Trends in Radiopharmaceuticals (ISTR-2005), Vienna, International Atomic Energy Agency, Vol. 1, 2007.
- [20] V. Le, "Specific Radioactivity of Neutron Induced Radioisotopes: Assessment Methods and Application for Medically Useful ^{177}Lu Production as a Case," *Molecules*, 16, p. 818-846, 2011.
- [21] Nuclear Energy Agency - NEA, Beneficial uses and production of isotopes, 2004 update, Paris, OECD, No. 5293, 2005, p. 9-36.
- [22] IAEA, Radiotracer residence time distribution method for industrial and environmental applications, Training Course Series No. 31, 2008, p. 57-144.
- [23] L. Bezzola, S. López y N. Bárbaro, "Effectiveness of different phosphatic fertilizers measured using labelled superphosphate and phosphorus taken up by plants," *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 39, vol. 1, p. 31-37, 1994.
- [24] A. Asfary, R. Al-Merey y M. Al-Hameish, "Fractionation of applied ^{32}P labeled TSP in calcareous soils," *Plant & Soil*, 264, p. 171-183, 2004.
- [25] B. Erenoglu et al., "Uptake and transport of foliar applied zinc (^{65}Zn) in bread and durum wheat cultivars differing in zinc efficiency," *Plant & Soil*, 241, vol. 2, p. 251-257, 2002.
- [26] G. Miller et al., "Absorption and translocation of ^{59}Fe and ^{14}C -rhodotorulate in iron-stressed tomato," *Journal of Plant Nutrition*, 13, vol. 2, p. 201-214, 1990.
- [27] N. Kobayashi et al., "Application of ^{28}Mg for characterization of Mg uptake in rice seedling under different pH conditions," *J Radioanal Nucl Chem*, 296, vol. 1, p. 531-534, 2013.
- [28] N. Longnecker y A. Robson, Distribution and Transport of Zinc in Plants, In: A. Robson, (ed.), Zinc in soils and plants, Australia: Kluwer Academic Publishers, 1993, p. 79-89.
- [29] Z. Kolar, T. Verburg y H. van Dijk, Radiotracer study of phosphate exchange between whey and casein micelles in cow's milk, *13th Radiochemical Conference. Booklet of Abstracts*, Jachymov, 1998, p. 343-355.
- [30] J. Pernía et al., Aplicación de técnicas especiales al estudio hidrológico de zonas de baja permeabilidad: Isótopos y Trazadores, Madrid: Instituto Tecnológico GeoMinero de España, p. 189-365, 1991.
- [31] S.M. Rao, Practical Isotope Hydrology, New Delhi: New India Publishing Agency, p. 23-163, 2006.
- [32] IAEA, Radiotracer technology as applied to industry, Final report of a co-ordinated research project 1997-2000, IAEA-TECDOC-1262, 2001, p. 2-91.
- [33] IAEA, Radiation protection and the Management of Radioactive Waste in the oil and gas industry, IAEA, Safety Reports Series No. 34, 2003, p. 38-49.
- [34] J. Kónya y N. Nagy, Radio and Nuclear Chemistry, London: Elsevier Inc., 1st Ed., p. 200-350, 2012.
- [35] J.C. Parada y D.M. Murcia, La fuente isotópica ^{241}Am -Be como medio para la síntesis de los radiotrazadores cloruro aúrico de trioctil y tridodecilamina, Tesis: Universidad Distrital, 2008, 153 p.
- [36] IAEA, Radiotracer Applications in Industry - A Guidebook, Technical Reports Series No. 423, 2004, p. 7-270.



- [37] IAEA, Application of radiotracer techniques for interwell studies, Radiation Technology Series No. 3, 2012, p. 8-86.
- [38] S. Jung et al., "Preparation of radioactive core-shell type $^{198}\text{Au}@\text{SiO}_2$ nanoparticles as a radiotracer for industrial process applications," *Applied Radiation and Isotopes*, 68, p. 1025-1029, 2010.
- [39] J. Adelstein y F. Manning, *Isotopes for Medicine and the Life Sciences*, Washington: National Academic Press, 1995, p. 35-52. Disponible: <https://www.nap.edu/catalog/4818/isotopes-for-medicine-and-the-life-sciences> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [40] M. Rennie, "An introduction to the use of tracers in nutrition and metabolism," *Proc Nutr Soc.*, 58, vol. 4, p. 935-944, 1999.
- [41] IAEA, Research Reactor Database, 2016. Disponible: <https://nucleus.iaea.org/RRDB/RR/ReactorSearch.aspx?rf=1> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [42] B. Zhuikov, "Production of medical radionuclides in Russia: Status and future - a review," *Applied Radiation and Isotopes*, 84, p. 48-56, 2014.
- [43] National Academies of Sciences, Engineering, and Medicine, *Molybdenum-99 for Medical Imaging*. Washington: The National Academies Press, 2016, p. 51-86. Disponible: <https://www.nap.edu/read/23563/chapter/6#85> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [44] IAEA, Nuclear Technology Review 2010, Report GC(54)/INF/3, 2010. Disponible: https://www.iaea.org/About/Policy/GC/GC54/GC54InfDocuments/English/gc54inf-3-att7_en.pdf [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [45] OIEA, Informe Final: Producción y usos de radioisótopos producidos en Reactores de Investigación en América Latina y el Caribe, OIEA, Proyecto de Cooperación Técnica RLA/0/037 ARCAL CXIX, 2013, 28 p.
- [46] R. De Dicco, Breve historia de los Reactores Nucleares de Investigación y Producción de Radioisótopos de la CNEA, Buenos Aires: Centro Latinoamericano de Investigaciones Científicas y Técnicas, 60 p., 2013.
- [47] P. Cristini et al., Actividades de producción de radioisótopos por fisión en la Argentina, *Memorias del X Congreso Regional Latinoamericano IRPA de Protección y Seguridad Radiológica*, Buenos Aires, 2015, 12 p.
- [48] CNEA, Radioisótopos para el desarrollo nacional, Buenos Aires: CNEA, 2015, p. 51-52. Disponible: <http://www.cnea.gov.ar/sites/default/files/05-Radiosotopos.pdf> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [49] CNEA, Memoria y Balance 2015, Buenos Aires: CRE Gráfica S.A., 2016, p. 39-59. Disponible: <http://www.cnea.gov.ar/sites/default/files/Memoria-Balance-2015.pdf> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [50] INVAP, RA-6 de Argentina. Disponible: <http://www.invap.com.ar/es/area-nuclear-de-invap/proyectos/reactores-ra6-de-argentina.html> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [51] ININ, "Aplicaciones del TRIGA Mark III," *Revista Contacto Nuclear*, 51, Vol. 27, p. 35-38, 2008.
- [52] ININ, Contribuciones del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares al avance de la Ciencia y la Tecnología en México, Edición Conmemorativa, Ciudad de México: ININ, 2010, p. 67-84.
- [53] J. Ortega, "Nueva Planta de Producción de Radioisótopos del ININ," *Revista Contacto Nuclear*, 29, vol. 7, p. 12-15, 2002.
- [54] J. Vizuet, J. Reyes y G. Molina, Estudio de detección de fugas mediante trazadores en una planta embotelladora en México, *International congress on radiological protection*, 4, p. 11, 2005.
- [55] R. Radicella, "El Proyecto Perú," *Revista de la Comisión Nacional de Energía Atómica - CNEA*, p. 5-9, 2008 Disponible: <http://www.cnea.gov.ar/sites/default/files/peru.pdf> [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [56] IPEN, Informe Científico Tecnológico 2010, Lima: IPEN, 2011, p. 111-129.
- [57] IPEN, IPEN 60 anos irradiando qualidade de vida, *Revista IPEN 60 anos*, Triunfal Gráfica e Editora, p. 22-25, 2016. Disponible: https://issuu.com/anapaula.freire/docs/ipen_60_anos [Último acceso: 15 de marzo 2017].

- [58] R. Saxena, The IEA-R1 Research Reactor: 50 years of operating experience and utilization for research, teaching and radioisotopes production, *International Conference on Research Reactors*, Sydney, 2007.
- [59] M. Chandía et al., "Experiencia Chilena en la producción de [¹⁸F]-FDG con ¹⁸F de Reactor," *Nucleotécnica*, año 19, N° 33, p. 53-63, 1999.
- [60] P. Sierralta et al., "Distribución biológica del ¹⁸F-Fluorodeoxiglucosa utilizando [¹⁸F] producido en Reactor," *Nucleotécnica*, año 22, n° 36, p. 7-13, 2002.
- [61] L. Pinto y N. Godoy, "The ¹⁶⁶Ho and ¹⁷⁷Lu production for nuclear medicine applications at the RECH-1," *Nucleotécnica*, año 22, n° 36, p. 133, 2002.
- [62] IAN/INEA, Libro de Registro de Operación del Reactor IAN-R1, Libros 1 al 10, Bogotá: INEA, 1965-1998.
- [63] E. Sandoval, "Experimento de criticidad con el Reactor de enseñanza e investigación IAN-R1," *Revista Colombiana de Física*, 2, vol. 1-2, p. 22-27, 1966.
- [64] J. Toro, Reactor IAN-RI del Instituto de Asuntos Nucleares de Colombia - 6 años de operación, Washington, D.C, International Atomic Energy Agency, Inter-American Nuclear Energy Commission, 1972, p. 253-262. Disponible: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/04/059/4059286.pdf?r=1 [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [65] J. Sarta, L. Castiblanco y J. Razvi, Conversion of the IAN-R1 Reactor from MTR HEU Fuel to TRIGA LEU Fuel, *Proceeding of 1997 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Jackson Hole, p. 1-6, 1997.
- [66] I. Concha, Neutronic calculations for the IAN-R1 Research Reactor core conversion, *Proceedings of the 1988 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and test reactor*, San Diego, p. 358-371, 1988.
- [67] A. Spin, R. Chesworth y G. West, Power upgrade and conversion of the Colombia R-1 Reactor to TRIGA-LEU fuel, *Proceedings of the 1990 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and test Reactors*, Newport, p. 368-385, 1990.
- [68] IAEA, History, Development and Future of TRIGA Research Reactors, Vienna, Technical Reports Series No. 482, p. 46-69, 2016.
- [69] E. Páez y S. Nassif, Producción de radioisótopos en el Reactor IAN-R1, Bogotá: IAN, IAN-Q-6, 1966.
- [70] J. Toro y H. Múnera, Cálculos y nomogramas para la producción de radioisótopos en reactores, Bogotá: IAN-ARI-2, 1969.
- [71] A. Spin et al., "Reactor nuclear IAN-R1: Características técnicas y aplicaciones," *Nucleares*, 5-6, vol. 3, p. 57-64, 1988.
- [72] IAN, Informe de labores 1988, Bogotá: IAN, 1989.
- [73] IAN, Informe de labores 1987, Bogotá: IAN, 1988.
- [74] J. Ahumada y A. Spin, Modificación del Reactor IAN-R1, International symposium on research reactor safety operations and modifications, IAEA-SM-310/32, Chalk River, 1989. Disponible: http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/22/047/22047708.pdf [Último acceso: 15 de marzo 2017].
- [75] IAN, Instituto de Asuntos Nucleares: Ciencia y tecnología para el progreso 30 años, Bogotá: IAN, 1989, p. 36-205.
- [76] A. Plata, H. Múnera y C. Rodríguez, Estudio de los acuíferos de la isla de San Andrés, empleando técnicas nucleares, Bogotá: IAN-ARI-28, Informe 2, 1972.
- [77] L. Sánchez, Estudio de filtraciones de la presa de Guatavita utilizando trazadores radiactivos, Bogotá: IAN, No. 13, 1978.
- [78] L. Sánchez et al., "Determinación de filtraciones en el dique auxiliar del embalse de Chingaza utilizando trazadores radiactivos," *Nucleares*, 1, vol. 1, p. 29-33, 1986.
- [79] IAN, Informe de labores 1985, Bogotá: IAN, 1986.
- [80] O. Bastidas, S. Urquiaga y A. Álvarez, "Influencia de la época de aplicación del ³²P-Superfosfato triple en la eficiencia de la fertilización fosfatada y en la productividad de la papa (*Solanum tuberosum* L)," *Nucleares*, 2, vol. 1, p. 11-18, 1986.
- [81] IAN, Informe de labores 1984, Bogotá: IAN, 1985.
- [82] R.H. Espinosa, ¹⁹⁸Au como radiotrazador en la industria del petróleo, Bogotá: IAN, 1989.



- [83] H. Múnera, Aplicaciones de radioisótopos en la industria del petróleo en Colombia, Bogotá: IAN, 1971, p. 52.
- [84] M.A. Martínez y G.Y. Rodríguez, Obtención de un compuesto de Au-198 miscible en petróleo como radiotrazador industrial, Tesis: Universidad Distrital Francisco José de Caldas, 1991, 79 p.
- [85] J. Sarta y L. Castiblanco, Neutronic calculations in core conversion of the IAN-R1 research reactor from MTR HEU to TRIGA LEU fuel, *International meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*, Chicago, p. 1-7, 2003.
- [86] T. Rivero, “El ININ contribuye a la puesta en operación del Reactor Nuclear Colombiano,” *Revista Contacto Nuclear*, 42, vol. 28, p. 4-6, 2005.
- [87] A. Mesquita, R. do Prado Souza y T. Rivero, IAEA Expert Missions in the recommissioning of the IAN-R1 TRIGA research reactor, *3rd World TRIGA Users Conference*, Belo Horizonte, p. 1-6, 2006.
- [88] D.L. Alonso, Factibilidad de síntesis del ^{198}Au con la fuente $^{241}\text{Am-Be}$ y del radiotrazador sulfitoaurato de sodio, Tesis: Universidad Distrital Francisco José de Caldas, 2007.
- [89] IAEA, Manual for Reactor Produced Radioisotopes, IAEA-TECDOC 1340, 2003, p. 63-65.
- [90] IAEA, Radioisotope handling facilities and automation of radioisotope production, IAEA-TECDOC-1430, 2004, p. 2-40.

Estimación de los parámetros de flujo neutrónico f y Φ_{th} a partir de la irradiación de suelos de referencia y monitores de Al-Au

Estimation of neutron flux parameters f and Φ_{th} by using both reference soil materials and Al-Au alloy Irradiation

O.A. Sierra, G.A. Parrado, D.L. Alonso, D.C. Herrera, M.L. Peña, A.F. Porras

Servicio Geológico Colombiano, Dirección Asuntos Nucleares, Carrera 50 No. 26-20, Bogotá, D.C., Colombia

Autor para correspondencia: osierra@sgc.gov.co

Resumen

En este trabajo se miden los parámetros de relación de flujo neutrónico térmico a epitérmico (f) y flujo neutrónico térmico (Φ_{th}) (asumiendo $\alpha = 0$), para la posición de irradiación (G3-G4) en la periferia del núcleo del Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1 del Servicio Geológico Colombiano. Esta medición se realizó a partir de las actividades inducidas por reacciones de captura neutrónica (n, γ), en 4 réplicas de dos suelos de referencia, las cuales fueron irradiadas en conjunto con monitores de Al-Au. Para los suelos de referencia, se consideraron cuatro reacciones de captura para isótopos de elementos de fracción de masa certificada y con comportamiento $1/v$ para la variación de la sección eficaz en el rango de energía correspondiente a neutrones térmicos. Se encontró un valor promedio de 33 para el parámetro f , en las 8 posiciones del contenedor en donde se ubicaron los suelos de referencia (CV = 9%), valor que es comparable con mediciones realizadas en canales de irradiación en la periferia de reactores tipo TRIGA. El flujo neutrónico térmico promedio determinado para las 8 posiciones del contenedor fue de $1,5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (CV = 4 %).

Palabras clave: Análisis por Activación Neutrónica Instrumental, Flujo Neutrónico, Espectrometría Gamma, Parámetros de Flujo de Neutrones (f, α).

Abstract

In this paper, the parameters thermal to epithermal neutron flux ratio (f) and thermal neutron flux (Φ_{th}) are estimated (assuming $\alpha = 0$) for the periphery irradiation positions (G3-G4) available at Nuclear Research Reactor IAN-R1 that belongs to the Colombian Geological Survey. This estimation was performed by measuring the induced activity, from neutron capture reactions (n, γ) in two reference soils, which were irradiated ($n = 4$) together with Al-Au monitors. Four reference capture reactions were considered in soils, which involve isotopes of elements with certified mass fraction and $1/v$ behavior for cross section variation in the range of thermal neutron energy. An average value of 33 (CV = 9%) for f was found, considering 8 positions in the irradiation container; this value is comparable with measurements reported for periphery irradiation channels of TRIGA type reactors. The average thermal neutron flux determined for the 8 position of the container resulted in $1,5 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (CV = 4 %).

Keywords: Instrumental Neutron Activation Analysis, validation, gamma spectrometry, neutron flux parameters (f, α).

1. INTRODUCCIÓN

El flujo de neutrones en las diferentes posiciones de irradiación de un Reactor Nuclear de Investigación se encuentra caracterizado por 2 parámetros principales. El primero, conocido como f , se define como la relación entre el flujo neutrónico térmico a epitérmico (ϕ_{th}/ϕ_{epi}); el segundo, se conoce como el parámetro α , el cual mide la desviación del comportamiento $1/E$ para los neutrones en la región epitérmica del espectro de neutrones [1, 2]. La determinación de estos 2 parámetros, involucra la calibración del canal de irradiación.

En la literatura se encuentran 3 metodologías básicas para la calibración experimental de los canales de irradiación: 1) el método de relación de cadmio multi-monitor, 2) el método de tres monitores no cubiertos (típicamente ^{197}Au , $^{94,96}\text{Zr}$), y 3) el método de multimonitor cubierto con Cd [1, 3-5]. Aunque otras alternativas también han sido exploradas como el uso de un sistema multimonitor de (Au, Cr, Mo) [6]. Cada una de estas metodologías, implica la irradiación de sistemas de múltiples monitores y estrictas rutinas de medición, con el fin de obtener la menor incertidumbre en la estadística de conteo.

La importancia de la calibración de los canales de irradiación reside en que el desarrollo de métodos avanzados de calibración para el Análisis por Activación Neutrónica, como $K_{0\text{Au}}$, requiere de la determinación experimental de f y α . Por otra parte, el conocimiento de estos parámetros, permite establecer, las posibles aplicaciones que se pueden desarrollar en determinado canal de irradiación (ej. Análisis por Activación Neutrónica Instrumental-INAA, Análisis por Activación Neutrónica con neutrones epitérmicos-ENAA, Huellas de Fisión-FT y Conteo de Neutrones Retardados-DNC, entre otros) [7].

Para el caso del Reactor Nuclear IAN-R1 colombiano, se han realizado experimentos para la determinación del flujo térmico y su distribución axial, mediante el

uso de una sonda auto energizada de Vanadio (*Self Powered Neutron Detector, SPND*), en las posiciones de irradiación *in core*, en los elementos reflectores de grafito y en la posición de irradiación en periferia [8]. El flujo neutrónico máximo determinado en este trabajo, se encontró en los canales *in core*, con un valor cercano a $7,8 \times 10^{11} \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Finalmente, en el presente trabajo se realizó la determinación preliminar de los parámetros f y Φ_{th} , suponiendo, como primera aproximación, un valor de $\alpha = 0$. Con esta premisa, es posible realizar el cálculo, mediante la medición de la actividad inducida en suelos de referencia, irradiados en conjunto con monitores de Al-Au, en la posición de irradiación en periferia del IAN-R1.

2. DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO

2.1. Modelo Empleado

Con el fin de relacionar la actividad inducida en los materiales irradiados por reacciones de captura de neutrones, con el principio físico del proceso de Activación Neutrónica, se empleó el modelo matemático descrito en la Ec. 1 [2].

Parámetros nucleares como $I_o(\alpha)$ y σ_{th} se encuentran disponibles en la literatura [9, 10]. Durante el análisis de los materiales sometidos a irradiación, es posible determinar experimentalmente los valores de A , t_p , t_d , mientras que, los valores de N_0 son determinados a partir de las fracciones de masa certificada. Por lo tanto, permanecen como incógnitas los valores de f y Φ_{th} .

$$A = N\lambda = \Phi_{th} \sigma_{eff} N_0 (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \quad (1)$$

Esta ecuación involucra los parámetros descritos en la Tabla 1.

Tabla 1. Descripción de los parámetros considerados en la Ecuación 1

| Parámetro | Descripción |
|---|--|
| A | Actividad inducida |
| t_i | Tiempo de irradiación |
| t_d | Tiempo de decaimiento |
| ϕ_{th} | Flujo de neutrones térmicos |
| $\sigma_{eff} = \sigma_{th} \left(1 + \frac{I_o(\alpha)}{\sigma_{th} * f} \right)$ | Sección eficaz efectiva |
| σ_{th} | Sección eficaz térmica |
| $I_o(\alpha)$ | Integral de resonancia |
| $f = \phi_{th} / \phi_{epi}$ | Relación de flujo térmico a epitérmico |
| N | Núcleos radiactivos formados |
| N_o | Número de núcleos Target al inicio |

Al tener 2 incógnitas, se necesita la medición de la actividad inducida en 2 materiales de contenido en fracción de masa conocido. En este trabajo, se emplearon 8 parejas conformadas por un suelo de referencia (NIST 2709a o NIST 2711a) con un monitor de Al-Au 0,1 % (referencia IRMM 530R).

En el caso de la matriz de suelo, es posible la medición de varios radionúclidos formados por las reacciones de captura de neutrones. En el cálculo se seleccionaron aquellos radionúclidos formados a partir de elementos con fracción en masa certificada y de núclidos con claro comportamiento $1/v$ para la sección eficaz de captura de neutrones térmicos. De acuerdo con lo anterior la Tabla 2 presenta las reacciones de captura de neutrones consideradas.

Tabla 2. Reacciones de captura consideradas y datos nucleares usados en las estimaciones [10]

| Reacción | σ_{th} (b) | I_o (b) |
|---|-------------------|-----------|
| $^{45}\text{Sc} (n, \gamma) ^{46}\text{Sc}$ | 27,2 | 12,0 |
| $^{50}\text{Cr} (n, \gamma) ^{51}\text{Cr}$ | 15,9 | 7,8 |
| $^{58}\text{Fe} (n, \gamma) ^{59}\text{Fe}$ | 1,30 | 1,7 |
| $^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60}\text{Co}$ | 37,18 | 75,9 |

2.2. Materiales Irradiados

Para este trabajo se tomaron 4 porciones analíticas de un gramo de los suelos de referencia NIST 2711a (Montana

II Soil) y NIST 2709a (San Joaquin Soil). Las muestras fueron acondicionadas en viales de polietileno de 3,4 cm³. A cada vial se adhirió aproximadamente 5 mg de monitor de Al-Au 0,1% en forma de lámina (ver Figura 1). Los viales acondicionados con muestra de suelo y monitor, fueron ubicados en la gradilla para su irradiación, acorde a lo mostrado en la Figura 2.

Figura 1. Acondicionamiento en el vial de los suelos y el monitor

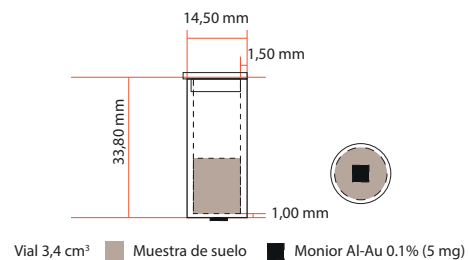
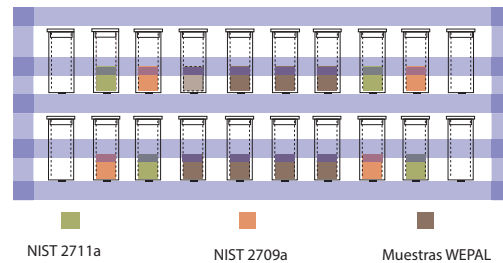


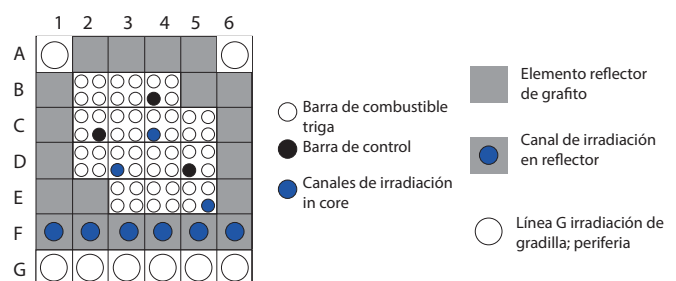
Figura 2. Ubicación de los viales en el contenedor de gradilla



2.3. Irradiación de los Materiales

La activación de los suelos de referencia y los monitores de flujo se realizó en el Reactor Nuclear de Investigación IAN-R1 (Bogotá, Colombia) en la posición de periferia (G3-G4) (ver Figura 3). Para esta posición se han estimado, en trabajos anteriores, flujos neutrónicos del orden de $10^{11} \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Figura 3. Diagrama del núcleo del reactor IAN-R1



2.4. Medición de la Actividad Inducida mediante Espectrometría Gamma

Con el fin de determinar la actividad inducida en los suelos de referencia, para radionúclidos de vida media larga, se realizó la medición por espectrometría gamma luego de 3 meses de decaimiento, empleando una geometría de 130,82 mm (distancia fuente-detector). El tiempo de conteo fue de 5 horas. Para estas mediciones se empleó un espectrómetro gamma Canberra® modelo GC 7020, el cual cuenta con el software Genie 2000 (versión 3.3 Canberra®) y analizador digital de señal tipo LYNX.

Por otra parte, los monitores de Al-Au fueron leídos después de 7 días de decaimiento, empleando una geometría de 112,41 mm. El tiempo de conteo empleado fue de 30 minutos y se utilizó, para estas mediciones, un espectrómetro gamma Canberra® modelo GC 3018, con analizador digital de señal tipo LYNX. En este caso la señal de interés corresponde al fotópico de 411,8 keV.

La calibración por eficiencia de los sistemas de espectrometría se realizó, mediante la medición de fuentes puntuales (de actividad certificada CMI *Czech Metrology Institute*), en las geometrías establecidas para la lectura de monitores y suelos de referencia. Las fuentes puntuales de referencia incluyeron los siguientes radionúclidos: ^{22}Na , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{133}Ba y ^{57}Co .

3. RESULTADOS Y ANÁLISIS

3.1. Uso de la Ecuación 1 para la determinación de Φ_{th}

Como se mencionó en la descripción del modelo, es posible relacionar la actividad inducida en los monitores de Al-Au y en los suelos de referencia con los parámetros f y Φ_{th} , mediante las Ec. 2 y 3.

$$A_{Au} = \Phi_{th} \sigma_{thAu} \left(1 + \frac{I_{oAu}}{\sigma_{thAu} * f}\right) N_{oAu} (1 - e^{-\lambda_{Au} t_i}) e^{-\lambda_{Au} t_d Au} \quad (2)$$

$$A_{Sj} = \Phi_{th} \sigma_{thSj} \left(1 + \frac{I_{oSj}}{\sigma_{thSj} * f}\right) N_{oSj} (1 - e^{-\lambda_j t_i}) e^{-\lambda_j t_d Sj} \quad (3)$$

Donde A_{Au} es la actividad del ^{198}Au después de cierto tiempo de decaimiento t_{dAu} y A_{Sj} es la actividad del radionúclido j formado en la irradiación del suelo de

referencia después de un tiempo de decaimiento t_{dSj} . Resolviendo para el flujo térmico (Φ_{th}), las Ec. 2 y 3, y teniendo en cuenta la definición del parámetro f , es posible obtener:

$$\Phi_{th} = \frac{\left(\frac{I_{oSj} * A_{Au}}{NDS_{Au}} - \frac{I_{oAu} * A_{Sj}}{NDS_{Sj}}\right)}{(I_{oSj} * \sigma_{thAu} - I_{oAu} * \sigma_{thSj})} \quad (4)$$

Donde NDS es un factor que incluye, el número de átomos blancos, el factor de saturación, y el factor de decaimiento.

Como para los suelos de referencia se incluyeron 4 reacciones de captura, es posible estimar 4 valores de Φ_{th} y f para cada pareja suelo-monitor.

3.2. Actividad determinada en los Suelos de Referencia

Las Figuras 4 y 5 muestran las actividades determinadas para los radionúclidos considerados en los suelos de referencia.

Figura 4. Actividad específica determinada para el suelo NIST SRM 2711a

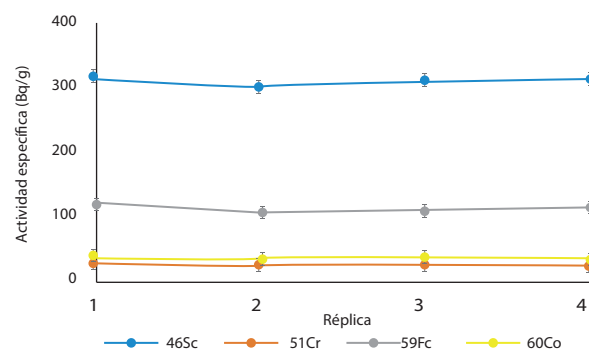
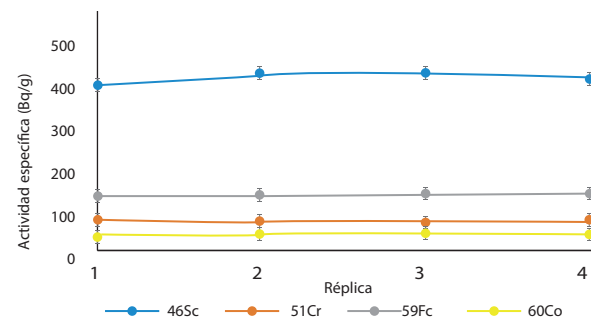


Figura 5. Actividad específica determinada para el suelo NIST SRM 2709a



Para un mismo suelo, se observó baja variación en la actividad específica determinada, tal como se esperaba para un material homogéneo y radionúclidos de vida larga. Dentro de las diferentes réplicas se obtuvieron coeficientes de variación entre el 2 y 10 %, lo que puede ser explicado por la variación en el suelo de la fracción en masa de los elementos considerados, y por la variación espacial del flujo neutrónico dentro del contenedor de irradiación.

3.3. Valores Estimados de f y Φ_{th}

La Tabla 3 muestra los valores estimados de f y Φ_{th} para la primera réplica del suelo NIST 2711a-Monitor Al-Au, empleando en cálculo una reacción (n, γ) diferente.

Tabla 3. Valores estimados para f y flujo térmico para la primer réplica del suelo Nist 2711a

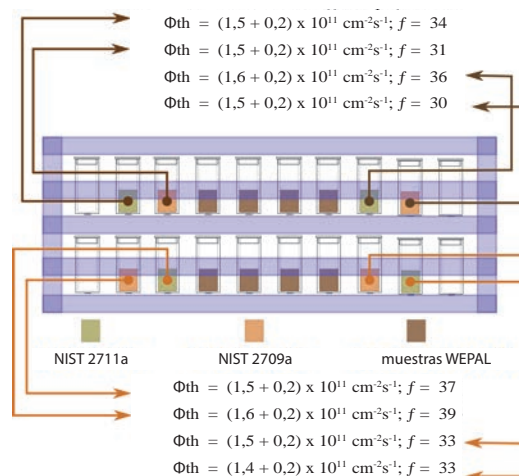
| Elemento | Blanco | Producto | Φ_{th} ($cm^{-2}s^{-1}$) $\pm U$ (k=2) | F |
|----------|------------------|------------------|---|----|
| Sc | ⁴⁵ Sc | ⁴⁶ Sc | $(1,56 \pm 0,07) \times 10^{11}$ | 32 |
| Cr | ⁵⁰ Cr | ⁵¹ Cr | $(1,6 \pm 0,4) \times 10^{11}$ | 34 |
| Fe | ⁵⁸ Fe | ⁵⁹ Fe | $(1,7 \pm 0,1) \times 10^{11}$ | 40 |
| Co | ⁵⁹ Co | ⁶⁰ Co | $(1,6 \pm 0,1) \times 10^{11}$ | 38 |
| | | Promedio | $(1,6 \pm 0,2) \times 10^{11}$ | 36 |
| | | CV (%) | 3 | 10 |

En la Tabla 3, se observa una baja variación para el valor de flujo térmico estimado, causado por el efecto de usar una reacción (n, γ) diferente (3%). Típicamente, esta variación para el resto de los suelos considerados estuvo entre el 2 y 11 %. Para el caso del parámetro f , la variación por el cambio de la reacción considerada, resultó entre el 10 y 27% en CV. Con el objetivo de observar la tendencia en los valores de estos parámetros y su variación en el contenedor de irradiación, se reporta para cada posición del contenedor, el promedio de los parámetros estimados a partir de 3 reacciones de captura consideradas, ya que como muestra la tabla 3 el valor estimado a partir de la reacción del ⁵⁰Cr, presenta una alta incertidumbre, debido a gran variación de este elemento en el suelo de referencia.

La Figura 6 muestra los valores promedio de f y Φ_{th} para las 8 posiciones del contenedor de irradiación. Según estos resultados, se puede plantear que el promedio de flujo térmico para la posición de irradiación en periferia (G3-G4 figura 3) es de $1,5 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$ (CV 4 %). De

manera similar en promedio f tendría un valor de 33 (CV = 9 %). Como se mencionó anteriormente, Sarta y colaboradores [8], informaron para las posiciones C4 y D4 un máximo de flujo de $7,8 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$, mientras que mediciones recientes realizadas por Sandoval y colaboradores, usando la misma metodología de Sarta, encontraron para la posición G3-G4, valores de $2,5 \times 10^{11} n cm^{-2}s^{-1}$. Si bien existe una diferencia entre los valores de flujo neutrónico térmico estimados en el presente trabajo y lo reportado mediante medición directa con sonda de Vanadio SPND, hay que tener en consideración que, las variaciones pueden producirse como consecuencia de diferencias en los procedimientos de calibración empleados en cada metodología, y las suposiciones de partida de cada modelo de medición.

Figura 6. Valores promedio de f y Φ_{th} estimados en las posiciones del contenedor tipo gradilla



Los resultados anteriores incentivan la realización de experimentos rigurosos para la calibración de los canales de irradiación del IAN-R1 mediante el uso de metodologías estándar [1, 11], indicando que los resultados obtenidos en este trabajo pueden usarse como orientadores de los posibles valores a obtenerse en experimentos elaborados de calibración de canales de irradiación.

Finalmente, comparando los valores estimados de Φ_{th} y de f en el presente trabajo, con los requerimientos para el desarrollo de la técnica de Análisis por Activación Neutrónica en el canal de irradiación de periferia del IAN-R1 [7], es posible argumentar que este canal, es adecuado para el desarrollo de INAA, aunque debe propenderse por migrar a un canal que proporcione un

flujo térmico más alto, con el fin de obtener una mejor sensibilidad en el análisis de elementos traza. En cuanto al valor de f , se debe mantener un valor mínimo de 10, para favorecer la activación por la captura de neutrones térmicos. Según lo anterior, si en G3-G4 se tiene un valor de 33 se puede suponer que en la fila F se alcance un valor mayor a 10 y se pueda desarrollar INAA en estos canales.

4. CONCLUSIONES

En este trabajo se presentó una primera aproximación hacia la determinación de los parámetros de flujo de neutrones térmico (Φ_{th}) y relación de flujo térmico a epitérmico (f), para la posición de irradiación en la periferia del núcleo del reactor IAN-R1. Se encontró un flujo de neutrones térmico del orden de $1,5 \times 10^{11}$ n cm⁻²s⁻¹, lo que sitúa a este canal de irradiación, en el requerimiento mínimo para el desarrollo de la activación neutrónica instrumental (INAA). El valor del parámetro f se estimó en 33, lo que indica que en esta posición se presenta una buena termalización de los neutrones. Esto último plantea la posibilidad de que las posiciones de irradiación de los reflectores de grafito se constituyan en el mejor canal para el desarrollo de INAA.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al grupo del Reactor Nuclear IAN-R1 por el posicionamiento de gradillas e irradiación de muestras; al Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) por la asesoría y acompañamiento en la formación del personal del laboratorio y finalmente, a los revisores internos y externos, por sus aportes en la obtención de un mejor documento.

REFERENCIAS

- [1] F. de Corte and A. Simonits, U. Gent, Ed. *Vademecum for k0 Users, Addendum to the Kayzero /Solcoi Report*, R94/11492 ed. Geleen, Belgium: DMS Research 1994, p. 50.
- [2] R. R. Greenberg, P. Bode, and E. A. De Nadai Fernandes, "Neutron activation analysis: A primary method of measurement," *Spectrochimica Acta - Part B Atomic Spectroscopy*, Article vol. 66, no. 3-4, pp. 193-241, 2011.
- [3] M. A. eB.C. Menezes, A. S. Leal, S. P. de Meireles, and R. Jacimovic, "Neutron flux parameters in the Triga Mark I IPR-R1 research reactor, CDTN/CNEN, for -INAA method," in *INAC 2013: International nuclear atlantic conference*, Brazil, 2013.
- [4] K. Embarch, H. Bounouira, M. Bounnakhla, B. Nacir, and R. Jacimovic, "Characterization of typical irradiation channels of CNESTEN's TRIGA MARK II reactor (Rabat, Morocco) using NAA k0-Method," in *6 African conference on research reactor utilization and safety*, Nigeria, 2010.
- [5] I. A. Alnour *et al.*, "Determination of neutron flux parameters in PUSPATI TRIGA Mark II Research Reactor, Malaysia," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 296, no. 3, pp. 1231-1237, 2013.
- [6] M. J. J. Koster-Ammerlaan, M. A. Bacchi, P. Bode, and E. A. De Nadai Fernandes, "A new monitor for routine thermal and epithermal neutron fluence rate monitoring in k0 INAA," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 66, no. 12, pp. 1964-1969, 2008.
- [7] IAEA, *Applications of Research Reactors*, Nuclear Energy Series No. NP-T-5.3, 2014.
- [8] J. A. Sarta Fuentes and L. A. Castiblanco Bohórquez, "Neutron flux measurement and thermal power calibration of the IAN-R1 TRIGA reactor," *Proceedings of the 4. World TRIGA Users Conference*, France 2008.
- [9] International Atomic Energy Agency, "Practical Aspects of Operating a Neutron Activation Analysis Laboratory (IAEA-TECDOC). International Atomic Energy Agency," 1990.
- [10] S. Mughabghab, "Thermal neutron capture cross sections resonance integrals and g-factors", Brookhaven National Laboratory INDC-440, 2003.
- [11] ASTM, "Standard Test Method for Determining Thermal Neutron Reaction Rates and Thermal Neutron Fluence Rates by Radioactivation Techniques", ASTM E262-13, 2013.

Montaje para la determinación *in situ* por espectrometría gamma de descargas líquidas de ^{131}I en servicios de terapia

A setup for *in situ* measurements of liquid discharges of ^{131}I by gamma spectrometry in radiotherapy services

F. Mosos, A. Abadía, J.W. Gómez y P. Casallas

¹Dirección de Asuntos Nucleares, Servicio Geológico Colombiano, Carrera 50 No. 26-20, Bogotá, D.C. Colombia

Autor para correspondencia: fmosos@sgc.gov.co

Resumen

En este trabajo se presenta una alternativa para la determinación de la actividad descargada de ^{131}I en los vertimientos de las instalaciones de medicina nuclear que realizan terapia. Se desarrolla un montaje para la determinación *in situ* de descargas líquidas de ^{131}I mediante la técnica de espectrometría gamma de alta resolución utilizando un detector de germanio hiperpuro. El montaje construido simuló las condiciones reales de descarga en una instalación, con el propósito de poner a punto el sistema de medida empleado, determinando los parámetros de eficiencia, incertidumbre y límite de detección.

Palabras clave: ^{131}I , Descargas radiactivas, Detector de GeHp, Yodo, Espectrometría Gamma *in situ*

Abstract

This paper presents an alternative for determining the activity discharged ^{131}I in the dumping of nuclear medicine facilities that perform therapy, a mount for the *in situ* determination of liquid discharges of ^{131}I by spectrometry technique developed gamma high resolution using hyperpure germanium detector. The assembly constructed simulated actual discharge conditions in an installation, in order to fine-tune the measurement system used, determining the parameters of efficiency, uncertainty and detection limit.

Key words: ^{131}I , Radioactive discharges, HpGe Detector, Iodine, *in situ* gamma-ray spectrometry

1. INTRODUCCIÓN

El empleo de compuestos radiactivos en la medicina es de amplio uso para el diagnóstico y tratamiento de muchas enfermedades. En Colombia, la medicina nuclear se inició en 1955 con la aplicación de yodo-131 (^{131}I) [1], el cual es ampliamente empleado a nivel mundial [2-3], donde se administran actividades terapéuticas que van desde 800 a 6000 MBq, dependiendo de la enfermedad a tratar [4]. Estos valores son muy superiores a los usados en diagnóstico, y por tanto representan un riesgo radiológico significativo.

De la actividad total de ^{131}I administrada a un paciente en un tratamiento, entre el 70 y el 90% se elimina por la orina en las primeras 48 horas. En la actualidad las instalaciones que usan este radionúclido en pacientes, con fines de terapia, mantienen a las personas hospitalizadas en cuartos que han sido diseñados para dirigir la orina a sistemas de manejo de vertimientos [5-6], donde se deben retener los líquidos hasta que alcancen niveles de radiactividad por debajo de los límites autorizados [7].

Las instalaciones generadoras de vertimientos deben medir la magnitud de las descargas radiactivas de ^{131}I con el fin de verificar que no se superen los límites establecidos en la normatividad de cada país. De acuerdo a la Resolución 4 1178 del Ministerio de Minas y Energía de Colombia [7-8], la cantidad límite de vertido líquido a masas de agua para ^{131}I es de 1×10^7 Bq/año. La medición de las descargas radiactivas de ^{131}I requiere equipos con la capacidad de medir radiación gamma en bajas concentraciones (del orden de 1×10^2 Bq/l), por esta razón usualmente se emplean metodologías de muestreo y medición en laboratorio [9-10]. Debido a los requisitos regulatorios relacionados con estas descargas, cada instalación debe contar con un sistema para el manejo adecuado de los vertimientos, que además de representar un riesgo radiológico, implica también un riesgo biológico.

La alternativa de determinar la concentración radiactiva de ^{131}I *in situ* ofrece ventajas técnicas y de seguridad sobre una metodología que implique el muestreo y posterior análisis en laboratorio [11], entre las que sobresalen:

- No hay contacto físico de los vertimientos con el equipo de medida ni es necesaria la manipulación de muestras radiactivas, que además presentan riesgos biológicos.
- Los resultados se obtienen en forma inmediata en el lugar de medición, obviando los tiempos generalmente largos de las mediciones de laboratorio.
- No se generan desechos radiactivos adicionales a nivel de laboratorio por cuanto no es necesaria la manipulación de muestras.

Con base en lo expuesto anteriormente, el propósito de este trabajo consiste en diseñar un montaje experimental para la determinación *in situ* de descargas líquidas de ^{131}I , con miras a su posterior implementación dentro de un protocolo en servicios de terapia. En el contexto actual es relevante contar con una alternativa técnica de evaluación de vertimientos que sea de fácil implementación manteniendo criterios de trazabilidad metrológica y la capacidad de dar resultados con incertidumbre y límites de detección suficientemente bajos para ser aplicable en la práctica.

2. METODOLOGÍA

2.1. Equipo de espectrometría gamma

El trabajo experimental se desarrolló en la Instalación Centralizada para la Gestión de Desechos Radiactivos perteneciente al Servicio Geológico Colombiano. El equipo usado en la investigación es un sistema portátil de espectrometría gamma de alta resolución con detector de germanio hiperpuro (GeHp), el cual tiene una eficiencia relativa del 10% en la energía de 1,33 MeV. En la Tabla 1 se presentan las principales especificaciones del equipo:

Tabla 1. Especificaciones del sistema de espectrometría portátil [12]

| Especificación | Valor |
|--------------------------|---|
| Marca | Canberra |
| Modelo del detector | GL0515 |
| Multicanal | MCA-527 |
| Dimensiones del detector | Área: 500 mm ² Espesor: 15 mm |
| Autonomía del criostato | 22 h |
| Intervalo energético | > 5 keV |
| Resolución para 122 keV | 0,55 keV |

El ^{131}I es un radionúclido con periodo de semi-desintegración de 8,02 días [13] es emisor beta y gamma. Las energías de emisión gamma características se muestran en la Tabla 2, el fotópico de 364 keV se seleccionó para realizar la cuantificación de la actividad debido a su alto rendimiento gamma.

Tabla 2. Fotones gamma característicos del ^{131}I [13]

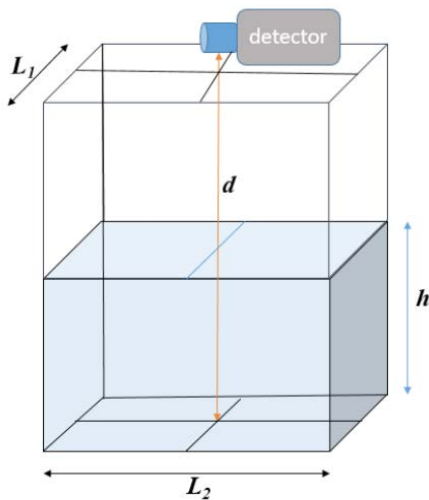
| Energía [keV] | Rendimiento gamma |
|---------------|-------------------|
| 80,1850 | 0,02607 |
| 284,305 | 0,0606 |
| 364,489 | 0,812 |
| 636,989 | 0,0726 |
| 722,911 | 0,0196 |

2.2. Marco teórico para la medición

Para modelar las descargas líquidas de ^{131}I y desarrollar la metodología de medición, se parte de la definición del punto de descarga como una caja que recibe los vertimientos de la instalación y entrega los mismos a la red de alcantarillado. La caja es modelada como un paralelepípedo que mantiene un nivel de líquido constante o bien, el nivel varía en función de la tasa de descarga. Dicha caja de inspección normalmente se construye en concreto con un área transversal que se aproxima a un cuadrado de 60 cm de lado [14], que en condiciones normales se encuentra cerrada con una tapa que usualmente se construye de concreto.

En este montaje, la medición se realiza con la caja de inspección destapada. El detector se ubica a una distancia vertical determinada sobre la línea central simétrica, tal como se presenta en la Figura 1. Con el fin de reproducir las condiciones de medición, para posicionar el detector en una geometría reproducible, se utilizó una lámina de acrílico sobre la caja de inspección que cuenta con un agujero en la parte central lo suficientemente amplio para evitar interacción del campo de radiación generado desde la matriz hacia el detector.

Figura 1. Esquema del punto de descarga (caja de inspección)



Donde:

- d : Distancia desde la base de la caja y la superficie lateral del detector [cm]
- h : Altura de la columna de líquido [cm]
- L_1 : Ancho interno de la caja [cm]

L_2 : Largo interno de la caja [cm]

En condiciones de estado estacionario, la actividad total que se descarga está dada por la Ec. 1:

$$A_T = \int_0^t Q \times C dt \quad (1)$$

Donde:

- A_T : Actividad total de ^{131}I descargada en el intervalo de tiempo t [Bq]
- Q : Caudal de vertimiento [l s^{-1}]
- C : Concentración radiactiva de ^{131}I [Bq l^{-1}]

Suponiendo una distribución homogénea del radionúclido en el líquido, lo cual es aplicable para ^{131}I , la concentración radiactiva se puede determinar mediante espectrometría gamma a partir de la siguiente ecuación:

$$C = \frac{R_s}{\epsilon \gamma C_f V} \quad (2)$$

Donde:

- C : Concentración radiactiva [Bq l^{-1}]
- ϵ : Eficiencia de detección en el pico de absorción total para la energía de 364 keV
- V : Volumen del líquido en la caja [l] = $h L_1 L_2 / 1000$
- C_f : Factor de corrección por decaimiento durante la medición
- R_s : Tasa de conteo neta en el fotópico característico [s^{-1}]
- γ : Rendimiento gamma en la energía característica

Si la medición espectrométrica se realiza en un tiempo representativo, es posible tomar el caudal como el promedio constante que sale de la integral de la Ec. 1. De la misma manera, suponiendo que es posible estimar el volumen promedio del líquido en la caja durante el tiempo de medición, la actividad total descargada durante la medición se puede calcular a partir de la ecuación:

$$A_T = \frac{Q}{\epsilon \gamma C_f \bar{V}} \int_0^t R_s dt \quad (3)$$

Donde \bar{V} es el volumen promedio del líquido en la caja durante la medición. La integral corresponde al área bajo la curva gaussiana en el fotópico de 364 keV del espectro obtenido, es decir, las cuentas netas en el fotópico (N_s). La Ec. 3 se simplifica a la forma:

$$A_T = \frac{Q N_s}{\epsilon \gamma C_f \bar{V}} \quad (4)$$

2.3. Diseño y montaje experimental

El objetivo del experimento es determinar la eficiencia de detección para la geometría del montaje (caja de inspección y sistema de medición, Figura 1) para diferentes valores de d y h . A partir de los resultados de la eficiencia y los valores de d y h se deduce una expresión de la eficiencia en función de d y h que puede ser empleada para hacer determinaciones en las cajas de paso de las instalaciones que realizan terapias con ^{131}I .

Para la realización de la investigación se procedió a construir un montaje con las dimensiones típicas de las cajas de inspección utilizadas en los centros médicos de la ciudad de Bogotá, cuya área transversal fue de 60 cm x 60 cm. Se utilizó material acrílico de 5 mm de espesor en las paredes y en la base y se rodeó completamente de bloques de concreto de 20 cm de espesor (ver Figura 2). El montaje se construyó de tal manera que se facilite el llenado y vaciado con soluciones acuosas de actividad conocida de ^{131}I ; además dadas las características del acrílico, fue factible medir las variables h y d con exactitud. Se dispuso de una lámina de acrílico superior que permitió la ubicación del detector a las distancias d deseadas (Figura 2). Con el fin de no disminuir la eficiencia de detección, se perforó la parte central de la lámina superior, haciendo insignificante la atenuación de fotones entre el agua y el detector.

Aunque la situación real para las mediciones en campo está prevista para realizarse en cajas de inspección cuyo material es concreto, se considera que en el montaje propuesto no es significativo el error asociado a la diferencia en la retrodispersión que existe entre el acrílico y el concreto debido al bajo espesor del acrílico y al bajo rendimiento gamma de las energías características de emisión del ^{131}I superiores a 364 keV (ver Tabla 2).

Figura 2. Montaje experimental de una caja de inspección para la determinación de descargas *in situ* de ^{131}I



El experimento consistió en la preparación de una solución acuosa de ^{131}I de concentración de actividad conocida y la adquisición de espectros gamma para valores de d y h cuidadosamente elegidos con la finalidad de determinar la eficiencia experimental para cada caso y así estimar la eficiencia en el punto de descarga de la instalación que se debe usar en la Ec. 4. Los valores de d usados fueron 62,0 cm, 69,7 cm y 77,4 cm y para cada uno de estos se usaron valores h de 1,7 cm, 3,1 cm, 4,6 cm, 6,0 cm, 7,5 cm, 8,9 cm y 10,4 cm. La elección de los valores de d se basó en la necesidad de representar las condiciones previstas para la medición *in situ*; es decir, en la práctica y de acuerdo a lo exigido en la norma de cajas de inspección [14], estas deberán

tener una altura de 60 cm, por lo tanto, el detector se ubicó a una altura un poco superior. En cuanto a los valores de h se tomaron valores de 0 a 10 cm ya que la norma mencionada anteriormente indica un rebose máximo de 10 cm para estas cajas.

2.4. Calibración del sistema

La calibración del sistema se realizó usando fuentes radiactivas con geometría puntual y actividad certificada por *Czech Metrological Institute*, para los radionúclidos ^{133}Ba , ^{137}Cs y ^{60}Co . La eficiencia de detección se obtuvo como función de la energía a diferentes distancias fuente-detector. La curva de eficiencia para una geometría puntual permitió determinar la actividad de una fuente de ^{131}I de uso médico en forma de cápsula, resultando una actividad de (175 ± 5) MBq. Teniendo en cuenta las dimensiones de la cápsula (5 mm) y la distancia fuente detector usada en la estimación de la actividad (1856 mm) se consideró que se cumplían las condiciones para realizar esta calibración gruesa.

Posteriormente se diluyó a volumen conocido, se realizó el fraccionamiento 1/10 y se tomó dicha fracción de esta solución, la cual se llevó hasta 35 litros de agua. La solución resultante fue la empleada para realizar las posteriores mediciones con el fin de determinar la eficiencia del equipo en el pico de absorción total para la energía de 364 keV, para el montaje en la caja de inspección.

2.5. Estimación de incertidumbre

La incertidumbre en la determinación de la eficiencia del equipo en el pico de absorción total se determinó como la incertidumbre combinada obtenida a partir de los aportes de incertidumbre de los parámetros relevantes para el experimento, que corresponden a las magnitudes de la Ec. 2 y a d y h que deben ser medidos para cada experimento. Para realizar lo anterior se usó la siguiente expresión:

$$u_\epsilon = \epsilon \cdot \sqrt{\left(\frac{u_A}{A}\right)^2 + \left(\frac{u_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{u_\gamma}{\gamma}\right)^2 + \left(\frac{u_{c_f}}{c_f}\right)^2 + \left(\frac{u_d}{d}\right)^2 + \left(\frac{u_h}{h}\right)^2 + \frac{(u_{R_{s+b}}^2 + u_{R_b}^2)}{(R_{s+b} - R_b)^2}}$$

(5)

Donde:

u_i : Incertidumbre de la magnitud i

A : Actividad de ^{131}I del líquido en la caja [Bq]

m : Masa del líquido en la caja [kg]

R_{s+b} : Tasa de conteo total en el fotópico característico [s^{-1}]

R_b : Tasa de conteo de fondo en el fotópico característico [s^{-1}]

3. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

3.1. Eficiencia

En la Tabla 3 se muestran los resultados de los valores experimentales de eficiencia en el pico de absorción junto a la incertidumbre combinada u obtenida para cada medida como función de las dos variables geométricas principales h y d . En la Figura 3 se muestra la variación gráfica de ϵ en función de h para cada distancia d medida.

Tabla 3. Resultados de mediciones de ϵ para diferentes valores de d y h

| altura columna líquido h (cm) | valores de d empleados (cm) | | | | | |
|--|-------------------------------|-----------------|------------------------|-----------------|------------------------|-----------------|
| | 62,0 | | 69,7 | | 77,4 | |
| | $\epsilon \times 10^7$ | $u \times 10^9$ | $\epsilon \times 10^7$ | $u \times 10^9$ | $\epsilon \times 10^7$ | $u \times 10^9$ |
| 1,7 | 16 | 4x | 13 | 37 | 11 | 31 |
| 3,1 | 7,2 | 21 | 5,9 | 17 | 4,9 | 14 |
| 4,6 | 4,6 | 13 | 3,7 | 11 | 3,0 | 8,8 |
| 6,0 | 3,3 | 9,4 | 2,7 | 7,7 | 2,2 | 6,3 |
| 7,5 | 2,5 | 7,1 | 2,0 | 5,8 | 1,7 | 4,8 |
| 8,9 | 2,0 | 5,8 | 1,6 | 4,7 | 1,3 | 3,8 |
| 10,4 | 1,6 | 4,9 | 1,3 | 3,9 | 1,1 | 3,3 |

Se observa que la eficiencia es mayor conforme se presentan menores valores de h . Este comportamiento es congruente con el hecho de que a mayor altura de la columna de líquido, el efecto de auto-atenuación aumenta. Se observa que para un mismo valor de h , la eficiencia disminuye con el aumento de la distancia d . Este comportamiento es más visible a menores valores

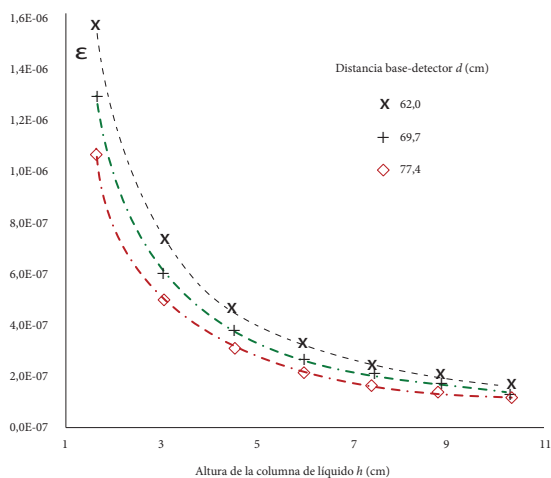
de h donde la variación de la eficiencia con el cambio de d resulta de mayor magnitud. A partir de los resultados experimentales de la Tabla 3, se puede predecir el valor de eficiencia como función de h y de d para cualquier pareja de valores dentro del intervalo experimental estudiado, mediante la expresión:

$$\varepsilon = a(d) \times h^{b(d)} \quad (6)$$

Donde $a(d)$ se puede expresar a partir de una ecuación polinómica de segundo orden de la forma:

$$a = a_1 \times d^2 + a_2 \times d + a_3 \quad (7)$$

Figura 3. Valores de eficiencia a la energía 364 keV obtenidos experimentalmente para diferentes valores de d y h



Los valores de a_1, a_2 y a_3 , son constantes que se obtuvieron por regresión polinómica y son respectivamente: $7,3621 \times 10^{-10}$, $-1,6134 \times 10^{-7}$ y $-1,0066 \times 10^{-5}$. Por otro lado, $b(d)$ se determina por interpolación lineal de los valores de b experimentales. A continuación, se presentan los resultados de los coeficientes a y b para los tres valores experimentales de d .

Tabla 4. Coeficientes a y b para la curva de ajuste de eficiencia

| $d[\text{cm}]$ | 62,0 | 69,7 | 77,4 |
|----------------|--------------------------|--------------------------|--------------------------|
| a | $2,8961 \times 10^{-06}$ | $2,3998 \times 10^{-06}$ | $1,9908 \times 10^{-06}$ |
| b | -1,2255 | -1,2369 | -1,2386 |

3.2. Capacidades para la determinación de ^{131}I

Con los resultados obtenidos es posible realizar mediciones caracterizando geoméricamente el sistema con dos variables relevantes como lo son la altura de la columna de líquido y la diferente profundidad que pueda presentar la caja de inspección. Sin embargo, existen aún varios aspectos nombrados más adelante y que se deben estudiar y conocer más a fondo con el fin de continuar con la implementación del protocolo para medición *in situ*. Valores de eficiencia del orden de 10^{-6} como los obtenidos (ver Tabla 4) deben ser optimizados para mejorar la capacidad de medición del sistema.

Los resultados obtenidos con este montaje para la medición *in situ* con un sistema de espectrometría gamma fueron satisfactorios. Con los mismos se logra predecir la variación de la eficiencia del montaje en función del cambio de dos variables relevantes en el momento de medir descargas de ^{131}I , como lo son la distancia entre la base de la caja de inspección y el detector, y la altura de la columna de líquido en la caja. Un desarrollo posterior de interés se relaciona con el estudio de un sistema el sistema de flujo dinámico como el que realmente se presenta en los sistemas de manejo de vertimientos de las instalaciones donde se realiza terapia con ^{131}I .

Los límites de detección son función, entre otras variables, del tiempo de medición, teniendo en cuenta el orden de magnitud de la eficiencia de detección del sistema [15], y considerando tiempos de medición de 2 horas, la metodología tiene límites de detección del orden de 3 kBq/l.

Teniendo en cuenta que en esta primera aproximación se consideró la distribución homogénea del radionúclido en el líquido, es necesario estudiar en un trabajo posterior el valor de incertidumbre introducida por este factor, debido al efecto de una posible no homogeneidad.

El montaje se construyó para determinar los parámetros de eficiencia, incertidumbre y límite de detección y con esto realizar mediciones en los puntos de descarga de las

instalaciones generadoras (cajas de inspección) con una geometría estandarizada de área transversal (60 cm x 60 cm), la metodología contiene algunos supuestos que son aplicables a las condiciones reales de medida. Sin embargo, para geometrías diferentes a la experimental o condiciones que se alejen de las aplicadas en el montaje es necesario estimar las correcciones que apliquen a la eficiencia de medición ϵ .

Dadas las particularidades de cada sistema de detección que pueda emplearse, los valores de ϵ obtenidos en los resultados son específicos y aplicables únicamente para el modelo propuesto y el equipo de detección empleado en el experimento. Los límites de detección obtenidos se consideran compatibles con los niveles de actividad de descarga máximo de ^{131}I establecidos en las recomendaciones [16].

4. CONCLUSIONES

El montaje propuesto contribuye de manera preliminar a dilucidar las diferentes variables que son necesarias para la puesta a punto e implementación de un protocolo para la determinación *in situ* por espectrometría gamma de alta resolución (GeHp) de descargas líquidas de ^{131}I en servicios de terapia. A partir del desarrollo se permite la evaluación rápida, sin contacto físico con los vertimientos radiactivos y con las especificaciones metrológicas aptas para medir este radionúclido en concentraciones comparables con los límites de vertimientos recomendados internacionalmente.

Aunque esta metodología puede ser aplicada a descargas pulsadas con concentración variables, ya que está basada en la integral de cuentas durante el tiempo de medición y no en valores instantáneos de las tasas de conteo, es necesario evaluar el efecto en el límite de detección de la misma para flujos grandes donde la concentración de actividad absoluta puede bajar a niveles no medibles.

REFERENCIAS

- [1] E. O. Ruiz, "La Medicina Nuclear," Academia Nacional de Medicina - Asociación Colombiana de Medicina Nuclear, p. 13, 2002.
- [2] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation and UNSCEAR 2008. Report to the General Assembly with Scientific Annexes, "Sources and effects of Ionizing Radiation," 2010.
- [3] International Commission on Radiological Protection, "Release of patients after therapy with unsealed radionuclides," *Ann. ICRP*, vol. 34, no. 2, pp. 1-79, 2004.
- [4] International Atomic Energy Agency - IAEA, "Safety Reports Series N° 63, Release of Patients After Radionuclide therapy," Vienna, 2009.
- [5] International Atomic Energy Agency-IAEA, "Setting Authorized Limits for Radioactive Discharges: Practical Issues to Consider," Vienna, 2010.
- [6] R. Barquero, F. Basurto, C. Núñez, and R. Esteban, "Liquid discharges from patients undergoing ^{131}I treatments," *J. Environ. Radioact.*, vol. 99, no. 10, pp. 1530-1534. Oct. 2008.
- [7] Ministerio de Minas y Energía, *Resolución 4 1178 "Por la cual se modifica la Resolución 18 0005."* Colombia, 2016.
- [8] Ministerio de Minas y Energía, *Resolución número 18 0005, Reglamento para la gestión de los desechos radiactivos.* Colombia, 2010, pp. 1-84.
- [9] E. Krawczyk, F. Piñero-García, and M. a Ferro-García, "Discharges of nuclear medicine radioisotopes in Spanish hospitals," *J. Environ. Radioact.*, vol. 116, pp. 93-8, Mar. 2013.
- [10] P. S. Rose, R. L. Swanson, and J. K. Cochran, "Medically-derived ^{131}I in municipal sewage effluent," *Water Res.*, vol. 46, no. 17, pp. 5663-5671, 2012.
- [11] C. Tsabaris, D. L. Patiris, A. P. Karageorgis, G. Eleftheriou, V. P. Papadopoulos, D. Georgopoulos, E. Papathanassiou, and P. P. Povinec, "In situ radionuclide characterization of a submarine groundwater discharge site at Kalogria Bay, Stoupa, Greece," *J. Environ. Radioact.*, vol. 108, pp. 50-59, 2012.



- [12] R. Berndt and P. Mortreau, "Performance test of the Multi-Channel Analyzer MCA-527 for Nuclear Safeguards Applications," Report EUR 26165 EN, 2013.
- [13] M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, V. Chechev, N. Kuzmenko, and M. Galán, *Table of Radionuclides (Vol. 1 - A = 1 to 150)*. Pavillon de Breteuil, 2004.
- [14] Empresa de Acueducto y Alcantarillado de Bogotá -EAAB-, Requisitos mínimos para cajas de inspección externa para efluentes industriales. 2001, pp. 1-4.
- [15] International Organization for Standardization - ISO, "ISO 11929:2010 - Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the confidence interval) for measurements of ionizing radiation -- Fundamentals and application," 2010.
- [16] International Atomic Energy Agency - IAEA, "Clearance of materials resulting from the use of radionuclides in medicine, industry and research - TECDOC 1000," Vienna, 1998.

Implementación del laboratorio de termocronología de baja temperatura: Intercomparación del Servicio Geológico Colombiano - Universidad Grenoble Alpes

Implementation of the low-temperature thermochronology laboratory: Intercomparison of the Colombian Geological Survey-Grenoble Alpes University

S. Amaya^{1,a)}, C. Urueña¹, M.L.Peña¹, L. Rayo¹; M. Bernet²

¹Servicio Geológico Colombiano, Bogotá, Dirección Asuntos Nucleares, Carrera 50 No. 26-20, Bogotá, D.C., Colombia

²Institut des Sciences de la Terre, Université de Grenoble-Alpes, Grenoble, France

Autor para correspondencia: ^{a)}samaya@sgc.gov.co

Resumen

Este artículo contiene una descripción histórica del proceso de implementación del Laboratorio de Termocronología de baja temperatura en el Servicio Geológico Colombiano; el cual está enfocado en datación termocronológica por el método de huellas de fisión en apatitos y circones. En este trabajo se describe la metodología aplicada, los resultados del proceso de intercalibración con el Laboratorio ISTerre de la Universidad Joseph Fourier e intercomparación interna de los analistas del Laboratorio del SGC, así como los ensayos de viabilidad y condiciones de irradiación para análisis de huellas de fisión Reactor Nuclear IAN-R1, con el fin de dar a conocer a la comunidad científica las capacidades técnicas del laboratorio y la confiabilidad de los resultados obtenidos.

Palabras clave: Apatitos, Circones, Colombia, Datación, Huellas de fisión, Termocronología.

Abstract

This paper presents a historical description of the implementation process of the Low Temperature Thermochronology laboratory at the Colombian Geological Survey. The laboratory is focused on thermochronological dating of apatites and zircons with the fission track method. Here we explain the applied methodology, the results of the inter-calibration process performed in collaboration with the fission-track laboratory at ISTerre Joseph Fourier University and the internal inter-comparison of the SGC laboratory analysts. Furthermore, a viability study and irradiation conditions for fission track analysis in the nuclear reactor IAN-R1 is presented, in order to demonstrate the technical facilities, precision and reliability of the results obtained in the SGC laboratory to the scientific community.

Keywords: Apatites, Zircons, Colombia, Dating, Fission tracks, Thermochronology.

1. INTRODUCCIÓN

El análisis de huellas de fisión en apatitos y circones es una técnica analítica recientemente implementada en Colombia, fundamental en la reconstrucción de la historia termal de las rocas y minerales, que mediante su uso permite limitar un amplio rango de problemas geológicos incluyendo: estudios tectónicos, procedencia, depósitos minerales, evolución de cuencas de carbones e hidrocarburos, estratigrafía volcánica, evolución del paisaje, evolución espacial y temporal de los sistemas de fallas, etc. En el año 2009 se inició la implementación de esta técnica en el Servicio Geológico Colombiano (SGC) realizando ejercicios de intercalibración paralelamente con los laboratorios de la Universidad EAFIT de Medellín y con la Universidad Joseph Fourier (ahora la Universidad Grenoble Alpes) en Francia, logrando después del año 2012 producir información que soporta y hace parte de diferentes proyectos que se han ejecutado y actualmente se desarrollan en el SGC. Son varias las publicaciones nacionales realizadas a partir del 2011 (e.g. [1-7]) y en el segundo semestre del año 2016 se publicó el primer artículo internacional en la revista *Journal Volcanology and Geothermal Research* y dos más ya fueron sometidos a evaluación (e.g. Amaya et al., en revisión, *Lithos* [8]; Amaya et al., en revisión, *Tectonics* [9]).

Este documento presenta la historia de cómo se logró la implementación, adecuación de la infraestructura científica y tecnológica del laboratorio

de termocronología del SGC y los resultados obtenidos en ejercicios de intercalibración con la Universidad Joseph Fourier (Francia). Esta información es de interés porque permite mostrar la evolución y el nivel que se ha logrado alcanzar en el laboratorio de termocronología del SGC, dándolo a conocer a la comunidad científica colombiana especialmente en el área de geociencias.

2. ANTECEDENTES

La implementación del laboratorio de termocronología del Servicio Geológico Colombiano, requirió elaborar estudios para el diseño del laboratorio, de acuerdo a las etapas necesarias para realizar el análisis de manera autónoma y eficiente de las muestras. El área seleccionada está ubicada en el ala norte del Bloque A de la sede CAN del SGC, en el mismo edificio donde se encuentran las instalaciones del Reactor Nuclear IAN-RI.

Los expertos doctor Matthias Bernet de la Universidad Joseph Fourier de Grenoble (Francia), la doctora Gloria Toro de la Universidad EAFIT junto con personal del SGC evaluaron y dirigieron la adecuación física del laboratorio de huellas de fisión, la realización del diseño y elaboración de planos. Las obras de adecuación del laboratorio se terminaron en primer semestre de 2012 y actualmente cuenta con la infraestructura física y tecnológica finalizada (Figura 1).

Figura 1. Panorámica del laboratorio de Huellas de Fisión, de izquierda a derecha: zona de pulido, ataque químico y Separador Magnético Frantz



La distribución de las áreas se diseñó buscando tener un proceso secuencial del montaje de las muestras. El laboratorio cuenta con área de separación y almacén de muestras, es el lugar donde se realiza la separación por densidad de minerales. La separación magnética mediante el separador de susceptibilidad magnética Frantz®, se hace sobre un mesón reforzado apto para soportar el peso y las vibraciones del equipo. En el área de montaje se seleccionan los apatitos y circones fijándolos en resina epóxica y teflón respectivamente. Para hacer estos montajes se cuenta con un estéreo microscopio Olympus SZ7X adaptado a un sistema de luz LED, una plancha caliente Cimarec de 26.7 x 26.7 cm y otros insumos.

Para el proceso de pulido de los montajes se cuenta con una pulidora con cabezal automático marca MEKTON (Forcipol 1V/Forcimat), con suministro de agua y aire comprimido. Un baño ultrasonido ELMA E30 para limpieza de los montajes y un microscopio petrográfico NIKON Labophot-Pol con sistema de luz reflejada para realizar el control de calidad del proceso.

La zona de ataque químico de los apatitos y circones cuenta con una cabina extractora de vapores y gases. Mediante el ataque se revelan las huellas de fisión espontáneas tanto de apatitos como de circones. La cabina extractora es necesaria por razones de seguridad debido a la naturaleza de los reactivos químicos utilizados en estos procesos. En el interior de la cabina se ubican el horno ESCO OFA, el baño termostataado LAUDA E-100 y fuera de la cabina se ubica la balanza electrónica.

En el área de conteo y análisis de huellas de fisión se tienen dos Microscopios Olympus BX51-P con accesorios, acoplados a la platina motorizada Kinetek y al sistema de conteo de huellas de fisión FTStage, controlados por un computador (Figura 2).

Adicionalmente, el SGC cuenta con el Reactor Nuclear IAN-R1, esta instalación tipo TRIGA (*Training, Research, Isotopes, General Atomics*) creada para la investigación y el entrenamiento en técnicas nucleares, única en el país, tiene dentro de sus posibles usos la irradiación de materiales geológicos tanto

para análisis de activación neutrónica como para datación por huellas de fisión. Por esta razón, durante los años 2010 y 2012 se realizaron ensayos con el fin de analizar la viabilidad y aportar información para la determinación de las condiciones de irradiación de muestras geológicas para datación con el método de huellas de fisión. Para ello se realizaron irradiaciones de monitores de fluencia (metálicos y vidrios dosimétricos) y muestras estándares de la toba de *Fish Canyon*.

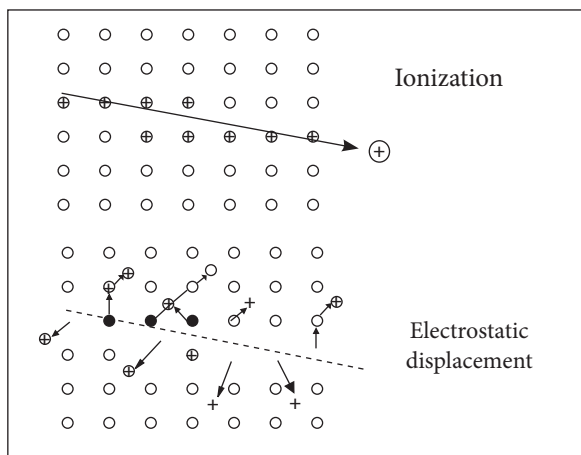
Figura 2. Sistema FT Stage para el conteo de huellas de fisión del Servicio Geológico Colombiano



3. DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO

El método analítico del detector externo en huellas de fisión en apatitos y circones (termocronómetros de baja temperatura), se basa en el principio de fisión espontánea del ^{238}U . El Uranio es un elemento que ingresa con facilidad en la estructura cristalina de apatitos, circones, titanita, entre otros minerales; en concentraciones que varían desde 50 a ~1000 ppm. La fisión espontánea consiste en la división del ^{238}U en dos mitades, por ionización y desplazamiento electrostático (Figura 3), moviéndose independientemente a grandes velocidades, deteniéndose solo tras causar grandes daños a las estructuras que se encuentran en su trayectoria [10].

Figura 3. Se muestra cómo en una red cristalina se produce ionización y desplazamiento electrostático como producto de la fisión espontánea del ^{238}U . Tomado de Fleischer et al. [10]



El daño en la estructura se registra en forma de trayectorias llamadas huellas de fisión ([10]; Figura 4), dichas huellas se cuentan usando un microscopio óptico después de haber atacado químicamente la superficie, previamente pulida (Figura 5.)

Figura 4. Daño en la estructura cristalina o huella de fisión ocasionado por la fisión espontánea del ^{238}U . Las huellas de fisión del ^{238}U . Tomado de Fleischer et al. [10]

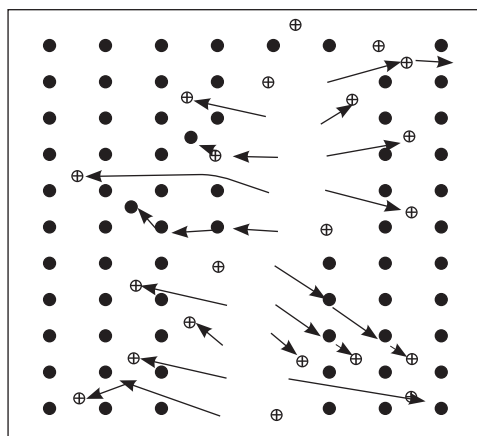
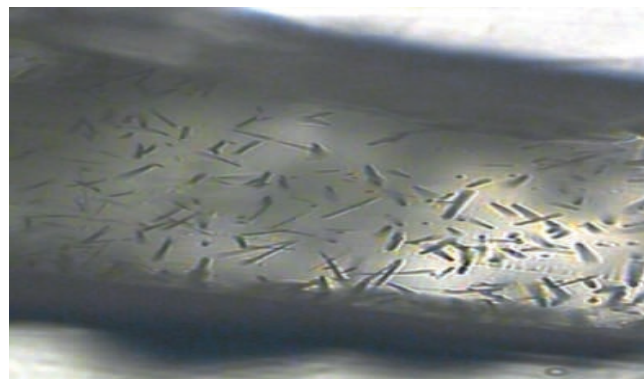


Figura 5. Huellas de fisión en circón. Las huellas están orientadas principalmente al azar. Foto tomada en el laboratorio de termocronología del Servicio Geológico Colombiano.



La cantidad de U (total) se determina por la densidad de huellas espontáneas que hay en un cristal y mediante el recuento de un segundo grupo de huellas creadas por fisión inducida de los átomos de ^{235}U , provocada artificialmente en un reactor nuclear.

Conociendo la tasa de fisión de fisión del ^{238}U ($t_{1/2}$ del $^{238}\text{U} \approx 8,2 \times 10^{15}$, años, [11]) se llega a una fecha al comparar el número de huellas producidas espontáneamente con la cantidad de ^{238}U de la muestra.

En principio, el cálculo de la edad por huellas de fisión se basa en la determinación del número de huellas espontáneas y la determinación del número de átomos de ^{238}U por unidad de volumen en la muestra [12]. La irradiación de las muestras con un flujo de neutrones termalizado, induce la fisión de ^{235}U y genera huellas inducidas; el número de huellas inducidas indica la abundancia de ^{235}U y, como la abundancia relativa de isótopos de uranio es relativamente constante en la naturaleza, a partir de la relación $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ se puede estimar la abundancia de ^{238}U [12, 13]. En conclusión, el conteo del número de huellas inducidas permite estimar la concentración de uranio o padre en el cristal y, en el conteo del número de huellas espontáneas se estima la concentración del producto hijo en el cristal [14].

De acuerdo con lo anterior, la ecuación fundamental de edad es la siguiente:

$$t = \frac{1}{\lambda_D} \text{Ln} \left[\left(\frac{\lambda_D}{\lambda_f} \right) \left(\frac{\rho_s}{\rho_i} \right) I \varphi \sigma + 1 \right] \quad (1)$$

donde λ_D es la constante de decaimiento radiactivo del ^{238}U ; λ_f es la constante de decaimiento por fisión del ^{238}U ; φ es el flujo de neutrones termalizado; I es la razón isotópica $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$; σ es la tasa de fisión inducida de átomos de ^{235}U debida al flujo de neutrones y ρ_s/ρ_i es la relación entre la cantidad de huellas fósiles e inducidas en la irradiación, respectivamente. Los valores constantes de λ_D ($1,55125 \times 10^{-10} \text{ año}^{-1}$), I ($7,2527 \times 10^{-3}$) y σ ($580,2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$) son aceptados ampliamente, sin embargo se requiere evaluar las densidades de huellas (ρ_s y ρ_i), la constante de decaimiento por fisión del ^{238}U (λ_f) y la fluencia de neutrones termalizados (φ) para determinar la edad [15].

Para solucionar los problemas para la determinación de la fluencia absoluta de la irradiación y de la definición de la constante de fisión del ^{238}U [15], formularon el método del detector externo. Este método de medición relativa, emplea muestras con edades estándares y monitores de fluencia (vidrios dopados con U) para calibrar la fluencia neutrónica, esta relación es conocida como factor Zeta (ζ) [12]. El monitor de fluencia o vidrio dosimétrico provee una medida relativa de la fluencia neutrónica y es el enlace con la edad estándar en la ecuación de la edad. El factor de calibración zeta (ζ) reemplaza la constante de decaimiento por fisión del ^{238}U (λ_f), la razón isotópica $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (I) y la tasa de fisión inducida de átomos de ^{235}U debida al flujo de neutrones (σ), por medio de la relación:

$$\zeta = \frac{\varphi \sigma I}{\lambda_f} \quad (2)$$

En la práctica el factor ζ es evaluado por análisis repetidos de una serie de edades estándares, se recomiendan al menos dos montajes por cada fase mineral y que hayan sido incluidos en diferentes irradiaciones. Se utiliza la siguiente ecuación para obtener ζ :

$$\zeta = \frac{e^{(\lambda_D t_{std})} - 1}{\lambda_D \left(\frac{\rho_s}{\rho_i} \right)_{(std)} \rho_d} \quad (3)$$

donde, λ_D es la constante de decaimiento radiactivo del ^{238}U ; t_{std} es la edad del estándar (determinada por otro método como K/Ar o $^{39}\text{Ar}-4^0\text{Ar}$); $(\rho_s/\rho_i)_{std}$ es la

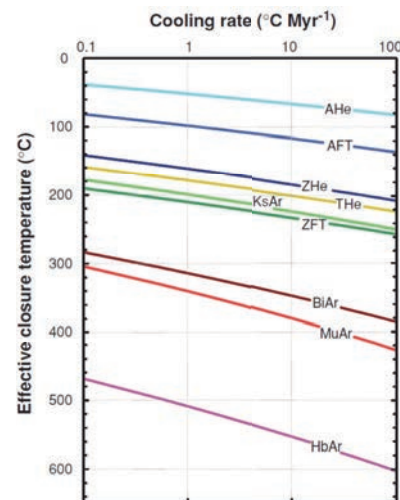
razón entre las densidades de huellas fósiles e inducidas en el estándar, respectivamente; y ρ_d es la densidad de huellas inducidas por un vidrio dosimétrico (vidrio con un contenido conocido de U) sobre un detector externo (mica) durante la irradiación del estándar.

Por tanto la ecuación de la edad recomendada por [16] para la datación por huellas de fisión, al sustituir el factor ζ en la ecuación inicial, es:

$$t = \frac{1}{\lambda_D} \text{Ln} \left[1 + \lambda_D \zeta \left(\frac{\rho_s}{\rho_i} \right) \rho_d \right] \quad (4)$$

El reloj se pone a cero cuando el mineral o cristal alcanza la temperatura de cierre que para el circón está en un rango de 180° a 260° centígrados y el apatito entre 80° y 120° centígrados (Figura 6). La temperatura de cierre se refiere a la temperatura a la cual el sistema no tiene más pérdidas de los productos (Isótopos hijos o huellas de fisión) durante el enfriamiento, esta depende de varios factores que afectan según sea el sistema termocronométrico. Los sistemas de huellas de fisión en circones y apatitos (ZFT, AFT) se ven afectados por la velocidad de enfriamiento ([10, 17]; Figura 6); la composición química afecta a las huellas de fisión en apatitos (AFT) y el daño por radiación a las huellas de fisión en circones (ZFT) [12].

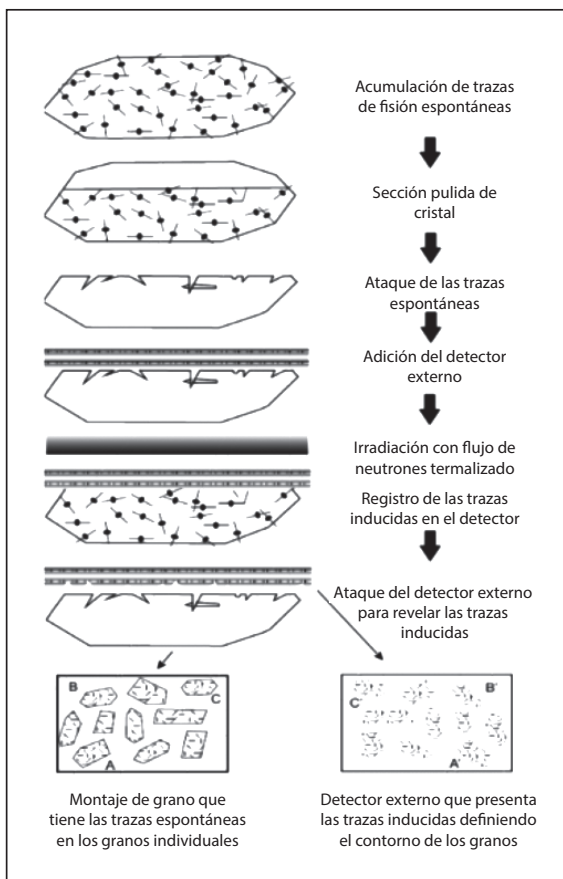
Figura 6. Se muestra la relación de la temperatura de cierre vs velocidad de enfriamiento para los diferentes sistemas termocronométricos. Tomado de [17]



En el Laboratorio de Termocronología del SGC se aplica el método del detector externo (Figura 7), en

el cual las huellas espontáneas son contadas en un área seleccionada del mineral después ser atacado químicamente, mientras las huellas inducidas son contadas en la misma área de un detector externo (mica) con bajo contenido de uranio, que es adicionado a la muestra antes de la irradiación y después del enfriamiento radiactivo se ataca químicamente. De este modo, las huellas espontáneas e inducidas son contadas en la misma superficie plana de cada cristal y la distribución heterogénea de uranio dentro y entre los cristales es despreciable [15].

Figura 7. Esquema del procedimiento que se sigue con el método del detector externo.
Tomado de [14].



4. RESULTADOS

Intercalibración Laboratorio ISTERre de la Universidad Joseph Fourier e intercomparación interna de los analistas del Laboratorio del SGC.

Los ejercicios de intercalibración realizados durante los años 2010 y 2011 consistieron en realizar el conteo de huellas de fisión en muestras estándares para obtener valores de fluencia y el factor Zeta (ζ) de diferentes irradiaciones, por parte de varios analistas en los laboratorios de huellas de fisión de las universidades EAFIT, Joseph Fourier y en el SGC ([1]; [18]). Posteriormente nuevos analistas en el SGC realizaron el ejercicio de conteo y obtención del factor Zeta (ζ), los valores obtenidos son comparados entre sí y evaluados con respecto a los resultados de la intercalibración con el Laboratorio del ISTERre de la Universidad de Joseph Fourier.

Un ejercicio de intercomparación fue realizado por dos analistas en los Laboratorios del Servicio Geológico Colombiano y la Universidad de Grenoble – Alpes de Francia, con el objetivo de determinar los valores de fluencia de cinco (5) irradiaciones realizadas en el reactor de Múnich (Tabla 1), a partir de los vidrios dosimétricos de referencia (CN1, CN2, CN5, IRMM-540R, IRMM-541). En la figura 8 se puede ver que los valores de fluencia obtenidas en los dos laboratorios tienen un factor de correlación $R^2 = 0.9977$, lo cual muestra el nivel alcanzado por los analistas del Servicio Geológico Colombiano en la técnica de huellas de fisión.

Para la determinación del factor Zeta (ζ), es necesario realizar inicialmente el conteo de huellas inducidas en el vidrio dosimétrico sobre el detector externo, a fin de determinar el término pd , que representa la fluencia o capacidad de observación del analista. El parámetro de fluencia varía para cada analista y se da en respuesta directa del flujo de neutrones termalizados (ϕ) con el que fue irradiado el grupo de muestras y el contenido de Uranio en el vidrio dosimétrico de referencia (CN1, CN2, CN5, IRMM-540R, IRMM-541).

Los valores de zeta para apatitos y circones obtenidos en diferentes irradiaciones y estándares por los analistas en el laboratorio de SGC se relacionan en las Tablas 2 y 3; las Figuras 9 y 10 muestran el valor promedio de zeta de los analistas con respecto a la referencia de intercalibración, así mismo se incluyen los valores reportados por otros autores ([13, 19]) de acuerdo al vidrio dosimétrico usado, los cuales representan el rango entre el cual es aceptado el valor de zeta para la ejecución de análisis de huellas de fisión.

En el caso de apatitos (Figura 9) el valor de zeta esperado de acuerdo al vidrio de referencia usado en el laboratorio del SGC es aproximadamente a 300; para circones (Figura 10) el valor esperado es cercano a 150 y menor a 200.

Desde su implementación, el Laboratorio de Termocronología del SGC ha participado evaluando la evolución térmica de carbones en la ejecución de proyectos como: Gas Asociado a los Carbones de la Formación Guaduas en el Sinclinal de Úmbita, Boyacá; Gas Asociado a los Carbones de la Formación Umir en el Sinclinal de Andes, en la Cuenca del Valle Medio del Magdalena; Gas Asociado a los Carbones de la Formación Umir en el Sinclinal de Armas, en la Cuenca del Valle Medio del Magdalena, el cual ha contribuido a que en Colombia se haya enfocado a la exploración de hidrocarburos no convencionales hacia el Gas Asociado a Carbones (CBM, tomado de las siglas en inglés Coal Bed Methane), como importantes

objetivos en las cuencas carboníferas en el territorio colombiano.

Figura 8. Factor de correlación R2 ejercicio de inter-comparación Laboratorios de termocronología SGC –Universidad Grenoble Alpes

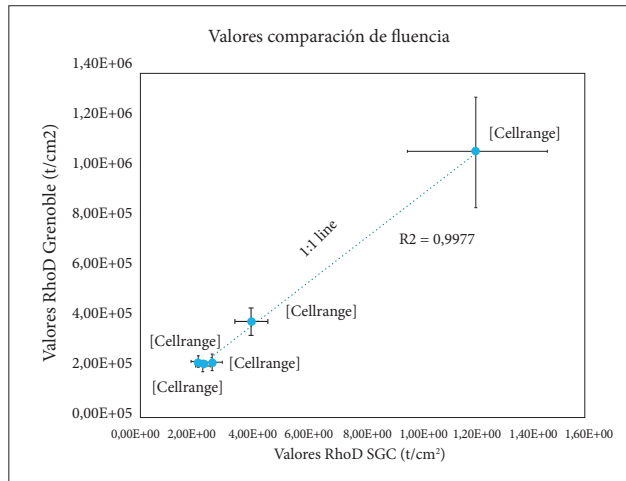


Tabla 1. Valores de fluencia a partir de vidrios dosimétricos de referencia en el ejercicio de intercomparación laboratorios SGC – Universidad Grenoble Alpes. Comparación valores de fluencia SGC – Universidad Grenoble-Alpes

| | SGC | | Universidad Grenoble Alpes | |
|-------------|------------------------|------------------------|----------------------------|------------------------|
| | Rhod | 2 2SE Rhod | Rhod | 2 SE Rhod |
| Irr 18-2012 | 2,35 x 10 ⁵ | 2,11 x 10 ⁴ | 2,10 x 10 ⁵ | 2,52 x 10 ⁴ |
| Irr 16-2013 | 4,09 x 10 ⁵ | 5,27 x 10 ⁴ | 3,87 x 10 ⁵ | 5,57 x 10 ⁴ |
| Irr 14-2013 | 1,22 x 10 ⁶ | 2,50 x 10 ⁵ | 1,08 x 10 ⁶ | 2,20 x 10 ⁵ |
| Irr 1-2010 | 2,72 x 10 ⁵ | 3,14 x 10 ⁴ | 2,23 x 10 ⁵ | 3,33 x 10 ⁴ |
| Irr 8-2012 | 2,24 x 10 ⁵ | 2,59 x 10 ⁴ | 2,23 x 10 ⁵ | 2,19 x 10 ⁴ |



Tabla 2. Factor Zeta para apatitos (Media y 2SE: desviación estándar), determinado en cada estándar de la respectiva irradiación, comparativo para 5 analistas, valores de referencia de intercalibración y valor promedio.

| Analista | Ref. intercalibración | | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | |
|---------------|-----------------------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|
| | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE |
| Muestra | Ref. intercalibración | | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | |
| DUR-3_3-2010 | 338,02 | 28,2 | | | | | | | | | | |
| DUR-1_7-2011 | | | | | 257,23 | 32,5 | 240,54 | 19,5 | 258,83 | 27,6 | 314,76 | 27,8 |
| DUR-2_7-2011 | | | | | 215,18 | 33,5 | 248,57 | 22,7 | 230,34 | 25,2 | | |
| FCT-3_7-2011 | | | | | 280,18 | 44 | 252,93 | 36,2 | 248,65 | 44,5 | 263,24 | 42,1 |
| FCT-4_7-2011 | 241,57 | 37 | | | 226,52 | 38,2 | 238,01 | 33,9 | 309,59 | 37,9 | 286,36 | 45 |
| FCT_8-2012 | | | | | | | | | 280,31 | 19,8 | | |
| DUR-1_13-2012 | | | 249,34 | 46,4 | 192,04 | 20,2 | 290,09 | 30,4 | | | | |
| DUR-A_8-2013 | | | 242,74 | 45,6 | 270,45 | 18,8 | | | | | | |
| DUR-B_8-2013 | | | 216,22 | 41,8 | 285,62 | 22 | | | | | | |
| DUR-E_14-2013 | | | 343,65 | 33,5 | | | | | 233,47 | 28,1 | | |
| FCT-C_14-2013 | | | 214,37 | 15,6 | | | | | 220,43 | 23,5 | | |
| DUR-1_15-2013 | 303,53 | 9,9 | 203,69 | 45,6 | 315,13 | 24 | | | 264,5 | 15,4 | | |
| DUR-2_15-2013 | | | 210,2 | 30,6 | | | | | 248,32 | 25,7 | | |
| DUR-C_10-2014 | | | 212,09 | 30,7 | 324,97 | 26 | | | | | | |
| DUR-E_9-2015 | | | 238,83 | 22,6 | 325,73 | 20,7 | | | | | | |
| PROMEDIO | 294,37 | 25,0 | 236,79 | 34,7 | 304,38 | 22,3 | 254,03 | 28,5 | 254,94 | 27,5 | 288,12 | 38,3 |

Tabla 3. Factor Zeta para circones (Media y 2SE: desviación estándar), determinado en cada estándar de la respectiva irradiación, comparativo para 6 analistas, valores de referencia de intercalibración y valor promedio.

| Analista | Ref. intercalibración | | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | |
|---------------|-----------------------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|--------|------|
| | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE |
| Muestra | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE | Media | 2SE |
| BLK-1_1-2010 | 182,18 | 18,1 | 114,17 | 10,3 | 171,63 | 32,8 | 134,36 | 16,3 | | | | | | |
| FCT-1_1-2010 | | | 115,34 | 11,1 | 179,58 | 21,5 | 197,08 | 12,6 | | | | | | |
| FCT-A_8-2012 | 199,81 | 16,4 | 181,49 | 15,4 | 247,65 | 18,5 | | | 146,58 | 17,3 | 280,31 | 20,4 | | |
| FCT-2_8-2012 | | | 200,36 | 14,3 | 216,73 | 16,1 | 228,03 | 12,4 | 172,33 | 12,9 | 150,64 | 10,7 | | |
| FCT-1_18-2012 | | | | | | | 206,78 | 13,8 | | | 157,57 | 18,9 | 198,13 | 12,7 |
| BUL-A_18-2012 | | | | | | | 154,86 | 10,8 | | | 156,72 | 18,2 | 212,05 | 23,4 |
| FCT-3_18-2012 | | | | | | | | | | | 178,18 | 19,3 | 183,03 | 11,3 |
| PROMEDIO | 191,00 | 17,3 | 152,84 | 12,8 | 203,90 | 22,2 | 184,22 | 13,2 | 159,46 | 15,1 | 184,68 | 17,5 | 197,74 | 15,8 |

Figura 9. Resultados del cálculo del factor Zeta promedio a partir del conteo de muestras estándares de apatitos para diferentes irradiaciones para 5 analistas en el laboratorio del SGC y comparación con el valor de referencia del ejercicio de intercalibración y los valores obtenidos en estudios de estandarización de acuerdo al vidrio dosimétrico empleado

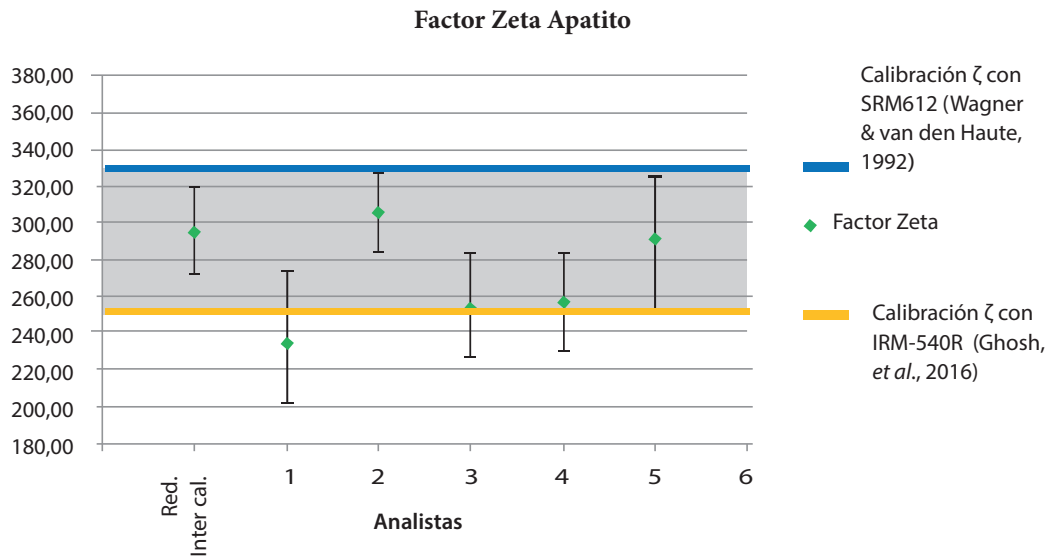
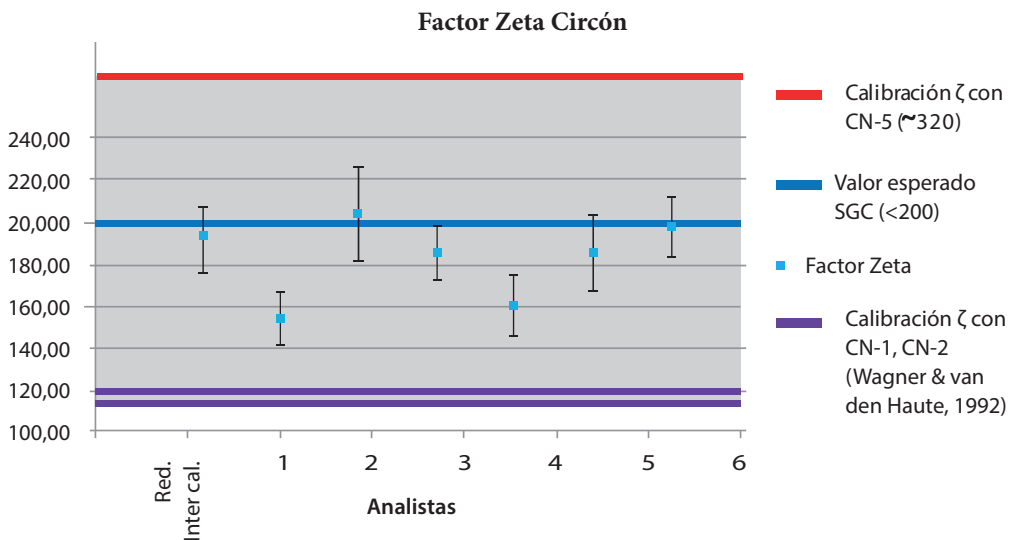


Figura 10. Resultados del cálculo del factor Zeta promedio a partir del conteo de muestras estándares de circones para diferentes irradiaciones para 6 analistas en el laboratorio del SGC y comparación con el valor de referencia del ejercicio de intercalibración y los valores obtenidos en estudios de estandarización de acuerdo al vidrio dosimétrico empleado y valor esperado



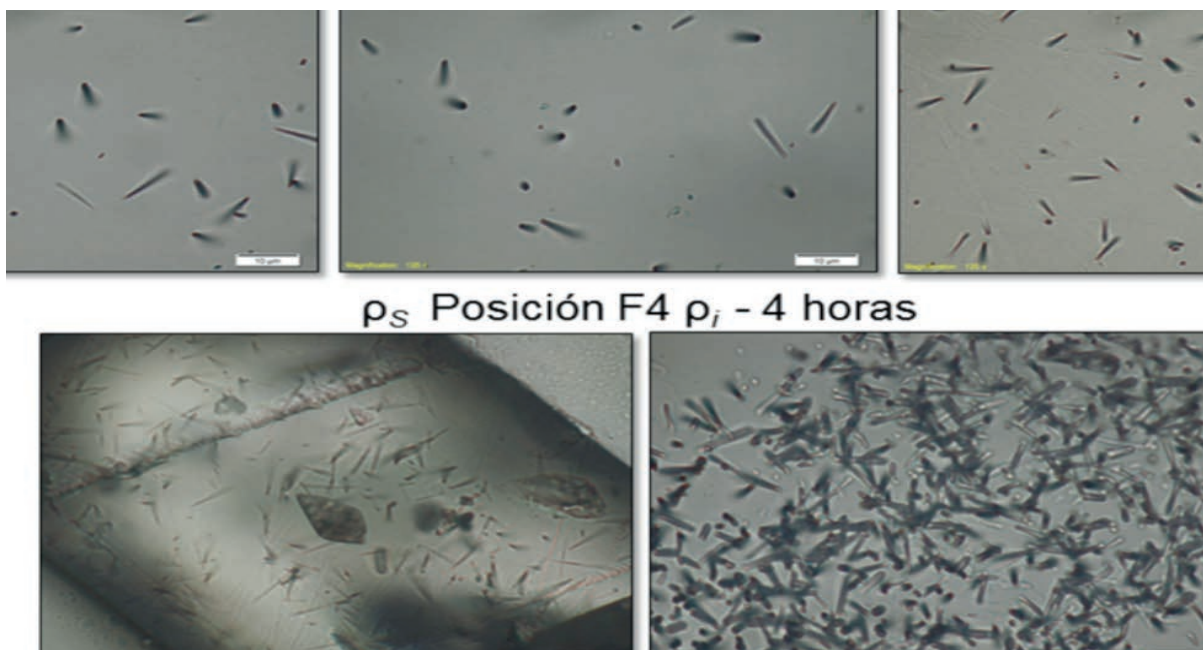
Ensayos de viabilidad y condiciones de irradiación para análisis de huellas de fisión Reactor Nuclear IAN-R1.

Dado que las condiciones de flujo neutrónico y las posiciones de irradiación no son constantes en todas las instalaciones nucleares, es necesario caracterizar detalladamente cada reactor para identificar la posición ideal para irradiar muestras para análisis por huellas de fisión. Para escoger las instalaciones nucleares para estos análisis, se consideran como factores fundamentales [20]: que las fluencias de neutrones térmicos requeridas oscilen entre 10^{14} y 10^{16} cm^{-2} ; y que la termalización del flujo neutrónico sea adecuada para hacer despreciable la contribución de las huellas de fisión inducidas por el ^{232}Th en la densidad de huellas, dado que la relación Th/U exhibe variaciones significativas entre muestras en la naturaleza.

Teniendo en cuenta lo anterior, con el objetivo de evaluar las condiciones necesarias para la irradiación de muestras para análisis de huellas de fisión, en coordinación con los integrantes del Laboratorio de Activación Neutrónica y del Reactor Nuclear del SGC, se llegó a la conclusión de la pertinencia de medir el flujo

de neutrones térmicos e intermedios en las posiciones F1 y F4 y en la vecindad de la fila G del Reactor Nuclear IAN-R1. Se realizaron mediciones de la actividad de monitores metálicos y vidrios dosimétricos irradiados en el reactor, mediante la técnica de espectrometría de rayos gamma, usando un detector de germanio híper-puro GeHp Camberra CG-1020 acoplado al módulo Inspector y el software Genie-2000 V. 3.2 del Laboratorio de Activación Neutrónica del SGC. Los montajes consistieron en monitores de oro, desnudos y cubiertos con cadmio, vidrios dosimétricos y muestras estándares de la toba de Fish Canyon para determinación de fluencias y factor Zeta. Los resultados obtenidos permitieron concluir que el flujo térmico, en las posiciones estudiadas, son del orden de 10^{10} a 10^{11} $\text{n/cm}^2\text{s}$ y razones de cadmio del orden de las decenas. Las mediciones de densidad de huellas (ρ_d) inducidas en las micas de los vidrios dosimétricos (Figura 11), permitieron observar que las posiciones en los alrededores de la fila G del reactor presenta una mayor densidad de huellas que las posiciones F, sugiriendo una mayor fluencia en esta irradiación, consistente con las mediciones de flujo realizadas con los monitores metálicos y la duración de la irradiación.

Figura 11. Microfotografías tomadas en luz polarizada plana transmitida y reflejada de las micas (detectores externos) adheridas a los monitores de flujo neutrónico IRMM-541, en las diferentes posiciones del Reactor Nuclear IAN-R1. En la parte baja cristal de circón del Fish Canyon Tuff (estándar) con las huellas espontáneas (a la derecha) y su respectiva imagen especular en la mica con las huellas inducidas en la irradiación en la posición G3-G4 (izquierda), nótese la gran densidad de huellas en esta muestra. La barra al extremo derecho indica 10 micras



5. CONCLUSIONES

Los resultados obtenidos en la evaluación de la evolución térmica de los carbones en los diferentes proyectos ejecutados por el SGC enfocados a la exploración de los hidrocarburos no convencionales hacia los CBM, sumado a los resultados de la intercalibración con el Laboratorio del ISTerre de la Universidad de Grenoble – Alpes- Francia, de gran reputación y amplia experiencia a nivel internacional, demuestran que el Laboratorio de Termocronología del SGC cuenta con las capacidades técnicas, humanas y métodos estandarizados para desarrollar los análisis de huellas de fisión en apatitos y circones. Aunque el Zeta (ζ), es un factor dinámico que en la práctica varía a medida que los observadores llevan a cabo nuevos análisis, los resultados obtenidos sugieren que todos los analistas del Laboratorio del SGC se encuentran dentro del rango de variación aceptable.

Los valores obtenidos durante los experimentos de irradiación de monitores de fluencia son muy favorables, estos indican que se pueden lograr las condiciones requeridas para la irradiación de muestras en tiempo razonables del orden de pocas horas y bajo las condiciones de flujo neutrónico requeridas. Por lo tanto, se recomienda avanzar en estudios para la caracterización del flujo neutrónico del Reactor Nuclear.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al doctor Eduardo Posada del Centro Internacional de Física, Doctora Nidia Piragauta de Colciencias y al Doctor Armando Zamora de la Agencia Nacional de Hidrocarburos, quienes con su valiosa colaboración contribuyeron a que se lograra la implementación del Laboratorio de Termocronología del SGC.

REFERENCIAS

- [1] M. I. Marín et al, Intercalibración de los laboratorios de Huellas de Fisión, Universidad EAFIT-JOSEPH FOURIER-INGEOMINAS, XIII Congreso Colombiano de Geología y XIV Congreso Latinoamericano de Geología, Medellín, Colombia. 2011.
- [2] X. Bustos et al., Comparación de Superficies de Erosión en el Altiplano Antioqueño mediante Geomorfología Cuantitativa: Resultados preliminares. XIII Congreso Colombiano de Geología y XIV Congreso Latinoamericano de Geología, Medellín, Colombia. 2011.
- [3] M. L. Peña, J. Sandoval y Y. Cañón, Laboratorios e Instalaciones de Tecnologías Nucleares y Reactor Nuclear del Servicio Geológico Colombiano, 14th Colombian Geological Congress, Bogotá, Colombia. 2013.
- [4] L. Rayo et al., Resultados irradiaciones para análisis de huellas de fisión, reactor nuclear IAN-R1 del Servicio Geológico Colombiano, 14th Colombian Geological Congress, Bogotá, Colombia. 2013.
- [5] A. Piraquive et al., Syntectonic erosion and exhumation processes in the Western Cordillera of Colombia, evidence from a tectonic stacking zone alongside the Romeral Suture Zone. 14th Colombian Geological Congress, Bogotá, Colombia. 2013.
- [6] C. Urueña et al., Termocronología aplicada al estudio de evolución térmica en cuencas carboníferas (Sinclinal Umbita). XV Congreso Colombiano de Geología, Bucaramanga, Colombia. 2015a.
- [7] C. Urueña et al., Termocronología aplicada en la Exploración de Gas Metano Asociado al Carbón. X Congreso Nacional y V Internacional de Ciencia y Tecnología del Carbón y Combustibles Alternativos – CONICCA 2015, Medellín, Colombia. 2015b.
- [8] S. Amaya, C. Zuluaga and M. Bernet. Tectonic Evolution of the Northern Andes, Colombia: New Age Constrains on the Exhumation of the Santander Massif. Lithos, in review.
- [9] S. Amaya, C. Zuluaga and M. Bernet. Three phases of accelerated exhumation along the Bucaramanga fault in the Cepita area of the south-western Santander Massif, Colombia, Tectonics, in review.
- [10] R. L. Fleischer, P. B. Price and R. M. Walker, Nuclear Tracks in Solids. Principles and



- Applications. University of California Press, Berkeley, CA. 1975.
- [11] N. E. Holden, and D.C. Hofman, Spontaneous Fission Half-Lives for Ground-State Nuclides. *Pure Appl. Chem*, vol. 72, No. 8, pp. 1525-1562, © 2000 IUPAC. 2000.
- [12] R. Donelick, P. B. O'Sullivan, and R. Ketcham, Apatite Fission-Track Analysis: Reviews in *Mineralogy & Geochemistry*, v. 58, p. 49-94. 2005.
- [13] G. A. Wagner and P. van den Haute, *Fission-Track Dating*. Netherlands: Solid Earth Sciences Library, Kluwer. Academic Publishers. 1992.
- [14] K. Gallagher, R. Brown and C. Johnson, Fission track analysis and its applications to geological problems. *Annual Review Earth Planetary Sciences*, 26: 519-72. 1998
- [15] A.J Hurford, and P. F. Green, A user's guide to fission track dating calibration. *Earth Planetary Sciences Letters*, 59: 343-354. 1982.
- [16] A.J. Hurford, "Standardization of fission track dating calibration: Recommendation by the Fission Track Working Group of Subcommission on Geochronology," *Chemical Geology (Isotope Geoscience Section)*, vol. 80: 171 -178. 1990.
- [17] P. W. Reiners and M. T. Brandon, "Using thermochronology to understand orogenic erosion," *Annu. Rev. Earth. Planet. Sci.*, 34, 419 – 466. 2006.
- [18] M. I. Marín et al., Calibración interlaboratorios de huellas de fisión. Universidad EAFIT - Servicio Geológico Colombiano - Universidad Joseph Fourier, 14th Colombian Geological Congress, Bogotá, Colombia. 2013.
- [19] A.K Ghosh, V. K. Sharma and R. K. Singh, Uplift History of Syenite Rocks of the Sushina Hill, Tamar Porapahar Shear Zone (TPSZ), Purulia: Constraints from Fission-track Ages of Two Cogenetic Minerals. *Journal of Geology & Geophysics* 5: 245, doi:10.4172/2381-8719.1000245. 2016.
- [20] M. L. Balestrieri, G. Bigazzi and M. Oddone, "The thermal column: a new irradiation position for fission-track dating in the University of Pavia Triga Mark II nuclear reactor," *J. Radioanal. Nucl. Chem, Letters* 213 (2):99-108. 1996

Implementación del Método para la Determinación de Isótopos Estables de Carbono ($\delta^{13}\text{C}$) en Carbones Mediante Espectrometría de Masas de Relaciones Isotópicas (IRMS)

Implementation of the Method for the Determination of Stable Isotopes of Carbon ($\delta^{13}\text{C}$) in Coals by Isotope Ratio Mass Spectrometry (IRMS)

M. Moreno^{1, a)}, M. Peña^{1, b)} y R. Álvarez²

¹Servicio Geológico Colombiano, Bogotá, Dirección de Asuntos Nucleares, Carrera 50 No. 26-20 Bogotá, D.C. Colombia

²Estación Biológica Doñana, Laboratorio de Isótopos Estables LIE, Avd. Américo Vespucio s/n 41001 Sevilla España

Autores para correspondencia: ^{a)}mmorenof@sgc.gov.co, ^{b)}mlpena@sgc.gov.co

Resumen

Este artículo describe el procedimiento para la determinación de la relación isotópica de carbono ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) expresado en delta ($\delta^{13}\text{C}$) en el intervalo de -46.6 ‰ a +37.63 ‰ mediante un sistema compuesto por un analizador elemental, acoplado a un espectrómetro de masas de relaciones isotópicas (EA-IRMS por sus siglas en inglés) en el laboratorio de Isótopos Estables del Servicio Geológico Colombiano. Los estándares utilizados en el análisis fueron IAEA-LSVEC, USGS-43, NBS-19 y el USGS-41. Los resultados obtenidos de la implementación del método respecto a los parámetros evaluados, permitieron concluir que el método de EA-IRMS es apto para la determinación de $\delta^{13}\text{C}$ en el intervalo de trabajo establecido, razón por la cual, los resultados son confiables y comparables con los reportados por cualquier otro laboratorio, gracias a los criterios de aceptación establecidos previamente y al análisis estadístico realizado a cada uno de ellos.

Palabras clave: Espectrometría de Masa de Relaciones Isotópicas (IRMS), Isótopos Estables, Relación Isotópica.

Abstract

This paper describes the procedure for determining the isotopic ratio of carbon ($^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$) expressed in delta ($\delta^{13}\text{C}$) in the range -46.6 ‰ to +37.63‰ by system composed of an elemental analyzer coupled to a mass spectrometer of isotope ratios (EA-IRMS) in the stable solid isotopes laboratory at the Servicio Geológico Colombiano. The reference materials used in the analysis were IAEA-LSVEC, USGS-43, NBS-19 and USGS-41. The results allow us to conclude that the EA-IRMS is suitable for determination of $\delta^{13}\text{C}$ in coals as a matrix, in the range evaluated; in a reliable and comparable with any other other laboratories thanks to the acceptance criteria and the statistical analysis performed.

Keywords: Isotope Ratio Mass Spectrometry (IRMS), Stable Isotopes, Isotopic Relation.

1. INTRODUCCIÓN

El Servicio Geológico Colombiano cuenta con el Laboratorio de Isótopos Estables en Muestras Sólidas ubicado en la sede CAN en Bogotá. Desde el año 2013 se inició el proceso de implementación del laboratorio que consistió en las adecuaciones físicas, condiciones ambientales y la transferencia de conocimiento por parte de expertos internacionales en la técnica espectrometría de masas de relaciones isotópicas.

Los análisis realizados en este laboratorio permiten la determinación y caracterización de depósitos, procedencia y fluidez de minerales; permitiendo diferenciar unidades geológicas, definir ambientes de génesis de hidrocarburos, naturaleza de aguas y gases, entre otras. Adicionalmente, permite el análisis de abundancias isotópicas en muestras enriquecidas con isótopos estables, por lo tanto se convierte en una buena alternativa al uso de marcadores isotópicos para el seguimiento de la formación de minerales, paleotemperaturas e historia de las rocas [1]. El laboratorio cuenta con un sistema de espectrometría de masas que permite el análisis de relaciones isotópicas de los elementos ligeros: carbono ($\delta^{13}\text{C}$), nitrógeno ($\delta^{15}\text{N}$), oxígeno ($\delta^{18}\text{O}$), azufre ($\delta^{34}\text{S}$) e hidrógeno (δD) en muestras orgánicas e inorgánicas, sólidas como suelos, sedimentos, rocas y minerales con el fin de apoyar los estudios geológicos y de exploración de minerales.

Los isótopos estables son átomos no radiactivos de un elemento químico que tienen el mismo número de protones pero diferente número de neutrones y por lo tanto, diferente masa. Estos elementos se encuentran distribuidos por toda la Tierra en forma de diferentes moléculas, constituyendo unos excelentes trazadores naturales de los procesos fisicoquímicos que ocurren en la naturaleza [2].

Las variaciones en la abundancia isotópica o la forma en que los isótopos se distribuyen entre diferentes sustancias es producida por medio de procesos fisicoquímicos, incluyendo reacciones enzimáticas, proceso denominado como fraccionamiento isotópico. Específicamente, el fraccionamiento puede ser causado por reacciones de intercambio isotópico entre dos sustancias coexistentes que implican la redistribución de los isótopos de un elemento. Como resultado de este fraccionamiento isotópico es posible encontrar sustancias que varían ligeramente en la composición de sus isótopos estables y por lo tanto en su masa.

Estas pequeñas variaciones pueden ser medidas por Espectrometría de Masas de Relaciones Isotópicas [3].

Las principales aplicaciones del análisis de isótopos estables están centradas en estudios ecológicos (ciclos biogeoquímicos, cadenas tróficas, contaminantes, etc.). En paleontología, se utilizan como excelentes trazadores que permiten determinar las variaciones de C, S, N, H y O en las plantas, suelos y agua. Mediante variaciones en el fraccionamiento isotópico es posible interpretar cambios en alimentación, variaciones climáticas, entre otros; así como determinar biomarcadores para la detección de vida antigua al realizar el análisis en restos fosilizados.

Las relaciones isotópicas han sido utilizadas para la determinación de sustancias nutritivas a través de las diferentes especies de una comunidad biológica, por ejemplo el carbono en los animales depende de la ingesta de los mismos; se pueden determinar las dietas fósiles al tomar los isótopos de carbono y nitrógeno de los constituyentes fosilizados del colágeno. Al hacer el estudio isotópico se podrá conocer con qué tipo de plantas o animales basaba su dieta el organismo fosilizado [4]. Esta técnica también puede ser empleada en la determinación de cambio climático por medio de análisis isotópico de CO_2 atmosférico y terrestre.

Los isótopos estables de elementos ligeros como H, N, C, O y S son la columna vertebral de la geoquímica isotópica, ya que estos elementos están presentes en la mayoría de los procesos que ocurren en la tierra [5].

Debido a que la abundancia de los isótopos pesados es muy baja, es más fácil realizar medidas relativas que medir abundancias absolutas, por ello para las determinaciones isotópicas se emplea la notación δ (delta) que es definida por la EC 1:

$$\delta X_{\text{Muestra}}(\text{per mil}) = \frac{R_{\text{Muestra}} - R_{\text{Estándar}}}{R_{\text{Estándar}}} \times 1000 \text{ (I)} \quad (1)$$

Donde R_{Muestra} es la relación isotópica del isótopo pesado y ligero en la muestra y $R_{\text{Estándar}}$ es la misma relación en el estándar, δx representa δD , $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^{34}\text{S}$, $\delta^{13}\text{C}$ o $\delta^{15}\text{N}$ según sea el caso [1].

Este estudio presenta la implementación del método para la obtención de la relación isotópica de carbono ($\delta^{13}\text{C}$) en muestras de carbones por medio de la

técnica EA-IRMS mediante el uso de los estándares adquiridos directamente del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA) y estándares secundarios proporcionados por la Estación Biológica Doñana (EBD-CSIC, España).

2. DESCRIPCIÓN DEL MÉTODO

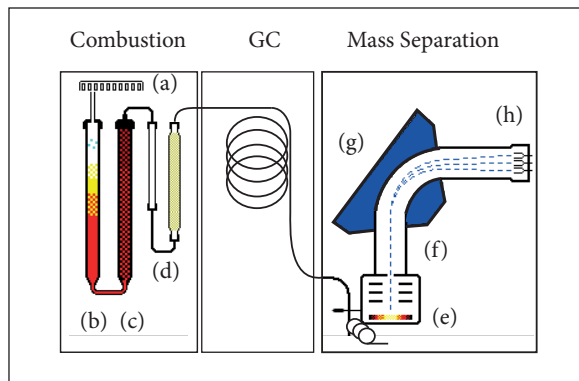
2.1. Principio del Método

En la espectrometría de Masas de Relaciones Isotópicas el análisis isotópico es realizado en forma de moléculas gaseosas del tipo CO₂, N₂, CO, SO₂ y H₂ las cuales son introducidas en un espectrómetro de masas de relaciones isotópicas mediante un flujo de helio como gas portador. Para llevar las moléculas que contienen los isótopos estables a estas especies, es necesario un proceso analítico previo en donde las muestras reaccionan a altas temperaturas y en presencia de catalizadores, con el fin de transformar la materia a analizar en las especies que son utilizadas como referencia [6].

La primera parte del proceso ocurre en un analizador elemental “Flash HT Plus”, el cual cuenta con dos hornos instalados para dos modos de operación. El primero de ellos es el modo de combustión en donde se determinan los isótopos de carbono, nitrógeno y azufre en las moléculas gaseosas de CO₂, N₂ y SO₂, respectivamente. El segundo modo de operación es por pirólisis que sirve para determinar los isótopos de hidrógeno y oxígeno. Los gases limpios producidos en los hornos de combustión y pirólisis pasan por una columna cromatográfica en donde son separados. El analizador elemental (Figura 1) es acoplado al espectrómetro de masas por medio de una unidad llamada Conflo IV, que regula la entrada de los gases producidos al espectrómetro de masas.

La detección en el espectrómetro de masas se da al entrar los gases por una válvula tipo aguja. Un filamento caliente genera un bombardeo de electrones que sirven como fuente de ionización de las moléculas de gas presentes [7]. Las moléculas ionizadas entran en un fuerte campo magnético producido por un electroimán el cual realiza la separación por masas.

Figura 1. Proceso para la determinación isotópica de carbono



(a) Automuestreador, (b) Columna de combustión, (c) Columna de reducción, (d) Trampa de agua, (e) Fuente iones, (f) tubo de vuelo, (g) Desviación magnética, (h) Detectores.

2.2. Materiales, insumos y equipos

Los equipos utilizados fueron: Microbalanza Sartorius® (Cubis MSE6.6S-000-DM). Sistema de espectrometría de masas compuesto por un Analizador Elemental Flash 2000, una Interfase Conflo IV y un Espectrómetro de masas de relación isotópica (IR-MS) Delta V Advantage Isotope ratio MS Thermo Fisher Scientific®. Los materiales utilizados como referencia se detallan en la Tabla 1.

Tabla 1. Estándares utilizados para la determinación de la linealidad de ¹³C/¹²C por δ¹³C (‰)

| Nombre | STD | δ ¹³ C (‰) |
|--------------------------|--------------|-----------------------|
| Lithium Carbonate | IAEA – LSVEC | -46,6 |
| Indian human hair powder | USGS – 43 | -21,28 |
| Limestone | NBS 19 | 1,95 |
| L-glutamic acid | USGS – 41 | 37,63 |

Para el pesaje de las muestras se utilizaron cápsulas de estaño (8 x 5 mm) volumen 157 μL y reactores de cuarzo utilizados para los análisis de C y N.

2.3. Implementación de la metodología para la determinación de la relación isotópica de carbono.

Las siguientes son las características del mensurando a cuantificar que definen el método y fueron empleadas para la implementación del mismo.

1. Mensurando: Relación isotópica de Carbono ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ por $\delta^{13}\text{C}$).
2. Técnica analítica: Espectrometría de masas de razones isotópicas (IRMS).
3. Parámetros de Implementación y criterios de aceptación:

Linealidad [8]: capacidad de un método de análisis, dentro de un determinado intervalo de medición de dar una respuesta o resultados instrumentales que sean proporcionales a la cantidad del analito que se habrá de determinar en la muestra de laboratorio.

Tabla 2. Criterios de aceptación para la determinación de la linealidad

| Criterio | Características |
|-----------------------------|--|
| Coefficiente de correlación | $r > 0,99$ H_0 : No significativo H_1 : Sí significativo |
| Pendiente | H_0 : $b=0$ H_1 : $b \neq 0$ Estadísticamente diferente de cero |
| Punto de corte | H_0 : $a = 0$ H_1 : $a \neq 0$ |
| Regresión | H_0 : No hay relación significativa entre X y Y. No hay regresión H_1 : Sí hay relación significativa entre X y Y. Sí hay regresión |
| Residuales | No debe presentarse una tendencia en la gráfica de los residuales Vs los niveles de la curva. |

Los criterios de aceptación utilizados se resumen en la Tabla 2. La linealidad se evaluó mediante la recta correspondiente a la ecuación $y = bx + a$, donde y corresponde a los valores reales de los estándares

utilizados y x a los valores obtenidos para los mismos estándares. Usando el análisis de la regresión y correlación por mínimos cuadrados para el intervalo de trabajo, el análisis de la gráfica y el tratamiento estadístico de los datos para cada uno de los parámetros evaluados. El intervalo de trabajo se detalla en la Tabla 1.

Exactitud: está compuesta por los parámetros que se relacionan en la figura 2.

Figura 2. Determinación de la exactitud



Veracidad: es la proximidad entre el promedio de un número infinito de réplicas de valores de medición y un valor de referencia o convencionalmente verdadero. La exactitud está relacionada de forma inversa con el error sistemático de medición, el cual puede ser estimado como un sesgo de medición.

La estimación del sesgo en los resultados de medición se obtuvo midiendo 10 veces el valor de seis materiales de referencia, en condiciones de repetibilidad o de precisión intermedia. La estimación del sesgo fue dada por diferencia entre el valor promedio de los valores de medición para un material y el valor convencionalmente verdadero de dicho material. Para la evaluación de la veracidad se realizaron las siguientes mediciones:

Tabla 3. Muestras utilizadas para la evaluación de la veracidad

| Estándar | $\delta^{13}\text{C}_{\text{‰VPDB}}$ |
|------------|--------------------------------------|
| USGS - 43 | -21,28 |
| IAEA - CH7 | -32,15 |
| LIE-CV | -22,19 |
| LIE-BB | -18,58 |
| LIE EEZ-20 | -12,26 |
| LIE PA 2 | -15,84 |

Precisión: es el grado de concordancia entre las indicaciones o valores de una magnitud medidos, obtenidos por mediciones replicadas sobre el mismo objeto o uno similar bajo condiciones específicas [9]. La precisión fue medida por el grado de dispersión de los resultados individuales con respecto a la media, y está expresada matemáticamente como la desviación estándar relativa (RSD) o Coeficiente de Variación (CV). Se evaluó a través de repetibilidad y reproducibilidad intermedia. Se realizaron 10 determinaciones de cada uno de las muestras, determinando el promedio, desviación estándar y coeficiente de variación.

Repetibilidad: Estudia la variabilidad del método efectuando una serie de mediciones sobre la misma muestra bajo las mismas condiciones. Para la evaluación de la repetibilidad se tomaron los ensayos realizados para la veracidad además los ensayos realizados a una muestra de papel de caña en el LIES y el LIE-EBDA.

Precisión intermedia: El objetivo del estudio de precisión intermedia es determinar la variabilidad del método efectuando una serie de análisis sobre la misma muestra, usando el mismo procedimiento, pero en un intervalo de tiempo mayor, posiblemente por diferentes analistas quienes pueden usar el equipo en forma diferente. Se evalúan los efectos causados al variar factores tales como el día, el analista, el instrumento, entre otros. La evaluación de la precisión intermedia se realizó con analistas diferentes en días distintos. Se evaluó la respuesta sobre la muestra de papel de caña [10].

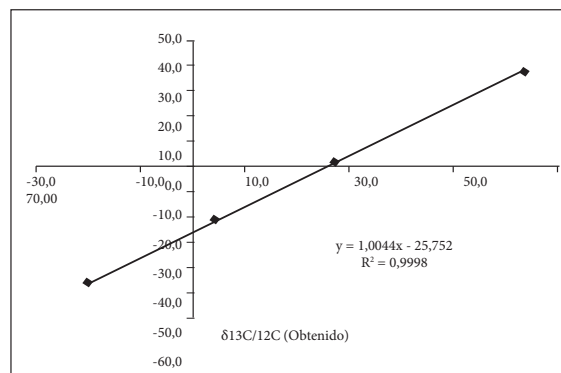
Reproducibilidad: La reproducibilidad fue evaluada por medio de los análisis sobre una misma muestra (papel de caña) en el Laboratorio de Isótopos Estables del Servicio Geológico Colombiano (LIES) y el Laboratorio de Isótopos Estables de la Estación Biológica Doñana (LIE-EBDA).

3. RESULTADOS Y ANÁLISIS

A continuación, se relacionan los resultados obtenidos para la implementación de la metodología basados en los criterios de aceptación establecidos previamente.

Linealidad: La figura 3 presenta los resultados obtenidos para la curva de calibración, con el fin de evaluar la linealidad de la relación isotópica de carbono en el intervalo - 46,6‰ hasta +37,63‰.

Figura 3. Gráfica de linealidad para determinación de carbono



Al realizar análisis de residuales se observa que no presentan ninguna tendencia, estos resultados se encuentran aleatorios lo cual indica que el modelo de regresión escogido ofrece un buen ajuste.

De acuerdo a los datos reportados en la Tabla 4 se considera que el método es lineal para el intervalo evaluado de relación isotópica de carbono. En cuanto al punto de corte, de acuerdo con los criterios de aceptación establecidos, se observa como este es estadísticamente diferente de cero, sin embargo en virtud de la naturaleza del mensurando correspondiente a una medición relativa, este criterio fue descartado como requisito para aceptación de la linealidad.

Tabla 4. Resultados para la linealidad de la relación isotópica de carbono

| Criterio | Hipótesis | Criterio de aceptación | Resultado | Conclusión |
|----------------------------|--|--|--|--|
| Coeficiente de correlación | - | > 0,99 | 1,00 | Cumple |
| | H ₀ : no significativo H ₁ : Sí significativo | t _{cal} > t _{crit} : se rechaza H ₀ | t _{cal} : 28141,09 t _{crit} : 2,23 | Se rechaza H ₀ r significativo |
| Pendiente | H ₀ : b=0 H ₁ : b ≠ 0 | t _{cal} > t _{crit} : se acepta H ₀ | t _{cal} : 210,93 t _{crit} : 2,23 | Se rechaza H ₀ ; b Estadísticamente diferente de cero. |
| | H ₀ : no hay relación significativa entre X y Y. H ₁ : Sí hay relación significativa entre X y Y. | F _{tab} > F _{crit} : se acepta H ₀ | F _{tab} : 44492 F _{crit} : 1,41E-19 | Se rechaza H ₀ ; Sí hay regresión. |

Veracidad: la evaluación de la veracidad se realizó con la medición de los estándares referenciados en la Tabla 5. A cada uno de los valores de $\delta^{13}\text{C}$ de los estándares primarios y secundarios se les realizó una serie de medidas con el fin de calcular el sesgo implicado en la medición. En cuanto a la veracidad los resultados de la Tabla 5 se observa que no existe diferencia significativa con los valores obtenidos y los valores teóricos, ya que los resultados de exactitud obtenidos se encuentran dentro del intervalo establecido como criterio de aceptación (90 – 110%).

El descarte de datos se hizo mediante el contraste estadístico de Grubbs. Estos resultados demuestran que el método, en las condiciones del laboratorio, con analistas diferentes y en días distintos, genera resultados con veracidad satisfactoria para estándares que se encuentren en el rango establecido, por tanto se considera que el método es veraz en el intervalo evaluado y definido previamente en la linealidad.

Repetibilidad: A partir de los datos obtenidos de $\delta^{13}\text{C}$ de los estándares (Tabla 5) y de los valores obtenidos para la muestra de papel de caña (Tabla 6), se observa que estos resultados presentan un coeficiente de variación que está dentro del límite ($\text{CV} < 5,66\%$) indicado por los criterios del laboratorio. El criterio fue establecido por medio de la ecuación de Horwitz, ver Ec. 2.

$$CV \text{ Horwitz} = 2^{(1-0,5 \log C)} \quad (2)$$

Donde,

CV: Coeficiente de variación

C: relación isotópica en partes por mil ‰.

La repetibilidad también fue evaluada por medio de las mediciones de una muestra de papel de caña, realizadas por el mismo analista en un mismo día (Tabla 6). Se observa que los coeficientes de variación son menores al valor crítico estimado por medio de la ecuación de Horwitz.

Los resultados permiten establecer que la metodología analítica presenta un alto grado de precisión (ya que las medidas realizadas dan un coeficiente de variación menor al 5,66%), así como repetibilidad para el análisis de $\delta^{13}\text{C}$.

Precisión intermedia: A partir de los resultados obtenidos entre los analistas 1 y 3 (Tabla 6), las medidas fueron tomadas en el mismo laboratorio (Laboratorio de Isótopos estables en muestras sólidas - Servicio Geológico Colombiano), empleando el mismo equipo y la misma técnica en diferentes días. Se observa que estos resultados presentan un coeficiente de variación que está dentro del límite indicado por los criterios del laboratorio. El criterio fue establecido por medio de la ecuación de Horwitz ($\text{CV} < 5,66\%$).

Lo anterior permite concluir que la metodología analítica presenta buena precisión en términos de precisión intermedia para el análisis de $\delta^{13}\text{C}$.

Tabla 5. Datos obtenidos para determinación de la veracidad del método

| Estándar | USGS-43 | IAEA-CH7 | LIE-CV | LIE-BB | LIE-EEZ-20 | LIE-PA |
|--------------------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|
| Fecha análisis | 25/11/2014 | 12/05/2014 | 27/11/2014 | 27/11/2014 | 27/11/2014 | 02/12/2014 |
| Valor real | -21,28 | -32,15 | -22,19 | -18,58 | -12,26 | -15,84 |
| n | 9 | 10 | 10 | 10 | 11 | 11 |
| Promedio ($\delta^{13}\text{C}\%$) | -21,46 | -31,73 | -22,84 | -18,96 | -12,39 | -16,14 |
| Desvest | 0,12 | 0,036 | 0,093 | 0,15 | 0,076 | 0,25 |
| CV | 0,54 | 0,11 | 0,41 | 0,82 | 0,61 | 1,54 |
| % Error | -0,84 | 1,30 | -2,92 | -2,02 | -1,06 | -1,88 |
| %Exactitud | 100,84 | 98,70 | 102,92 | 102,02 | 101,06 | 101,88 |

Tabla 6. Datos obtenidos para la muestra de papel de caña por tres analistas diferentes, y en diferentes laboratorios

| Fecha análisis | 03/12/2014 | EBDA | 14/02/2014 |
|-------------------------------|------------|------------|------------|
| Réplica/Analista | Analista 1 | Analista 2 | Analista 3 |
| n | 10 | 18 | 27 |
| Máximo | -12,807 | -12,877 | -12,907 |
| mínimo | -13,451 | -13,238 | -13,235 |
| T Alto | 1,618 | 1,824 | 1,383 |
| T bajo | 1,870 | 1,705 | 1,900 |
| Valor crítico G (0.05) | 2,262 | 2,120 | 2,060 |
| Promedio ($\delta^{13}C\%$) | -13,11 | -13,06 | -13,0 |
| Desvest | 0,18 | 0,10 | 0,10 |
| CV | 1,41 | 0,79 | 0,77 |

Reproducibilidad: Los datos de reproducibilidad fueron evaluados por medio de las mediciones de una

misma muestra (papel de caña) que se realizaron en dos laboratorios distintos. Los resultados se presentan en la Tabla 6, en donde se consignan los datos de los analistas 1 y 3 que fueron tomadas en el laboratorio de Isótopos Estables del Servicio Geológico Colombiano y los datos del analista 2 fueron tomados en la Estación Biológica Doñana.

El análisis de varianza que se presenta en la Tabla 7 demostró que no existen diferencias significativas entre las varianzas de los conjuntos de datos objeto de estudio, adicionalmente se puede establecer que el valor esperado es estadísticamente igual para los tres conjuntos de datos.

Los resultados de la evaluación de la reproducibilidad muestran que aunque se cambien las condiciones en que se hace el ensayo, con diferente analista, diferente día y diferente laboratorio, el método sigue presentando buena precisión (coeficiente de variación menor al 5,66%) para la determinación $\delta^{13}C$. Por tanto, acorde con los resultados de las Tablas 6 y 7, se puede concluir que el método es reproducible para el fin previsto.

Tabla 7. Análisis de varianza para la reproducibilidad

| Origen de las variaciones | Suma de cuadrados | Grados de libertad | Promedio de los cuadrados | F | Probabilidad | Valor crítico para F |
|---------------------------|-------------------|--------------------|---------------------------|-------|--------------|----------------------|
| Entre grupos | 0,0476 | 2 | 0,0238 | 1,361 | 0,265 | 3,175 |
| Dentro de los grupos | 0,910 | 52 | 0,0175 | | | |
| Total | 0,957 | 54 | | | | |

4. CONCLUSIONES

De acuerdo a los resultados obtenidos se encontró que existe relación lineal en el intervalo de trabajo seleccionado con respecto a los materiales de referencia disponibles en el laboratorio, los cuales tienen $\delta^{13}C$ entre -46,6‰ y +37,63‰ (tablas 8 y 9).

Los resultados encontrados de la técnica de espectrometría de masas de relaciones isotópicas (IRMS por sus siglas en inglés) presentan buena exactitud, determinada con base en la veracidad, repetibilidad, precisión intermedia y reproducibilidad (Tabla 10).

En cuanto a los parámetros evaluados y los criterios de aceptación establecidos, es posible concluir que el método IRMS es apto para la determinación de las relaciones isotópicas de carbono en el intervalo de trabajo establecido, razón por la cual los resultados analíticos son confiables y podrán ser comparados con los obtenidos en otros laboratorios.

De acuerdo con la naturaleza del mensurando, el cual corresponde a una medición relativa, los parámetros de límite de detección y límite de cuantificación no aplican en esta técnica.

Con el fin de aumentar el rango de mediciones del método, se propone que a futuro se realicen estudios

para medir la precisión en un intervalo más amplio de relaciones isotópicas para el carbono.

Debido a que los materiales de referencia certificados son costosos y de difícil consecución, se recomienda

hacer pruebas para encontrar materiales de referencia secundarios que puedan servir para el aseguramiento de la calidad analítica de resultados y el análisis rutinario.

Tabla 8. Rango validado para $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$

| Parámetro | Carbono | Observaciones |
|--------------------------------------|-----------------|--|
| Linealidad Rango Validado | -46,6 a -37,63‰ | Se garantiza la realización de análisis en estos rangos de relación isotópica ya que al hacer el análisis de linealidad se encontró que medidas realizadas de $\delta^{13}\text{C}$ en este rango presentan comportamiento lineal. |

Tabla 9. Criterios de aceptación para la linealidad del método

| Criterio | Hipótesis | Criterio de aceptación | Resultados | Conclusión |
|------------------------------------|---|--|---|---|
| Coefficiente de correlación | $r > 0,99$ | $> 0,99$ | 1,00 | Cumple |
| | H_0 : No significativo | $t_{\text{cal}} > t_{\text{crit}}$: se rechaza H_0 | t_{cal} : 28141,09 | Se rechaza H_0 r significativo |
| | H_1 : Sí significativo | | t_{crit} : 2,23 | |
| Pendiente | H_0 : $b=0$ | $t_{\text{cal}} > t_{\text{crit}}$: se rechaza H_0 | t_{cal} : 210,93 | Se rechaza H_0 . b Estadísticamente diferente de cero |
| | H_1 : $b \neq 0$ Estadísticamente diferente de cero. | | t_{crit} : 2,23 | |
| Regresión | H_0 : No hay relación significativa entre X y Y. No hay regresión | $F_{\text{tab}} > F_{\text{crit}}$: se rechaza H_0 | F_{tab} : 44492 | Se rechaza H_0 . Sí hay regresión. |
| | H_1 : Sí hay relación significativa entre X y Y. Sí hay regresión | | F_{crit} : 1,41E-19 | |
| Residuales | No debe presentarse una tendencia en la gráfica de los residuales Vs los niveles de la curva. | | No se presenta ninguna tendencia, se encuentran datos aleatorios lo cual indica que el modelo de regresión escogido se ajusta bien. | |

Tabla 10. Criterios de aceptación para la determinación de la exactitud del método

| | Criterio | Criterio de aceptación | Resultado | Conclusión | Observaciones |
|-----------|----------------------|--|-----------|------------|--|
| Exactitud | Veracidad | Porcentaje de exactitud entre 90–110 % | 101,24 % | Cumple | No existen diferencias significativas con los valores obtenidos y los valores teóricos ya que los % de exactitud obtenidos se encuentran dentro del intervalo establecido como criterio de aceptación. |
| | Repetibilidad | % CV < 5,66 | 0,67 % | Cumple | La metodología analítica presenta buena precisión como repetibilidad para el análisis de relación isotópica de ¹³ C/ ¹² C. |
| | Precisión Intermedia | % CV < 5,66 | 0,99 % | Cumple | La metodología analítica presenta buena precisión como precisión intermedia para el análisis de relación isotópica de ¹³ C/ ¹² C. |
| | Reproducibilidad | Homogeneidad de varianzas H ₀ : Varianzas iguales H ₁ : Varianzas diferentes | | Cumple | |
| | | %CV < 5,66 | 0,99% | Cumple | Aunque se cambien las condiciones en que se hace el ensayo, con diferente analista, diferente día y diferente laboratorio, el método sigue presentando buena precisión para la determinación de la relación isotópica. |

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a la química Vanessa Peiró del Laboratorio de Isótopos estables de la Universidad Autónoma de Madrid por su colaboración en la implementación de la técnica.

REFERENCIAS

- [1] K. C. Misra, Introduction to Geochemistry Principles and Applications, Tennessee, USA: Wiley-Blackwell, 2012.
- [2] R. R. Ortega, «Fundamentos teóricos y técnicos de los isótopos estables,» de *Técnicas y aplicaciones multidisciplinares de los isótopos ambientales*, Ma-

drid, España, UAM Ediciones, Servicio de Publicaciones de la Universidad Autónoma de Madrid, 2008, pp. 1-16.

- [3] U. A. C. Laboratory, «Center for Applied Isotope Studies Stable Isotope Ecology Laboratory,» University of Georgia. Julio 1997. [En línea]. Available: <http://sisbl.uga.edu/ratio.html#intro>. [Último acceso: 22 de marzo 2017].
- [4] L. S. Santiago et al., « El uso de isótopos estables en biología tropical», *Interciencia*, 9, vol. 30, 2005. [En línea]. Available: http://www.scielo.org.ve/scielo.php?script=sci_arttext&pid=S0378-18442005000900006. [Último acceso: 22 de marzo 2017].



- [5] M. Baskaran, Handbook of Environmental Isotope Geochemistry, Detroit: Springer, 2011.
- [6] E. Zaidín, «Los isótopos estables y la espectrometría de masas de isótopos,» [En línea]. Available: <http://www2.eez.csic.es/files/Los%20Isótopos%20Estables.pdf>. [Último acceso: 22 de marzo 2017].
- [7] Z. Muccio y G. Jackson, «Royal Society of Chemistry,» 14 de noviembre 2008. [En línea]. Available: <http://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2009/an/b808232d#!divAbstract>. [Último acceso: 22 de marzo 2017].
- [8] Eurolab España. P.P. Morillas y colaboradores, «Guía Eurachem: La adecuación al uso de los métodos analíticos - Una Guía de laboratorio para la validación de métodos y temas relacionados,» 2016. [En línea]. Available: https://www.eurachem.org/images/stories/Guides/pdf/MV_guide_2nd_ed_ES.pdf. [Último acceso: 22 de marzo 2017].
- [9] M. J. C. Miller James N, Estadística y quimiometría para química analítica, Madrid: Prentice Hall, 2002.
- [10] Centro español de metrología y JCGM, «Vocabulario Internacional de Metrología. Conceptos fundamentales y generales, y términos asociados» 2012. [En línea]. Available: <http://www.cem.es/sites/default/files/vim-cem-2012web.pdf>. [Último acceso: 16 de marzo 2015].
- [11] R. Guerrero y M. Berlanga, «Isótopos estables: Fundamento y aplicaciones», *Actualidad de la Sociedad Española de Microbiología*, vol. 30, p. 17-23, 2000.



Juliana Valentina Díaz Reyes. Boyacense nacida en Tunja, estudiante de química en la Universidad Nacional de Colombia, motivada por el gusto a la ciencia y la pintura que desde su infancia ha experimentado, le permite plasmar con el arte la idea de ciencia y así abstraer su profundidad logrando una visión del elemento científico.

PORTAFOLIO DE PRODUCTOS Y SERVICIOS

OBJETIVO

Proponer y dirigir políticas, planes, programas y proyectos en materia de investigación y aplicaciones nucleares y radiactivas con fines pacíficos.

PRODUCTOS

INVESTIGACIONES

- Reactores nucleares.
- Metrología de las radiaciones.
- Geocronología e isotopía.
- Seguridad radiológica.
- Aplicaciones nucleares y radiactivas.
- Aplicaciones en neutrónica.
- Modelado, simulación y prospectiva C&T.

SERVICIOS

- Licenciamiento y control de instalaciones radiactivas
 - Licencia de importación de material radiactivo.
 - Licencia de reexportación de material radiactivo.
 - Licencia de diseño de instalación radiactiva.
 - Licencia de operación de instalación radiactiva.
 - Licencia de clausura de instalación radiactiva.
 - Licencia de cese temporal de operación de instalación radiactiva.
 - Inspección de control a instalación radiactiva.
 - Registro de operación de instalación radiactiva.
- Servicios en aplicaciones nucleares y radiactivas.
 - Datación de muestras geológicas (Termocronología por Huellas de Fisión)
 - Datación de muestras geológicas (Geocronología U-Pb)
 - Determinación de isótopos estables en muestras líquidas.
 - Determinación de isótopos estables en muestras sólidas.
 - Estudios de muestras en microscopio electrónico de barrido SEM.
 - Análisis multielemental por activación neutrónica
 - Irradiación de materiales con radiación gamma.
 - Calibración de detectores de radiación ionizante.
 - Determinación de emisores gamma en pruebas de hermeticidad de fuentes radiactivas selladas.
 - Determinación de radionúclidos en muestras ambientales.
 - Gestión de desechos radiactivos.

Facebook: Servicio Geológico Colombiano

Twitter: @sgcol

Instagram: serviciogeologicocolombiano

Youtube: ServicioGeologicoC

SERVICIO
GEOLÓGICO
COLOMBIANO



SERVICIO GEOLÓGICO COLOMBIANO

Diagonal 53 N.º 34-53 Sede Central
PBX: +57(1) 2200000, 2200100 y 2200200
Fax: +57(1) 220797
Bogotá D.C. Colombia
cliente@sgc.gov.co

Carrera 50 N.º 26-20 Sede CAN
PBX: +57(1) 2200200, ext. 8011 y 8013

www.sgc.gov.co