

24
15

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO

FACULTAD DE CIENCIAS

MEDIDA DE IMPUREZAS DE I-131 Y Ru-103 EN UN EMBARQUE DE Mo-99

TESIS

QUE PARA OBTENER EL GRADO DE

FISICO

PRESENTA

CAYETANO ALFONSO CORTES PALACIOS



UNAM – Dirección General de Bibliotecas Tesis Digitales Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS © PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis está protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

INDICE.-

	Pag.
AGRADECIMIENTOS.	1
INTRODUCCION.	2
CAPITULO I.- DESARROLLO DEL METODO.	4
1) DETERMINACION DE LA RESOLUCION Y DE LA EFICIENCIA DEL SISTEMA DE DETECCION EN FUNCION DE LA ENERGIA.	4
2) CALCULO DEL TIEMPO DE DETECCION	4
3) CALCULO DEL TIEMPO QUE DEBE DEJARSE DECAER UNA MUESTRA DE SOLUCION DE MOLIBDATO DE SODIO ($Mo-99$) PARA PODER DISCRIMINAR EL AREA DEL FOTOPICO DE 364.48 KEV DEL $I-131$, DEL FOTOPICO DE 366.44 KEV DEL $Mo-99$.	6
4) CALCULO DE LA ACTIVIDAD DEL $I-131$.	9
5) MEDIDA DE LA ACTIVIDAD EQUIVALENTE DEL $Bi-214$ EXISTENTE EN EL FONDO NATURAL.	10
6) CALCULO DE LA ACTIVIDAD DEL $Ru-103$.	11
7) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE $Te-132$ EN $Mo-99$.	11
8) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE $I-131$ EN $Mo-99$.	12
9) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE $Ru-103$ EN $Mo-99$.	13
CAPITULO II.- APLICACION DEL PROCEDIMIENTO A CUATRO EMBARQUES DE $Mo-99$.	15
DISCUSION.	16
CONCLUSION.	17
ANEXOS.	18
TABLAS.	31
FIGURAS.	41
REFERENCIAS.	50

AGRADECIMIENTOS.-

Deseo expresar mi mas profundo agradecimiento a:

La M. en C. Judith Lezama, Gerente de Materiales Radiactivos del ININ, el planteamiento del problema.

El Dr. Ariel Tejera Rivera por su atinada dirección para la realización de esta Tesis.

El Fis. Javier Reyes Luján por sus valiosos y oportunos comentarios.

El Ing. J. Tendillo por su valiosa ayuda en la elaboración de las fuentes de Mo-99.

La Dra. Silvia Bulbulián y a la Dra. Nuria Segovia por sus positivos comentarios en la revisión de este trabajo.

Todas aquellas personas que de alguna manera contribuyeron para la realización de esta Tesis.

Esta Tesis fué realizada en el Laboratorio de Metrología de Radisótopos del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares.

INTRODUCCION.

(1,2,3) El Tc-99m ha llegado a ser el trazador más ampliamente usado en medicina nuclear.

Algunas razones por las que es tan popular este isótopo es que: 1) Su vida media es relativamente corta (6.007 horas⁽⁵⁾); 2) Su decaimiento por transición isomérica con la emisión de un rayo gamma predominante (89%⁽⁵⁾), de energía 140.511 keV⁽⁵⁾, es casi ideal para ser usado con cámaras γ -(Anger)⁽⁴⁾; 3) Se puede obtener del Mo-99, que tiene una vida media relativamente larga (2.7471 días⁽⁵⁾), en la forma de un generador, y 4) Posee un número elevado de grados de oxidación (-1 a +7), lo que permite la síntesis de numerosos compuestos. Estas características permiten que este isótopo pueda ser administrado a pacientes, en actividades de hasta algunos milicurios y en varias formas químicas para llevar a cabo gammagrafías de diferentes órganos del cuerpo humano (tiroides, hígado, bazo, cerebro, etc.).

Ya que la principal aplicación del Tc-99m es la de ser administrado a pacientes, la pureza de este radisótopo y la de su padre, el Mo-99, en la elaboración de generadores, es de principal importancia.

Este trabajo está enfocado a la determinación de las impurezas de I-131, Ru-103 y Te-132 en los embarques de Mo-99 que recibe continuamente la Gerencia de Materiales Radiactivos del ININ para su uso en la fabricación de generadores GETEC.

El proveedor de los mencionados embarques de Mo-99 (Laboratorios Medi-Physics de Union Carbide) asegura que las máximas concentraciones de impurezas son: 0.04 μCi * de Te-132, y 0.05 μCi de I-131 y de Ru-103 por mCi de Mo-99. Por lo tanto el problema consiste en determinar y en su caso cuantificar los isótopos de I-131 y Ru-103 en cantidades mayores o iguales a 0.05 $\mu\text{Ci}/\text{mCi}$ de Mo-99, y el isótopo Te-132 en cantidades mayores o iguales a 0.04 $\mu\text{Ci}/\text{mCi}$ de Mo-99.

En este trabajo se propone un método para hacer estas determinaciones periódicamente con un sistema de detección con detector de Ge(Li) para lo cual se hicieron las siguientes consideraciones:

Ya que las cantidades de impurezas contenidas en una muestra de Mo-99 se espera que sean muy pequeñas (aprox. 1 parte en 2×10^4 partes de Mo-99), es necesario hacer detecciones relativamente largas para poderlas medir con una incertidumbre razonable; por lo que, en el procedimiento aquí propuesto se considera el cálculo de los tiempos de detección de las diferentes energías emitidas por estas impurezas, para lo cual es necesario conocer la resolución y la eficiencia del sistema de detección usado.⁽⁷⁾

Por otro lado, el fotopico de 364.48 keV del I-131, que es el de mayor por-

*1 $\mu\text{Ci} = 3.7 \times 10^4$ Bq.

centage de emisión (85%) de este radisótopo, se encima con el fotopico de 366.44 kev del Mo-99, por lo que es necesario dejar decaer las muestras para que la relación de las cantidades de I-131 a Mo-99 llegue a ser tal que permita la medida del primero. Aquí se hace una estimación de este tiempo de decaimiento.

También el fotopico de 610.33 kev del Ru-103, con factor de emisión de 12%, se encima con el fotopico de 609.3 kev del Bi-214 existente en el fondo natural, por lo que es necesario determinar la actividad equivalente de este radisótopo para tomarla en cuenta en el cálculo de actividad del Ru-103.

Los problemas mencionados sugirieron proceder en el siguiente orden:

1) Determinación de la resolución y de la eficiencia del sistema de detección en función de la energía.

2) Cálculo del tiempo de detección

3) Cálculo del tiempo que debe dejarse decaer una muestra de solución de molibdato de sodio (Mo-99) para poder discriminar el área del fotopico de 364.48 kev del I-131, del fotopico de 366.44 kev del Mo-99.

4) Cálculo de la actividad del I-131.

5) Medida de la actividad equivalente del Bi-214 existente en el fondo natural.

6) Cálculo de la actividad del Ru-103.

Y con base en los resultados obtenidos se procedió a dar una proposición de procedimiento para la medida de estas impurezas:

7) Procedimiento para la medida de impurezas de Te-132 en Mo-99.

8) Procedimiento para la medida de impurezas de I-131 en Mo-99.

9) Procedimiento para la medida de impurezas de Ru-103 en Mo-99.

Estos procedimientos se aplicaron a cuatro embarques de Mo-99.

Los detalles de cálculo para obtener los resultados que aquí se reportan, se describen en los Anexos I al VI al final de este trabajo.

CAPITULO I.- DESARROLLO DEL METODO.

1) DETERMINACION DE LA RESOLUCION Y DE LA EFICIENCIA DEL SISTEMA DE DETECCION EN FUNCION DE LA ENERGIA.

El sistema de detección usado se representa en la figura 1.

La determinación de la resolución en función de la energía se llevó a cabo obteniendo 11 espectros de una fuente de Eu-152 y calculando el promedio del FWHM* para cada uno de sus fotopicos. Los FWHM de los fotopicos se calcularon con el procedimiento descrito en el Anexo I. Los resultados se presentan en la Tabla I, y en la figura 2 se grafican los promedios de la resolución en función de la energía.

Como puede observarse, la resolución llega a tener un valor de 5.57 kev en el fotopico de 411.111 kev, siendo mejor para todas las demás energías. No se observa una definida tendencia a aumentar o disminuir con la energía y si se ajusta una recta, su pendiente es de 1×10^{-4} y la ordenada al origen es de 4.03 kev, muy parecida a la resolución promedio de 3.95 kev. (Figura 2).

Por lo tanto la resolución del sistema de detección permanece aproximadamente constante en 3.95 kev \pm 18% independientemente de la energía.

Ya que el método para calcular el área de los fotopicos (ver Anexo II) toma en cuenta 5 canales en cualquier caso y ya que la resolución es casi constante, el fondo para cada energía se calculará también abarcando 5 canales que equivalen a 9 kev en este caso ya que, la calibración en energías se colocó en 1.8 kev/canal⁽⁶⁾.

La eficiencia del sistema de detección en función de la energía fué determinada con anterioridad⁽⁶⁾ y aparece en la Tabla II y en la figura 3.

2) CALCULO DEL TIEMPO DE DETECCION.

Como se mencionó anteriormente, se espera que las impurezas de Ru-103, I-131 y Te-132, se encuentren en actividades muy pequeñas (aprox. 1 parte en 2×10^6) en la muestra de Mo-99 que se va a analizar. Por lo tanto corresponderán a fotopicos muy pequeños sobre el fondo Compton del Mo-99 por lo que es necesario utilizar un tiempo de detección suficiente para obtener fotopicos cuyas áreas puedan ser medidas con una certeza razonable, (con desviación estandar relativa del 10%).

El tiempo de detección se obtiene despejando t de la ecuación⁽⁷⁾:

$$D_{m_i} = \frac{A_m}{\epsilon(E_i) P_{d_i} t_i} \left\{ (2F_i t_i + \frac{A_m^2}{4})^{1/2} + \frac{A_m}{2} \right\} \quad (1)$$

*El FWHM de un fotopico es su ancho total a la mitad de su altura máxima. Del inglés, full width at half maximum⁽¹²⁾.

donde:

- t_i = Tiempo de detección en la energía E_i .
 $\mathcal{E}(E_i)$ = Eficiencia del sistema en la energía E_i
 P_{γ_i} = Factor gamma para la energía E_i
 D_{m_i} = Razón mínima de desintegración de energía E_i que se desea detectar.
 F_i = Medida de fondo debajo del fotopico de energía E_i por unidad de tiempo.
 A_m = Recíproco del error fraccional deseado en la determinación de D_{m_i} .
 Al despejar se obtiene:

$$t_i = \frac{D_{m_i} \mathcal{E}(E_i) P_{\gamma_i} + 2F_i}{(D_{m_i} \mathcal{E}(E_i) P_{\gamma_i})^2} A_m^2 \quad (2)$$

En la Tabla III se muestran los tiempos de detección calculados mediante la fórmula (2) para cada una de las energías de las impurezas que se desea medir.

Para estos cálculos se usó $A_m = 10$, que corresponde a una determinación de actividad con incertidumbre del 10%.

D_m , la mínima actividad que se desea conocer, se estimó para una actividad de 10 μCi de Mo-99. Para esta actividad de Mo-99, se espera tener cantidades mínimas de Ru-103 y I-131 de 5×10^{-4} μCi (18.5 Bq) y cantidades mínimas de 4×10^{-4} μCi (14.8 Bq) de Te-132.

Las eficiencias se calcularon por interpolación lineal a partir de los valores presentados en la Tabla II y la figura 3⁽⁶⁾.

Los valores de P_{γ_i} se tomaron de las tablas existentes en las referencias (5) y (8).

Para obtener los valores de fondo F_i que se presentan en la tabla III, se procedió como sigue:

-De un embarque de Mo-99 (en este caso se usó el embarque con fecha 13-V-85), se preparó una dilución como se indica en el Anexo III.

-Se preparó una fuente de Mo-99 a partir de la dilución anterior como se indica en el Anexo IV.

-Esta fuente fue colocada sobre el cono de madera del sistema de detección como se ilustra en la figura V.1 (ver Anexo V) y se detectó durante 40000 segundos.

-Los fondos F_i se obtuvieron como el cociente de la suma de los pulsos acumulados en cinco canales consecutivos en cada región de interés del espectro obtenido en el paso anterior, entre el tiempo de detección de este espectro (40000 seg.). Cuando en la región de interés apareció un fotopico, se aplicó el método descrito en el Anexo II, fórmula (3).

Como se puede ver en la última columna de la Tabla III, los tiempos de detección para determinar cantidades de impurezas del orden de magnitud mencionado arriba con una incertidumbre del 10%, llegan a ser tan largos que, en la práctica sería imposible llevar a cabo; con excepción de la gamma de 670 kev emitida por el I-132 (hijo del Te-132⁽⁸⁾) para la cual se requiere un tiempo de detección de 3.06×10^6 seg. Si la medida de intensidad de esta gamma se acepta con una incertidumbre del 30%, entonces este tiempo se reducirá a la doceava parte, o sea, a un tiempo del orden de 3.4×10^5 seg. Una argumentación semejante es válida para el fotopico de 230 kev, cuya intensidad podría ser determinada con una incertidumbre del orden del 35% con el mismo tiempo de detección. Entonces, estos argumentos determinan el procedimiento para la determinación de las impurezas de Te-132.

Por otro lado, para medir la intensidad de Ru-103 con los fotopicos de 497 kev y 610 kev con una incertidumbre del 20%, se necesita un tiempo de detección de millones de segundos lo cual no es posible llevar a cabo (puesto que el abastecimiento de energía eléctrica en el Centro Nuclear, llega a faltar con frecuencia). Lo mismo sucede para los fotopicos de I-131 de 284 kev, 364 kev y 637 kev que son los de mayor porcentaje de emisión.

3) CALCULO DEL TIEMPO QUE DEBE DEJARSE DECAER UNA MUESTRA DE SOLUCION DE MOLIBDATO DE SODIO(Mo-99) PARA PODER DISCRIMINAR EL AREA DEL FOTOPICO DE 364.48 kev DEL I-131, DEL FOTOPICO DE 366.44 kev DEL Mo-99.

Ya que la resolución del sistema de detección usado es, en promedio, de 3.94 kev, los fotopicos de 364.48 kev del I-131 y el de 366.44 kev del Mo-99 no pueden ser resueltos por este sistema de detección. Por esto, es necesario dejar decaer la muestra de tal manera que, en el caso de existir la impureza de I-131, esta se manifieste como un incremento en el área del fotopico de Mo-99 lo cual es posible ya que la vida media del I-131 (8.021 días⁽⁵⁾) es mayor que la del Mo-99 (2.7471 días⁽⁵⁾).

Sean A_{01} y A_{02} respectivamente, las actividades del Mo-99 y del I-131 en la muestra antes de empezar a decaer, o sea en el tiempo cero y sean T_1 y T_2 las respectivas vidas medias.

Entonces en el tiempo cero, la razón r_0 , de actividades de estos dos radisótopos es:

$$r_0 = \frac{A_{02}}{A_{01}} = 5 \times 10^{-5} \quad (3)$$

Después de que la muestra a decaído un tiempo t_D las actividades de estos radisótopos serán A_2 y A_1 respectivamente y estarán dadas por:

$$A_2 = A_{02} \exp \left\{ - \frac{\ln 2}{T_2} t_D \right\} \quad (4)$$

y

$$A_1 = A_{01} \exp \left\{ - \frac{\ln 2}{T_1} t_D \right\} \quad (5)$$

De tal manera que en el tiempo t_D la razón de actividades r de I-131 a Mo-99 es:

$$r = \frac{A_2}{A_1} = \frac{A_{02} \exp \left\{ - \frac{\ln 2}{T_2} t_D \right\}}{A_{01} \exp \left\{ - \frac{\ln 2}{T_1} t_D \right\}} \quad (6)$$

Despejando a t_D y arreglando, se tiene que:

$$t_D = \frac{\ln \left(\frac{r}{r_0} \right)}{\ln 2} \left(\frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1} \right) \quad (7)$$

En esta ecuación falta conocer el valor de r para poder estimar el valor de t_D .

La condición para poder discriminar el fotopico de I-131 del de Mo-99 es que la actividad del primero llegue a ser mayor o al menos igual al error con el cual se pueda medir la actividad del segundo. La actividad del Mo-99 puede ser conocida con el área de otro de sus fotopicos. Para esto se escogió el fotopico de 739.47 kev debido a que corresponde a un factor de emisión relativamente alto (12.28%⁽⁵⁾) y además cae en una región del espectro, donde tanto el fondo natural como el fondo Compton son bastante planos (ver figura 4) por lo que, la forma de este fotopico no es alterada por esos factores y por lo tanto constituye una buena referencia para llevar a cabo una comparación de actividades, calculadas para el Mo-99 usando el fotopico problema que se encima con el del I-131 y este último.

Si no existiera la impureza de I-131, la actividad del Mo-99 calculada con el fotopico de 366.44 kev sería igual a la calculada con el fotopico de 739.47 kev, dentro del error correspondiente, es decir:

$$\frac{A_1}{A_3} = 1 \pm \frac{\sqrt{e_1^2 + e_3^2}}{100} \quad (8)$$

donde:

A_1 = Actividad del Mo-99 calculada con el fotopico de 366.44 kev.

A_3 = Actividad del Mo-99 calculada con el fotopico de 739.47 kev.

e_1 = Error en la determinación de la actividad A_1 en por ciento = 6.5%*

e_3 = Error en la determinación de la actividad A_3 en por ciento = 7.4%

Pero en el caso de existir una actividad A_2 de I-131, A_1 en la ecuación (8) sería la suma de la actividad del Mo-99, o sea A_3 , mas la del I-131 por lo que, esta ecuación se convertiría en:

$$\frac{A_3 + A_2}{A_3} \geq 1 + \frac{\sqrt{e_1^2 + e_3^2}}{100} \quad (9)$$

o sea:

$$\frac{A_2}{A_3} \geq \frac{\sqrt{e_1^2 + e_3^2}}{100} \quad (10)$$

Por lo tanto la mínima razón de actividades de I-131 a Mo-99 para la cual se podría registrar una actividad mínima de I-131 es:

$$r = \frac{A_2}{A_3} = \frac{\sqrt{e_1^2 + e_3^2}}{100} = 0.098 \quad (11)$$

Con estos valores se obtiene un tiempo de decaimiento de:

$$t_p = 45.7 \text{ días.}$$

*Estos valores fueron tomados de el cálculo de actividad de Mo-99 hecho para la fuente que se usó para obtener los valores del fondo presentados en la tabla III.

Los tiempos de detección, calculados para una fuente de actividad inicial de 1.1 mCi de Mo-99, para poder medir sus impurezas con un 10% de precisión, después de haber decaído un tiempo de 45 días, se muestran en la Tabla IV.

4) CALCULO DE LA ACTIVIDAD DEL I-131.

La actividad del I-131 se calculó comparando las áreas completas (comprendidas en 9 canales en cada caso) de los fotopicos de 366.44 keV y de 739.47 keV del Mo-99. Las actividades calculadas con estos fotopicos deben ser iguales por lo que igualando las correspondientes ecuaciones para la actividad (ecuación 7 del Anexo V) y despejando el valor del área del fotopico de 366.44 keV se obtiene:

$$N_1' = \frac{P_{\gamma_1} \epsilon_1 C_{ad3}}{P_{\gamma_3} \epsilon_3 C_{ad1}} N_3 \quad (12)$$

donde:

N_1' = Valor calculado del área del fotopico de 366.44 keV en función del área N_3 , del fotopico de 739.47 keV.

P_{γ_1} = Factor de emisión gamma para la energía de 366.44 keV del Mo-99.

P_{γ_3} = Factor de emisión gamma para la energía de 739.47 keV del Mo-99.

ϵ_1 = Eficiencia del sistema en la energía de 366.44 keV.

ϵ_2 = Eficiencia del sistema en la energía de 739.47 keV

C_{ad1} = Factor de corrección por atenuación y variación en la distancia para la energía de 366.44 keV.

C_{ad2} = Factor de corrección por atenuación y variación en la distancia para la energía de 739.47 keV.

Si existe I-131, el valor N_1' debe ser menor que el valor del área N_1 , de este fotopico calculada directamente con los conteos registrados en los canales correspondientes. Por lo tanto:

$$\frac{N_1}{N_1'} > 1 + \frac{\sqrt{e_{N_1}^2 + e_{N_1'}^2}}{100} \quad (13)$$

donde:

e_{N_1} = error en la estimación del área N_1

e_{N_1} = error en la estimación del área N_1

La fracción excedente se adjudicó a la actividad de la impureza I-131 por lo cual, esta actividad se calculó con la fórmula:

$$A_I = \left[\frac{N_1}{N_1^i} - \left(1 + \frac{\sqrt{e_{N_1}^2 + e_{N_1^i}^2}}{100} \right) \right] A_{Mo} \quad (14)$$

donde:

A_I = Actividad de la impureza de I-131 existente en la muestra de molibdato de sodio (Mo-99).

A_{Mo} = Actividad del Mo-99 existente en la muestra de molibdato de sodio (Mo-99).

El error e_I de la actividad A_I calculada con la fórmula (14), se encontró con el método de propagación de errores⁽⁹⁾. Resultó ser:

$$e_I = \sqrt{\frac{e_{N_1}^2 + e_{N_1^i}^2}{\left[1 - \frac{N_1^i}{N_1} \left(1 + \frac{\sqrt{e_{N_1}^2 + e_{N_1^i}^2}}{100} \right) \right]^2} + e_{A_{Mo}}^2} \quad (15)$$

donde:

$e_{A_{Mo}}$ = Error en la determinación de la actividad de Mo-99 en la muestra.

Cuando la actividad del I-131 es suficientemente alta como para que las áreas de los fotopicos de 284.3 keV y 636.975 keV puedan ser medidas, se calcula la actividad con estos fotopicos como se indica en el Anexo V y la actividad buscada se calcula como la media pesada⁽⁹⁾ de las actividades así encontradas (fórmulas 9 y 10 del Anexo V).

5) MEDIDA DE LA ACTIVIDAD EQUIVALENTE DEL Bi-214 EXISTENTE EN EL FONDO NATURAL.

Para medir la actividad del Bi-214 existente en el fondo natural, se tomaron cinco espectros de fondo, en el periodo del 20 de mayo al 27 de septiembre de 1985. En cada uno de ellos se calculó la actividad con el fotopico de 609.3 keV. La actividad buscada se calculó como la media pesada de las anteriores. Los resultados se muestran en la Tabla V. Esta es la actividad de Bi-214 equivalente a una fuente puntual colocada a 13.51 cm de distancia del detector. Resultó ser de $1.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci} \pm 5.1\%$ y es del mismo orden de magnitud que la impureza de Ru-103 que se es-

para tener en una muestra de 1.1 mCi de Mo-99 después de haber decaído por 45 días.

6) CALCULO DE LA ACTIVIDAD DEL Ru-103.

La actividad del Ru-103 se calculó con sus fotopicos de 497.08 kev y de 610.33 kev, que son los de mayor factor de emisión gamma. El cálculo de actividad con el primer fotopico se hace como se indica en el Anexo V (fórmula 7).

Ya que el segundo fotopico se encima con el del Bi-214 de 609.3 kev, existente en el fondo natural, su área se calculó como la diferencia del área del fotopico del Ru-103 en el espectro de la muestra menos el área del fotopico de Bi-214 en el espectro de fondo respectivo. Estas dos áreas se corrigen por apilamiento de pulsos,* con el factor de corrección C_a dado por la fórmula (4) del Anexo V, antes de llevar a cabo la diferencia. Con esta área y la fórmula (7) del Anexo V, se calcula la actividad tomando en cuenta que esta área ya a sido corregida por apilamiento de pulsos.

La actividad de esta impureza se calcula como la media pesada de las dos actividades ya encontradas (fórmulas 9 y 10 del Anexo V).

7) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE Te-132 EN Mo-99.

1.- Se prepara una dilución a partir del embarque de Mo-99 de interés como se indica en el Anexo III.

2.- A partir de la dilución, se elabora una fuente de Mo-99, con una actividad del orden de $10 \mu\text{Ci}$, como se indica en el Anexo IV.

3.- La fuente se coloca sobre el cono de madera (ver figura V.1 del Anexo V), con la cara "A" (ver figura IV.1 del Anexo IV) hacia el detector.

4.- Se detecta la fuente durante 3×10^5 seg. anotando hora y fecha del inicio de la medida.

5.- Se localizan los fotopicos de 230 kev del Te-132 y de 670 kev del I-132, hijo del Te-132⁽⁸⁾.

Se calculan las áreas y los respectivos fondos de estos fotopicos con las fórmulas (3) y (4) del Anexo II. Se calculan los errores de estas áreas y éstas se denotan por $N_1 \pm e_{N_1}$ y $N_2 \pm e_{N_2}$ respectivamente.

6.- Las vidas medias del Te-132 y del I-132 son de 77.7 horas⁽⁸⁾ y 2.26 horas⁽⁸⁾ respectivamente, por lo que la razón de actividades⁽¹¹⁾ de I-132 a Te-132 dada por la ecuación general para un producto hijo después de aproximadamente 3 días (72 horas) es de 1.03. Por esta razón el área N_2 se multiplica por (1/1.03) y este producto se denota con N_3 . En la figura 5 se muestra una gráfica de decaimiento de *Apilamiento.-Del inglés: "Pulse Pileup" (ref. 10).

una fuente de 1 mCi de Te-132 y el crecimiento de su hijo, el I-132.

7.- Se calcula la actividad del Te-132 con las áreas N_1 y N_3 como se indica en el Anexo V. Esta actividad se denota con $A_{Te} \pm e_{Te}$.

8.- Se calcula la actividad del Te-132 a la fecha de referencia deseada con las ecuaciones (1) y (8) del Anexo VI. Esta actividad se denota con $A_{Te} \pm e_{Te}$.

9.- Se calcula la actividad del Mo-99 con los fotopicos de 140.511 kev, 181.09 kev y 739.47 kev como se indica en el Anexo V. Esta actividad se denota con $A_{Mo} \pm e_{Mo}$.

10.- Se calcula la actividad del Mo-99 a la fecha de referencia deseada con las ecuaciones (1) y (8) del Anexo VI. Esta actividad se denota con $A_{Mo} \pm e_{Mo}$.

11.- Se calcula la razón r , de actividades de Te-132 a Mo-99 con la fórmula:

$$r = \frac{A_{Te}}{A_{Mo}} \pm \sqrt{e_{Te}^2 + e_{Mo}^2} \quad (16)$$

8) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE I-131 EN Mo-99.

1.- A partir del embarque de interés, se elabora una fuente como se indica en el Anexo IV.

2.- La fuente se deja decaer por 45 días.

3.- Se coloca a la fuente decaída sobre el cono de madera (ver figura V.1 del Anexo V), con la cara "A" (ver figura IV.1 del Anexo IV) hacia el detector.

4.- Se detecta durante 2×10^5 seg. anotando hora y fecha del comienzo de esta medida.

5.- Se calcula la actividad A_{Mo}^1 , del Mo-99 con sus fotopicos de 140.511 kev, 181.09 kev y 739.47 kev como se indica en el Anexo V. Se denota con $A_{Mo}^1 \pm e_{Mo}^1$.

6.- Se calculan las áreas y los fondos respectivos de los fotopicos de 284.3 kev y 636.973 kev del I-131 con las fórmulas (3) y (4) del Anexo II. Con estos valores se calculan los errores de estas áreas con la fórmula (1) del Anexo V y se denotan con $N_4 \pm e_{N_4}$ y $N_5 \pm e_{N_5}$ respectivamente. Si estas áreas no se pueden medir, no se toman en cuenta.

7.- Se calculan las actividades A_4 y A_5 de I-131 con las áreas N_4 y N_5 respectivamente con las fórmulas (7) y (8) del Anexo V. Si las áreas N_4 y N_5 no se pueden medir, no se hace este paso.

8.- Se calculan las áreas N_1 y N_3 y los respectivos fondos de los fotopicos de 366.44 kev y 739.47 kev del Mo-99 tomando en cuenta 9 canales en cada caso (fór-

mulas (5) y (6) del Anexo II) para obtener sus áreas completas.

9.- Se calculan los errores e_{N_1} de N_1 y e_{N_3} de N_3 con la fórmula (1) del Anexo V.

10.- Se calcula el área N_1^i con la ecuación (12).

11.- Se calcula el error $e_{N_1}^i$, de N_1^i con la ecuación:

$$e_{N_1}^i = \sqrt{e_{P_{Y_1}}^2 + e_{\mathcal{E}_1}^2 + e_{P_{Y_3}}^2 + e_{\mathcal{E}_3}^2 + e_{N_3}^2} \quad (17)$$

donde:

$e_{P_{Y_1}}$ = Error porcentual de P_{Y_1} .

$e_{P_{Y_3}}$ = Error porcentual de P_{Y_3} .

$e_{\mathcal{E}_1}$ = Error porcentual de \mathcal{E}_1 .

$e_{\mathcal{E}_3}$ = Error porcentual de \mathcal{E}_3 .

e_{N_3} = Error porcentual e_{N_3} dado por la ecuación (1) del Anexo V.

12.- Si se verifica la desigualdad (13), se calcula la actividad A_I^i de I-131 con la ecuación (14) y su error con la ecuación (15).

13.- La actividad A_I^i del I-131 se calcula como la media pesada de las actividades A_4 , A_5 y A_I con las ecuaciones (9) y (10) del Anexo V.

14.- Se calculan las actividades de Mo-99 (inciso (5)) y del I-131 (inciso (13)) a la fecha de referencia deseada con las ecuaciones (1) y (8) del Anexo VI. Estas actividades se denotan con $A_{Mo} \pm e_{Mo}$ y $A_I \pm e_I$ respectivamente.

15.- Se calcula la razón r , de actividades de I-131 a Mo-99 con la fórmula:

$$r = \frac{A_I}{A_{Mo}} \pm \sqrt{e_I^2 + e_{Mo}^2} \quad (18)$$

9) PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS DE Ru-103 EN Mo-99.

1.- A partir del embarque de interés, se elabora una fuente como se indica en el Anexo IV.

2.- La fuente se deja decaer por 45 días.

3.- Se detecta el fondo natural durante 2×10^5 seg.

4.- Se calcula el área y el fondo del fotopico de 609.3 kev del Bi-214 con las fórmulas (3) y (4) del Anexo II y se corrige por apilamiento de pulsos con el factor C_a de la fórmula (4) del Anexo V. Esta área corregida se denota con $N_{Bi} \pm e_{Bi}$

donde e_{Bi} se calcula con la fórmula (1) del Anexo V.

5.- Se coloca a la fuente decaída sobre el cono de madera (ver figura V.1 del Anexo V), con la cara "A" (ver figura IV.1 del Anexo IV) hacia el detector.

6.- Se detecta durante 2×10^5 seg., anotando hora y fecha del comienzo de esta medida.

7.- Se calcula la actividad A_{Mo}^i , del Mo-99 con sus fotopicos de 140.511 kev 181.09 kev y 739.47 kev como se indica en el Anexo V. Se denota con $A_{Mo}^i \pm e_{Mo}^i$.

8.- Se calculan las áreas y los respectivos fondos de los fotopicos de 497.08 kev y 610.33 kev con las fórmulas (3) y (4) del Anexo II. Con estos valores se calculan los errores respectivos de estas áreas con la fórmula (1) del Anexo V y se denotan con $N_{Ru1} \pm e_{Ru1}$ y $N_{Ru2}^i \pm e_{Ru2}^i$.

9.- Se calcula el área N_{Ru2} dada por:

$$N_{Ru2} = N_{Ru2}^i - N_{Bi} \quad (19)$$

10.- Se calcula el error e_{NRu2} , de N_{Ru2} con la fórmula:

$$e_{NRu2} = \frac{\sqrt{(e_{Ru2}^i N_{Ru2}^i)^2 + (e_{N_{Bi}} N_{Bi})^2}}{N_{Ru2}} \quad (\%) \quad (20)$$

donde:

e_{Ru2}^i = Error en por ciento del área N_{Ru2}^i dado por la fórmula (1) del Anexo V. (La fórmula (20) resulta de aplicar el método de propagación de errores a la fórmula (19)).

11.- Con las áreas N_{Ru1} y N_{Ru2} se calcula la actividad A_{Ru}^i del Ru-103, como se indica en el Anexo V. Esta actividad se denota con $A_{Ru}^i \pm e_{Ru}^i$.

12.- Se calculan las actividades de Mo-99 (inciso 7) y del Ru-103 (inciso 11) a la fecha de referencia deseada con las fórmulas (1) y (8) del Anexo VI. Estas actividades se denotan con $A_{Mo} \pm e_{Mo}$ y $A_{Ru} \pm e_{Ru}$ respectivamente.

13.- Se calcula la razón r , de actividades de Ru-103 a Mo-99 con la fórmula:

$$r = \frac{A_{Ru}}{A_{Mo}} \pm \sqrt{e_{Ru}^2 + e_{Mo}^2} \quad (21)$$

CAPITULO II.- APLICACION DEL PROCEDIMIENTO A CUATRO ENBARQUES DE Mo-99.

El procedimiento descrito en el capítulo I se aplicó a cuatro embarques de Mo-99 adquiridos por la Gerencia de Materiales del ININ en las fechas: 24 de junio, 1 de julio, 8 de julio y 9 de septiembre de 1985. En los tres primeros se midieron las impurezas de I-131 y Ru-103 y en el cuarto, la impureza de Te-132.

Las constantes usadas para los cálculos se muestran en la Tabla VI. En la Tabla VII se muestran los resultados de la medida de Mo-99 de cada uno de los cuatro embarques. En las Tablas VIII y IX se muestran los resultados obtenidos al aplicar los procedimientos descritos en los incisos 8 y 9 del capítulo I, para la determinación de las impurezas de I-131 y Ru-103 respectivamente, en los tres primeros embarques de Mo-99.

La impureza de Te-132 se midió en el cuarto embarque aplicando el procedimiento descrito en el inciso 7 del capítulo I. Los resultados se muestran en la Tabla X.

DISCUSION.-

Como puede verse en las dos últimas columnas de la Tabla VII, la actividad del Mo-99 se pudo determinar con una incertidumbre menor que el 5% en los cuatro casos, sin embargo el cálculo de la actividad a una fecha del orden de 45 días antes de la medida hizo aumentar esta incertidumbre hasta un 7.5%, debido a que ésta es proporcional al número de vidas medias que se deje decaer la muestra como puede observarse en la ecuación (8) del Anexo VI.

Como se mencionó al principio, el fotopico de 364.48 kev, que es el de mayor emisión del I-131 (81.6%), se encima con el de 366.44 kev del Mo-99, por lo que fué necesario determinar la actividad del primero indirectamente, comparando las áreas de dos fotopicos del Mo-99: el encimado y otro de mayor energía (739.47 kev). El error involucrado en este procedimiento está dado por la ecuación (15), en donde se puede ver que cuando N_1 es suficientemente grande comparado con N_1' , el denominador del primer término dentro de la raíz cuadrada tiende a 1 por lo que, e_I tiende a:

$$e_I = \sqrt{e_{N_1}^2 + e_{N_1'}^2 + e_{A_{Mo}}^2} \quad (22)$$

En el caso contrario el valor de e_I crece indefinidamente y en el límite, cuando:

$$N_1 = N_1' \left(1 + \frac{\sqrt{e_{N_1}^2 + e_{N_1'}^2}}{100} \right) \quad (23)$$

el valor de e_I se va a infinito.

En los casos analizados en este trabajo, las muestras se dejaron decaer por un tiempo del orden de 45 días (ver tercera columna de la Tabla VII) dado por (11) el cual nos coloca en este límite. Es por esto que se obtuvieron los errores tan grandes (mayores del 50%) en la medida de actividad de este isótopo (segunda columna de la Tabla VIII). Se estima que con tiempos de decaimiento mayores o iguales a 50 días, este error puede ser disminuído hasta aproximadamente el 25% para las concentraciones de I-131 de 0.05 μ Ci por mCi de Mo-99 que aquí interesan.

Por otro lado, la concentración de I-131 en los dos primeros embarques de Mo-99 resultó dentro del límite de 0.05 μ Ci por mCi de Mo-99, siendo mayor en el tercer caso. (Ver última columna de la Tabla VIII).

En la Tabla IX se muestran las medidas de actividad de Ru-103. Se puede observar que estas medidas se lograron con incertidumbres menores que el 10%, ya

que en este caso, el fotopico de 497.08 kev, que es el de mayor emisión de este isótopo no se encima con ningún otro; además, su vida media es mayor que la de los demás integrantes de la mezcla, lo que hizo posible la baja incertidumbre en estas medidas. La concentración de Ru-103 estuvo dentro del límite de 0.05 μ Ci por mCi de Mo-99 en los tres casos que aquí se analizaron.

Por último, la concentración de Te-132 en el embarque analizado para tal efecto, estuvo dentro del límite de 0.05 μ Ci por mCi de Mo-99 (Tabla X).

CONCLUSION.-

Los procedimientos para medir las impurezas de I-131, Ru-103 y Te-132, descritos aquí, sirven para llevar un control de calidad respecto de la concentración de éstas en los embarques de Mo-99 que se reciben en la Gerencia de Materiales Radiactivos del ININ. No obstante las incertidumbres obtenidas en las medidas de I-131 y Te-132, se considera que estas medidas son una buena indicación de la concentración de estas impurezas en dichos embarques.

ANEXO I.PROCEDIMIENTO PARA DETERMINAR EL FWHM DE UN FOTOPICO.-

En la figura I.1 se muestra una fracción de una distribución diferencial de alturas de pulsos en la que se ilustra la forma de los fotopicos que se obtienen con el sistema de detección usado en este trabajo. En el eje de las abscisas se representa el número del canal correspondiente y en el de las ordenadas, la cantidad de pulsos registrada por cada uno de ellos. Nótese que en esta gráfica, todos los puntos están unidos por líneas rectas.

Por definición, el FWHM de un fotopico es su ancho total a la mitad de su altura máxima⁽¹⁰⁾.

Aquí se encontrará este parámetro en unidades de canales.

Si se denota por M a la altura máxima del fotopico y ésta se toma como igual a su ordenada máxima, el FWHM debe medirse a una altura igual a $\frac{M}{2}$.

En la figura I.1, el FWHM es la longitud del segmento de recta horizontal que une los puntos $(x_1, \frac{M}{2})$ y $(x_2, \frac{M}{2})$ donde, en general:

$$X-i-1 < x_1 < X-i \quad (1)$$

$$X+j < x_2 < X+j+1 \quad (2)$$

con i y j enteros, denotando la distancia en canales desde la abscisa X. Por lo que:

$$\begin{aligned} \text{FWHM} = x_2 - x_1 &= [x_2 - (X+j)] + [(X+j) - (X-i)] + [(X-i) - x_1] \\ &= [x_2 - (X+j)] + (j+i) + [(X-i) - x_1] \end{aligned} \quad (3)$$

Por triángulos semejantes:

$$[x_2 - (X+j)] = \frac{m_j - \frac{M}{2}}{m_j - m_{j+1}} \quad (4)$$

donde:

m_j = Número de pulsos registrados por el canal X+j

m_{j+1} = Número de pulsos registrados por el canal X+j+1

$$y: [(X-i) - x_1] = \frac{m_i - \frac{M}{2}}{m_i - m_{i-1}} \quad (5)$$

donde:

m_i = Número de pulsos registrados por el canal X-i

m_{i-1} = Número de pulsos registrados por el canal X-i-1

$$\therefore \text{FWHM} = \frac{m_j - \frac{M}{2}}{m_j - m_{j+1}} + (j+i) + \frac{m_i - \frac{M}{2}}{m_i - m_{i-1}} \quad (6)$$

ANEXO 11.

METODO PARA EL CALCULO DEL AREA DE UN FOTOPICO Y SU FONDO CORRESPONDIENTE.-

El método usado en este trabajo para la determinación del área de los fotopicos es el método de Covell^(12,13).

En este método la parte del área del fotopico se limita tomando un número igual de canales a la izquierda y a la derecha del canal que haya registrado el mayor número de pulsos en el fotopico y trazando una recta que pase por los puntos definidos por los canales extremos y los números de pulsos almacenados en ellos.

Para el sistema de detección usado aquí, descrito con anterioridad, se encontró que delimitando a los fotopicos dentro de cinco canales se obtienen medidas de áreas⁽¹⁴⁾ con menor desviación estandard por lo que, el método de Covell se aplicará usando este número de canales, donde el canal central corresponde al de mayor número de pulsos en el fotopico de interés.

Ahora bien, si a los canales que comprenden al i-ésimo fotopico de interés se les denota con los dígitos, 1, 2, 3, 4 y 5 y a las correspondientes cantidades de pulsos almacenadas en ellos, con C_1 , C_2 , C_3 , C_4 y C_5 respectivamente (ver figura II.1) la suma total T_i de estas cantidades será:

$$T_i = C_1 + C_2 + C_3 + C_4 + C_5 = N_i + F_i \quad (1)$$

donde:

N_i = Area del i-ésimo fotopico de interés.

F_i = Fondo debajo del i-ésimo fotopico de interés.

Pero el fondo debajo de este fotopico es el área debajo del segmento de recta que va del punto (1, C_1) al punto (5, C_5) dada por:

$$F_{in} = C_1 - \frac{C_1 - C_5}{4} (n - 1) \quad (2)$$

donde:

$n = 1, 2, 3, 4, 5$

F_{in} = Fondo correspondiente al canal n.

por lo que:

$$F_i = \sum_{n=1}^5 F_{in} = 5 \left(\frac{C_1 + C_5}{2} \right) \quad (3)$$

y entonces:

$$N_i = T_i - F_i = C_2 + C_3 + C_4 - 3\left(\frac{C_1 + C_5}{2}\right) \quad (4)$$

Si este método se aplica con 9 canales, con el canal 5 correspondiendo al canal de mayor número de pulsos, las fórmulas (3) y (4) serían respectivamente:

$$F_i = \sum_{n=1}^9 F_{in} = 9\left(\frac{C_1 + C_9}{2}\right) \quad (5)$$

$$N_i = \sum_{n=2}^8 C_n - 7\left(\frac{C_1 + C_9}{2}\right) \quad (6)$$

ANEXO III.PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE DILUCIONES A PARTIR DE LOS EMBARQUES DE Mo-99.-Introducción.

Los embarques de Mo-99 que son recibidos rutinariamente por la Gerencia de Materiales Radiactivos llegan con una concentración radiactiva del orden de 110 mCi/ml, la cual es muy alta para ser medida con un sistema de detección con detector de Ge(Li). Por lo tanto, si se desea medir la concentración radiactiva de Mo-99 de embarques de este tipo, es necesario preparar una dilución del embarque de interés, para que a partir de ésta se elabore la fuente que será medida con el sistema de detección mencionado.

Se desea preparar una dilución que contenga del orden de $1 \mu\text{Ci}$ de Mo-99/ μl de solución de molibdato de sodio (Mo-99).

El procedimiento para preparar esta dilución es como sigue:

INSTRUMENTOS Y MATERIALES.-Instrumentos.-

- Pipeta Eppendorf de 1-100 μl ⁽¹⁵⁾ con puntas de 5-20 μl .
- Pipeta Eppendorf de 101-1000 μl ⁽¹⁵⁾ con puntas de 100-1000 μl .

Materiales de Laboratorio.-

- Frasco tipo antibióticos con tapa.
- Contenedor de plomo para colocar el frasco tipo antibióticos en su interior.
- Etiquetas adhesivas.
- Hilo de cáñamo.

Reactivos.-

- Solución Madre de Molibdato de Sodio(Mo-99).(Embarque de Mo-99 de interés).
- Acarreador de Na_2MoO_4 .
- Alcohol etílico
- Acetona Q.P.
- Agua destilada.
- Agua y jabón.

Procedimiento.-

- Se lava el frasco tipo antibióticos con agua y jabón. Se enjuaga primero con agua destilada, después con acetona y por último con alcohol etílico . Se seca con aire.
- Se enjuaga con acarreador de tal manera que las paredes interiores del frasco se mojen completamente y se seca con aire.
- Se marca con una etiqueta especificando la fecha y el nombre del radisótopo, Mo-99.
- Se amarra el cuello del frasco con un hilo de cáñamo procurando que quede libre una longitud del orden de 5cm.

- Se coloca dentro de su contenedor de plomo.
- El contenedor de plomo se marca con una etiqueta con la fecha y el nombre del radisótopo, Mo-99.
- Con la pipeta de 101-1000 μl y una punta de 1000 μl , se toman 1000 μl de acarreador y se depositan en el frasco tipo antibióticos. Este volumen de acarreador se denota con V_1 .
- Con la pipeta de 1-100 μl y una punta de 5-20 μl , se toman 10 μl de acarreador y se depositan en el frasco tipo antibióticos procurando que esta cantidad caiga directamente sobre el acarreador depositado anteriormente sin tocar las paredes del frasco. Este volumen de solución madre se denota con V_2 .
- Se agita de manera que se homogenice la dilución.
- Se calcula el factor de dilución F correspondiente con la fórmula:

$$F = \frac{V_2}{V_1 + V_2} \quad (1)$$

Del cálculo se obtiene: $F = 9.9 \times 10^{-3}$

- Se calcula el error e_F en la determinación de F. Se hace con la fórmula:

$$e_F = \frac{V_1}{V_1 + V_2} \sqrt{e_{V_1}^2 + e_{V_2}^2} \quad (2)$$

donde:

$$e_{V_1} = \text{Error en la medida de } V_1 = 1\%^{(15)}$$

$$e_{V_2} = \text{Error en la medida de } V_2 = 1\%^{(15)}$$

Del cálculo se obtiene, $e_F = 1.4\%$

- El factor de dilución se denota como:

$$F \pm e_F$$

o sea $9.9 \times 10^{-3} \pm 1.4\%$.

ANEXO IV.PROCEDIMIENTO PARA LA ELABORACION DE UNA FUENTE SELLADA DE Mo-99.Introducción.

Se desea elaborar una fuente tipo "fuente puntual". Las dimensiones de ésta, son como se indica en la figura IV.1.

Se procede como sigue:

INSTRUMENTOS Y MATERIALES.-Instrumentos.-

- Pipeta Eppendorf de 1-100 μl ⁽¹⁵⁾ con puntas de 5-20 μl .
- Prensa (660 Kg/cm²).

Material de Laboratorio.-

- Soporte con cavidad, elaborado con plástico "P. G. Blanco Z.2, 3mm". (fig. IV.1).
- Soporte sin cavidad, elaborado con el mismo material. (fig. IV.1).
- Algodón.
- Etiquetas adhesivas.

Reactivos.-

- Solución de Molibdato de Sodio (Mo-99) con una concentración radiactiva del orden de 1 $\mu\text{Ci}/\mu\text{l}$ o menos.
- Pegamento tipo Pegacril.
- Alcohol etílico.

Procedimiento.-

- Se limpian los soportes frotándolos con algodón y alcohol.
- Se etiquetan como se indica en la figura IV.1.
- Con la pipeta de 1-100 μl y una punta de 5-20 μl se depositan 10 μl de solución radiactiva de Mo-99 en la cavidad del soporte correspondiente procurando que la gota quede en el centro de dicha cavidad. Este volumen de solución se denota con V.
- Se pone pegacril alrededor de la cavidad del soporte.
- Se tapa este soporte con el soporte sin cavidad para formar un sandwich.
- Se prensa el sandwich a una presión de aproximadamente 660 Kg/cm² durante 5 a 10 min.
- Se hace un frotis a este sandwich para ver si no está contaminado. En su caso, se desecha.

ANEXO V.PROCEDIMIENTO PARA LA MEDIDA Y CALCULO DE ACTIVIDAD DE UNA FUENTE DE Mo-99.Introducción.-

En este Anexo se especifica un método para detectar una fuente radiactiva con un sistema de detección con detector de Ge(Li) y determinar su actividad.

Instrumentos y Materiales.-

- Sistema de detección con detector de Ge(Li) calibrado en energía y eficiencia.
- Mecanismo para fijar la distancia desde la fuente al detector. En este trabajo se usa un cono de madera con resguardo como se ilustra en la figura V.1.
- Fuente radiactiva cuya actividad se va a determinar.
- Calculadora de escritorio.

Procedimiento.-Medida de la Fuente.-

- Se establece un método para determinar las áreas de los fotopicos y los fondos debajo de ellos. En este trabajo se usa el método descrito en el Anexo II.
- Se coloca la fuente radiactiva cuya actividad se va a determinar, sobre el cono de madera como se indica en la figura V.1, de tal manera que la cara de la fuente, marcada con el nombre del isótopo, Mo-99, quede viendo hacia el detector.
- Se detecta durante un tiempo t tal que en las áreas de los fotopicos se registren 20 000 o mas pulsos. El área del i -ésimo fotopico de energía E_i del radisótopo cuya actividad se desea medir se denota por, N_i y el fondo debajo de él, por F_i donde $i = 1, 2, 3, \dots$
- Se calcula el error e_{N_i} de N_i con la fórmula:

$$e_{N_i} = \frac{\sqrt{2(N_i + F_i) - N_i}}{N_i} \times 100 \quad (\%) \quad (1)$$

Cálculo del Error Instrumental del Sistema de Detección.-

Se determina el error instrumental e_s del sistema de detección de la siguiente manera:

- Se coloca una fuente de Cs-137, con actividad entre uno a diez microcuries, sobre el cono de madera como se ilustra en la figura 1.
- Se toman diez medidas con tiempos de detección iguales de tal manera que en el fotopico de 662 kev se acumulen 20 000 o más cuentas.
- Se calculan las áreas n_i de los fotopicos de 662 kev de cada uno de estos espectros con el método establecido en el Anexo II.
- Se calcula la desviación estandard S de dichas áreas con la relación:

$$s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{10} (n_i - \bar{n})^2}{9}} \quad (2)$$

donde:

\bar{n} = Promedio aritmético de las n_i .

- Se calcula e_s con la relación:

$$e_s = \frac{s}{\bar{n}} \times 100 \quad (\%) \quad (3)$$

$$e_s = 4\% \quad (6)$$

Cálculo de los Factores de Corrección Para Aplicarse a las Áreas N_i .

- Se calcula el área total del espectro sumando las cantidades de pulsos registrados por todos los canales que abarca dicho espectro. Esta área se denota con N .
- Se calcula el factor de corrección C_a , por apilamiento de pulsos dado por:

$$C_a = \exp\left(\frac{\bar{\tau} N}{t}\right) \quad (4)$$

donde:

- $\bar{\tau}$ = Ancho del pulso de salida del amplificador lineal en el 10% de su altura = 10 seg. ⁽⁶⁾
- t = Tiempo de detección.

- Se calcula el factor de corrección C_m , por decaimiento durante el tiempo de detección con la fórmula:

$$C_m = \frac{\lambda t}{1 - \exp(-\lambda t)} \quad (5)$$

donde:

λ = Constante de decaimiento del radisótopo de interés.

- Se calcula el factor de corrección C_{ad} , por atenuación y por variación en la distancia desde la fuente al detector, con la fórmula:

$$C_{ad} = \left(1 + \frac{2\Delta d}{d}\right) \exp(\mu_{0i} d + \mu_i d) \quad (6)$$

donde:

Δd = Grosor de la base de la cavidad del soporte de la fuente ilustrado en la figura IV.1 (ver el Anexo IV) = 0.13 cm.

d = Distancia de la fuente al detector = 13.51 cm.

μ_{0i} = Coeficiente de atenuación lineal del aire para fotones de energía E_i .

μ_i = Coeficiente de atenuación lineal del material del soporte de la fuente radiactiva para fotones de energía E_i .

Cálculo de la actividad del Radisótomo de Interés.-

- Para cada una de las energías E_i del radisótomo de interés, se calculan las actividades A_i , con las áreas N_i , de los correspondientes fotopicos cuyo factor de emisión gamma, $P_{\gamma i}$, sea mayor o igual al 5%. Esto se hace con la fórmula:

$$A_i = \frac{N_i C_a C_m C_{ad}}{3.7 \times 10^4 P_{\gamma i} \epsilon_i t} \quad (7)$$

donde:

ϵ_i = Eficiencia del sistema de detección en la energía E_i .

- Se determina el error e_{A_i} de A_i con la relación:

$$e_{A_i} = \sqrt{e_{N_i}^2 + e_{P_{\gamma i}}^2 + e_{\epsilon_i}^2 + e_s^2} \quad (8)$$

donde:

$e_{P_{\gamma i}}$ = Error del factor de emisión gamma en la energía E_i (10).

e_{ϵ_i} = Error en la determinación de la eficiencia del sistema de detección en la energía $E_i = 5\%$ (6).

- Se calcula la media pesada A de las A_i con la relación:

$$A = \frac{\sum_i \frac{A_i}{e_{A_i}^2}}{\sum_i \frac{1}{e_{A_i}^2}} \quad (9)$$

- Se calcula el error e_A de A con la relación:

$$e_A = \sqrt{\frac{1}{\sum_i \frac{1}{e_{A_i}^2}}} \quad (10)$$

- La actividad del radisótomo de interés se expresa como:

$$A \pm e_A$$

ANEXO VI.ERROR INVOLUCRADO EN EL CALCULO DEL DECAIMIENTO DE UNA FUENTE RADIACTIVA.

El cambio de actividad de una fuente radiactiva con el paso del tiempo obedece a la conocida ecuación⁽¹⁰⁾:

$$A = A_0 \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right) \quad (1)$$

donde:

A_0 = Actividad inicial

t = Tiempo transcurrido.

A = Actividad en el tiempo t

$T_{1/2}$ = Vida media del radisótomo en cuestión.

El error involucrado en este cálculo se encuentra con el método de propagación de errores⁽⁹⁾.

Sean:

σ_{A_0} = Desviación estandard de A_0 .

σ_t = Desviación estandard de t .

σ_A = Desviación estandard de A .

σ_T = Desviación estandard de $T_{1/2}$.

y sean todas las variables involucradas en la ecuación (1) mutuamente independientes. Entonces:

$$\sigma_A^2 = \sigma_{A_0}^2 \left(\frac{\partial A}{\partial A_0}\right)^2 + \sigma_t^2 \left(\frac{\partial A}{\partial t}\right)^2 + \sigma_T^2 \left(\frac{\partial A}{\partial T_{1/2}}\right)^2 \quad (2)$$

de(1):

$$\frac{\partial A}{\partial A_0} = \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right) \quad (3)$$

$$\frac{\partial A}{\partial t} = A_0 \left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}\right) \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right) \quad (4)$$

$$\frac{\partial A}{\partial T_{1/2}} = A_0 \left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}^2} t\right) \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right) \quad (5)$$

Sustituyendo (3), (4) y (5) en (2):

$$\sigma_A^2 = \sigma_{A_0}^2 \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right)^2 + \sigma_{t A_0}^2 \left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}}\right)^2 (\exp(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t))^2 + \sigma_{T A_0}^2 \left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right)^2 (\exp(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t))^2 \quad (6)$$

Dividiendo entre A^2 y arreglando se tiene:

$$\frac{\sigma_A^2}{A^2} = \frac{\sigma_{A_0}^2}{A_0^2} + \left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right)^2 \left(\frac{\sigma_t^2}{t^2} + \frac{\sigma_T^2}{T_{1/2}^2}\right) \quad (7)$$

Haciendo:

e_A = Error porcentual de A

e_{A_0} = Error porcentual de A_0

e_t = Error porcentual de t

e_T = Error porcentual de $T_{1/2}$

se tiene:

$$e_A = \sqrt{e_{A_0}^2 + \left(\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t\right)^2 (e_t^2 + e_T^2)} \quad (8)$$

TABLA I.- Resolución del Sistema de Detección. Las energías corresponden al Eu-152.

ENERGIA (kev)	RESOLUCION (kev)
121.779	3.452
244.693	3.843
344.272	3.036
411.111	5.572
443.979	4.464
778.890	3.461
867.38	4.610
964.05	3.478
1085.83	4.188
1112.08	3.719
1403.03	3.626
Resolución Promedio = 3.950 kev \pm 18 %	

TABLA II.- Calibración en Energía y Eficiencia del Sistema de Detección⁽⁶⁾.

Isótopo	Energía (keV)	Nº de Canal	Error en la Eficiencia e_i (%)	Eficiencia ϵ_i (cuentas/gamma) $\times 10^{-4}$
Am-241	59.537	33	2.988	3.946
Co-57	122.063	68	2.939	12.219
Co-57	136.476	76	2.960	12.355
Na-22	1274.540	708	3.020	1.64
Cs-137	661.645	368	2.970	2.518
Mn-54	834.827	464	2.958	2.020
Co-60	1173.238	651	2.953	1.363
Co-60	1332.501	740	2.957	1.110
Ba-133	53.155	29	7.092	3.321
Ba-133	276.397	153	3.191	7.732
Ba-133	302.851	168	3.166	6.818
Ba-133	356.005	197	3.159	5.374
Ba-133	383.851	213	3.172	5.010
Eu-152	121.779	67	3.374	12.634
Eu-152	244.693	135	3.413	8.402
Eu-152	344.272	191	3.375	5.824
Eu-152	411.111	228	3.703	4.485
Eu-152	443.979	246	3.550	4.357
Eu-152	778.890	432	3.409	2.196
Eu-152	867.38	481	3.646	1.982
Eu-152	964.05	535	3.407	1.724
Eu-152	1085.83	603	3.497	1.252
Eu-152	1112.08	617	3.420	1.440
Eu-152	1408.03	782	3.410	1.022

TABLA III.- Tiempos de detección necesarios para medir, con un 10% de precisión, las actividades de las impurezas esperadas en una fuente de 10 μ Ci de Mo-99.

Isótopo	Energía E (kev)	Factor Gamma P_f (%)	Eficiencia del Sistema ϵ ($\frac{\text{cuentas}}{\text{gamma}} \times 10^{-4}$)	Actividad de Imp. D_m (Bq)	Medida de Fondo en la Energía E F ($\frac{\text{cuentas}}{\text{gamma}}$)	Tiempo de Detección t (seg)
Te-132	230	90.0	8.939	14.8	3.34	4.72×10^6
I-132	670	144.0	2.495	14.8	0.43	3.06×10^6
I-131	284.3	6.2	7.469	18.5	2.44	6.65×10^8
I-131	364.48	81.6	5.269	18.5	4.44	1.40×10^7
I-131	636.973	7.12	2.726	18.5	0.52	8.07×10^8
Ru-103	497.08	89.5	3.909	18.5	2.21	1.06×10^7
Ru-103	610.33	5.64	2.954	18.5	0.91	1.92×10^9

TABLE IV.- Tiempos de detección necesarios para medir, con un 10% de precisión, las actividades de impurezas esperadas en una fuente de 1.1 mCi de Mo-99 después de haber decaído durante 45 días.

Isótopo	Energía E (kev)	Factor Gamma P_{γ} (%)	Eficiencia del Sistema ϵ ($\frac{\text{cuentas}}{\text{gamma}}$) $\times 10^{-4}$	Actividad de Imp. D_m (Bq)	Medida de Fondo en la Energía E F ($\frac{\text{cuentas}}{\text{gamma}}$)	Tiempo de Detección t (seg)
Te-132	230	90.0	8.939	0.01	0.12	3.71×10^{11}
I-132	670	144.0	2.495	0.01	0.03	4.65×10^{11}
I-131	284.3	6.2	7.469	49.21	0.09	3.51×10^6
I-131	364.48	81.6	5.269	49.21	0.07	3.60×10^4
I-131	636.973	7.12	2.726	49.21	0.03	3.68×10^6
Ru-103	497.08	89.5	3.909	1087.8	0.03	3.04×10^2
Ru-103	610.33	5.64	2.954	1087.8	0.03	2.38×10^4

TABLA V.- Medidas de actividad equivalente del Bi-214 existente en el fondo ambiental.

Fecha de la Detección	Tiempo de Detección (seg)	Actividad de Bi-214 (μCi)	Error (%)
20- V -85	2.0×10^5	1.2×10^{-3}	11.87
5- VI-85	4.0×10^5	1.2×10^{-3}	9.86
31-VII-85	2.0×10^5	1.2×10^{-3}	12.21
19-VIII-85	2.0×10^5	1.3×10^{-3}	11.26
27- IX-85	2.52×10^5	1.1×10^{-3}	12.00

Actividad media pesada de Bi-214 = $1.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci} \pm 5.1\%$

TABLA VI.- Constantes usadas en los cálculos de las medidas de las impurezas de I-131, Ru-103 y Te-132 en Mo-99. Aquí se muestran los valores del factor de emisión gamma (P_γ), el error en este factor (e_{P_γ}), la eficiencia del sistema de detección (\mathcal{E}), los coeficientes de atenuación másica del aire (μ/P) y del polietileno (μ/P), así como el factor de corrección por atenuación y variación en la distancia, en función de la energía.

Energía (kev)	P_γ (5,8)	e_{P_γ} (5,8)	\mathcal{E} (6)	Coeficientes de Atenuación (8)		C_{ad} (con d = 0.13 cm)
	(%)	(%)	(cuentas gamma $\times 10^{-4}$)	Aire μ/P (cm^2/g)	Polietileno μ/P (cm^2/g)	
Mo-99.- $T_{1/2} = 2.7471$ días $\pm 0.03\%$ (5)						
140.511	91.0	0.33	12.222	0.1394	0.1574	1.0501
181.09	6.09	1.64	10.729	0.1279	0.1379	1.0464
366.44	1.19	2.52	5.238	0.0993	0.1134	1.0409
739.47	12.28	0.81	2.303	0.0737	0.0843	1.0360
Ru-103.- $T_{1/2} = 39.255$ días $\pm 0.04\%$ (5)						
497.08	89.50	0.7	3.909	0.0872	0.0998	1.0389
610.33	5.64	3.2	2.954	0.0800	0.0915	1.0373
Bi-214.- $T_{1/2} = 165 \times 10^{-6}$ seg; Ra-226, $T_{1/2} = 1600$ años (8)						
609.3	47.0		2.954			
I-131.- $T_{1/2} = 8.021$ días $\pm 0.012\%$ (5)						
284.3	6.2	1.0	7.459	0.1162	0.1248	1.0438
364.48	81.6	0.7	5.263	0.0995	0.1136	1.0416
636.973	7.12	0.8	2.726	0.0787	0.0900	1.0370
Te-132.- $T_{1/2} = 77.7$ horas (8)						
230	90		8.939	0.1182	0.1346	1.0457
I-132.- $T_{1/2} = 2.26$ horas (8)						
670	144		2.495	0.0771	0.0882	1.0367

Otras constantes usadas son:

d = Distancia fuente-detector = 13.51 cm.

ρ = Densidad del material de los soportes de las fuentes = 1.35 g/cm^3 (6).

ρ_a = Densidad del aire en el C.N. = $8.62 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$ (6).

e_e = Error en la eficiencia del sistema de detección = 5% independientemente de la energía.

e_i = Error instrumental del sistema de detección = 4% (6).

τ = Ancho de los pulsos a la salida del amplificador en el 10% de su altura = 1.0×10^{-5} seg.

TABLA VII.- Medida de la actividad de Mo-99 de las fuentes elaboradas a partir de los embarques cuyas fechas de recepción por la Gcía. de Materiales radiactivos del ININ aparecen en la primera columna. Cada una de estas fuentes se elaboró con 10 μ l de solución tomados del embarque correspondiente.

Fecha del Embarque	Fecha de la Medida	Tiempo Transcurrido entre la fecha del embarque y la fecha de la medida (días)	Tiempo de detección (seg) $\times 10^4$	Actividad en la fecha de la medida (μ Ci)	Actividad en la fecha del embarque (mCi)
24-VI-85	5-VIII-85	42 \pm 0.6%	2.0	0.0340 \pm 3.86%	1.361 \pm 7.44%
1-VII-85	13-VIII-85	44.0 \pm 0.6%	2.0	0.0232 \pm 3.99%	1.538 \pm 7.49%
8-VII-85	21-VIII-85	44.0 \pm 0.6%	2.0	0.0195 \pm 4.10%	1.293 \pm 7.53%
9-IX-85	11-IX-85 a las 9:30 hrs.	1.9	0.4	6.830 \pm 3.71%	0.011 \pm 3.86%

TABLA VIII.- Medida de la concentración de la impureza de I-131 en las fuentes de Mo-99. Las actividades de I-131 se obtuvieron a partir de los mismos espectros medidos en las fechas reportadas en la segunda columna de la Tabla VII.

Fecha del Embarque	Actividad en la Fecha de la Medida (μ Ci)	Actividad en la Fecha del Embarque (μ Ci)	Razón de Actividades de I-131 a Mo-99 en la Fecha del Embarque $\left(\frac{\mu\text{Ci de I-131}}{\text{mCi de Mo-99}}\right)$
24- VI-85	0.0021 \pm 72.84%	0.079 \pm 72.87%	0.058 \pm 73.25%
1-VII-85	0.0045 \pm 50.0%	0.2016 \pm 60.04%	0.131 \pm 60.5%
8-VII-85	0.0100 \pm 69.84%	0.4434 \pm 69.87%	0.353 \pm 70.27%

TABLA IX.- Medida de la concentración de la impureza de Ru-103 en las fuentes de Mo-99. Las actividades de Ru-103 se obtuvieron a partir de los mismos espectros medidos en las fechas reportadas en la segunda columna de la Tabla VII.

Fecha del Embarque	Actividad en la Fecha de la Medida (μ Ci)	Actividad en la Fecha del Embarque (μ Ci)	Razón de Actividades de Ru-103 a Mo-99 en la Fecha del Embarque $\left(\frac{\mu\text{Ci de Ru-103}}{\text{mCi de Mo-99}}\right)$
24- VI-85	0.0024 \pm 6.85%	0.0050 \pm 6.86%	0.0037 \pm 9.69%
1-VII-85	0.00072 \pm 12.64%	0.0016 \pm 12.65%	0.0010 \pm 14.70%
8-VII-85	0.0016 \pm 7.39%	0.0035 \pm 7.40%	0.0028 \pm 10.46%

TABLA X.- Medida de la concentración de la impureza de Te-132 en la fuente de Mo-99 que se elaboró a partir del embarque del 9-IX-85.

Fecha del Embarque	Fecha de la Medida	Tiempo transcurrido entre la Fecha del Embarque y la Fecha de la Medida (días)	Tiempo de Detección (seg)	Actividad en la Fecha de la Medida (μ Ci)	Actividad en la Fecha de la Embarque (μ Ci)
9-IX-85	13-IX-85 a las 17:45 hrs.	4.24	331945.0	0.0003 \pm 36.33%	0.0007 \pm 36.34%

Razón de Actividad de Te-132 a Mo-99 en la Fecha del Embarque = 0.063 μ Ci de Te-132 por mCi de Mo-99

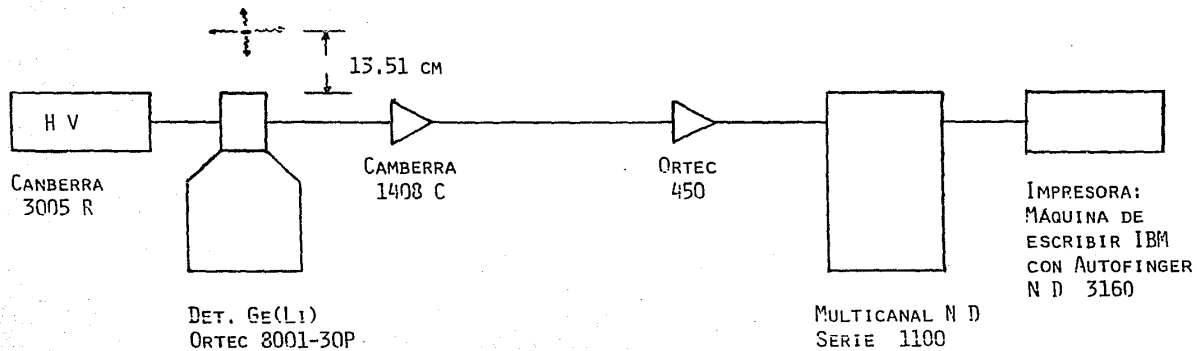


FIGURA 1 SISTEMA DE CONTEO CON DETECTOR DE Ge(Li) USADO PARA LA MEDIDA DE IMPUREZAS

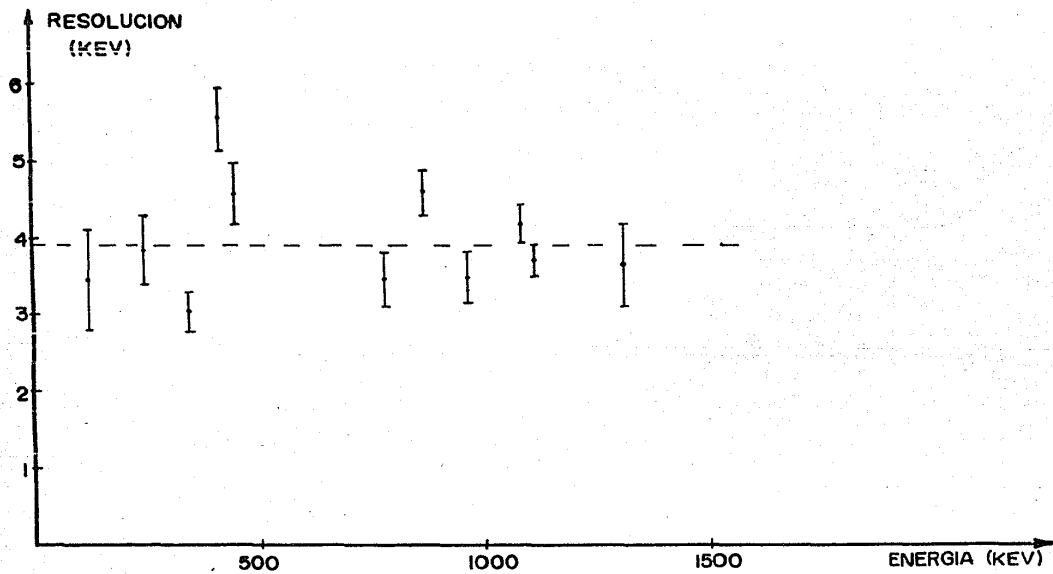
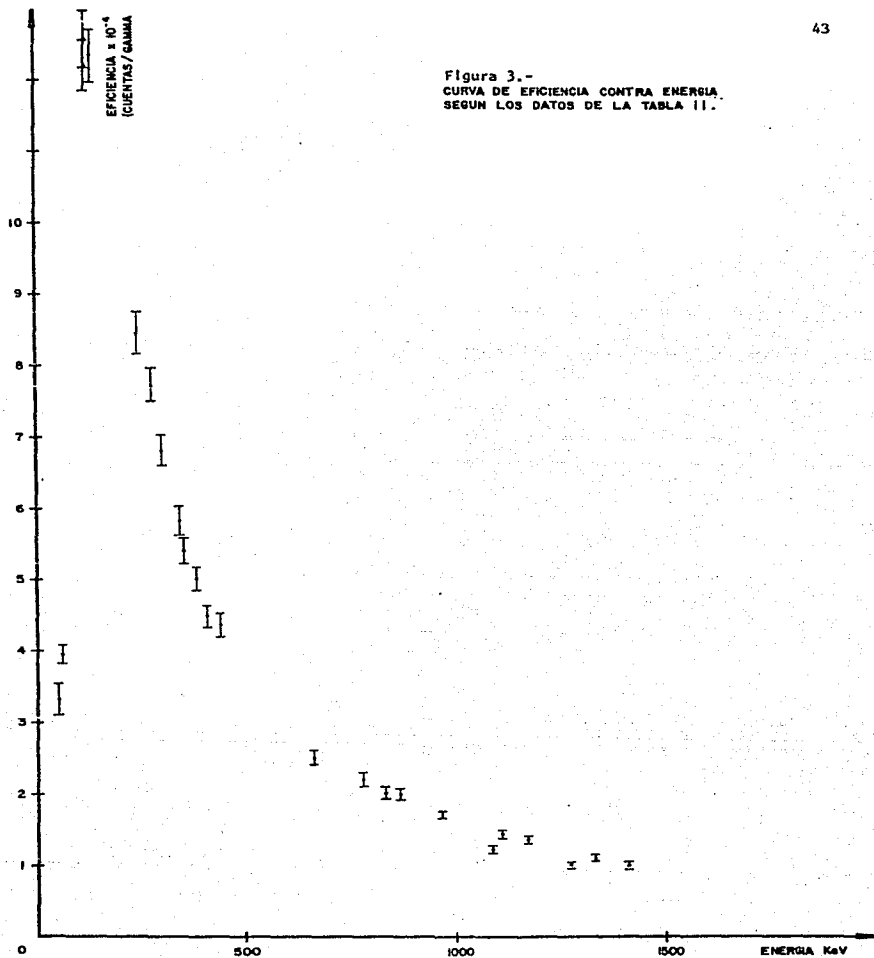


FIGURA 2.- RESOLUCION DEL SISTEMA CONTRA ENERGIA

Figura 3.-
CURVA DE EFICIENCIA CONTRA ENERGIA,
SEGUN LOS DATOS DE LA TABLA II.



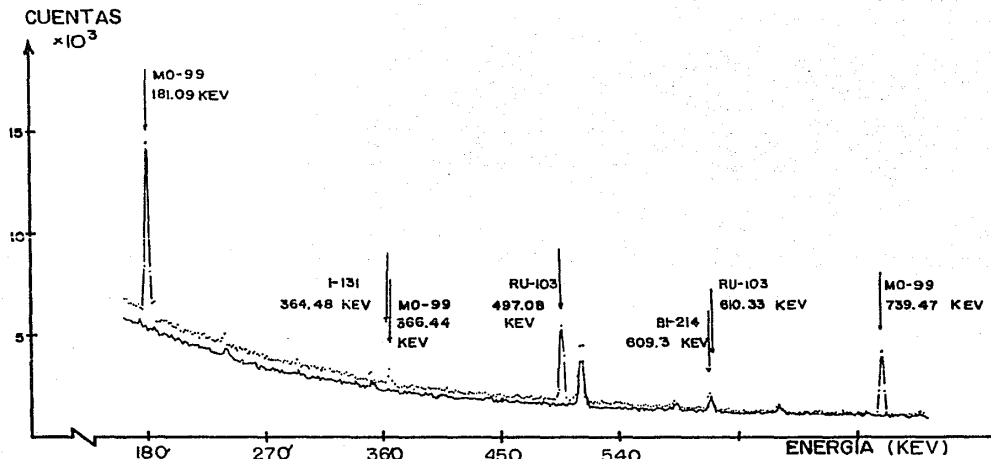


FIGURA 4.- GRAFICA DE LOS ESPECTROS DE FONDO Y DE MO-99. LA GRAFICA CONTINUA CORRESPONDE AL FONDO NATURAL Y LA PUNTEADA A UNA MUESTRA DE MO-99.

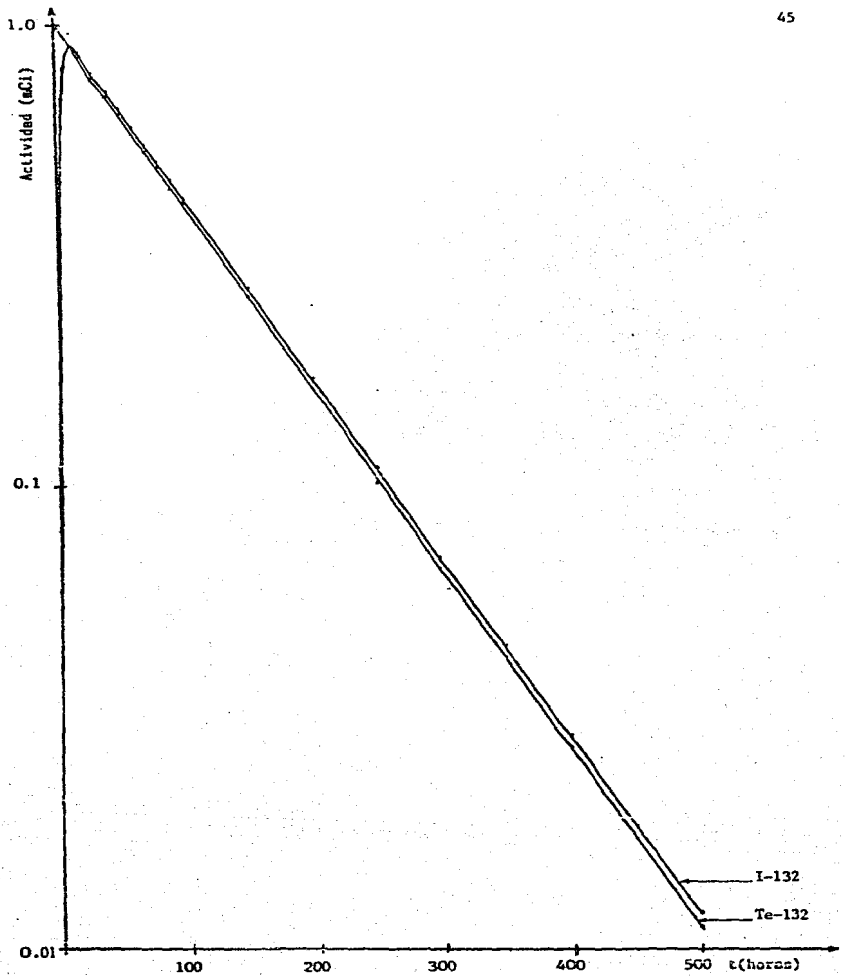


Figura 5.- Decaimiento de una fuente de 1mCi de Te-132 y el crecimiento de su hijo, el I-132 .

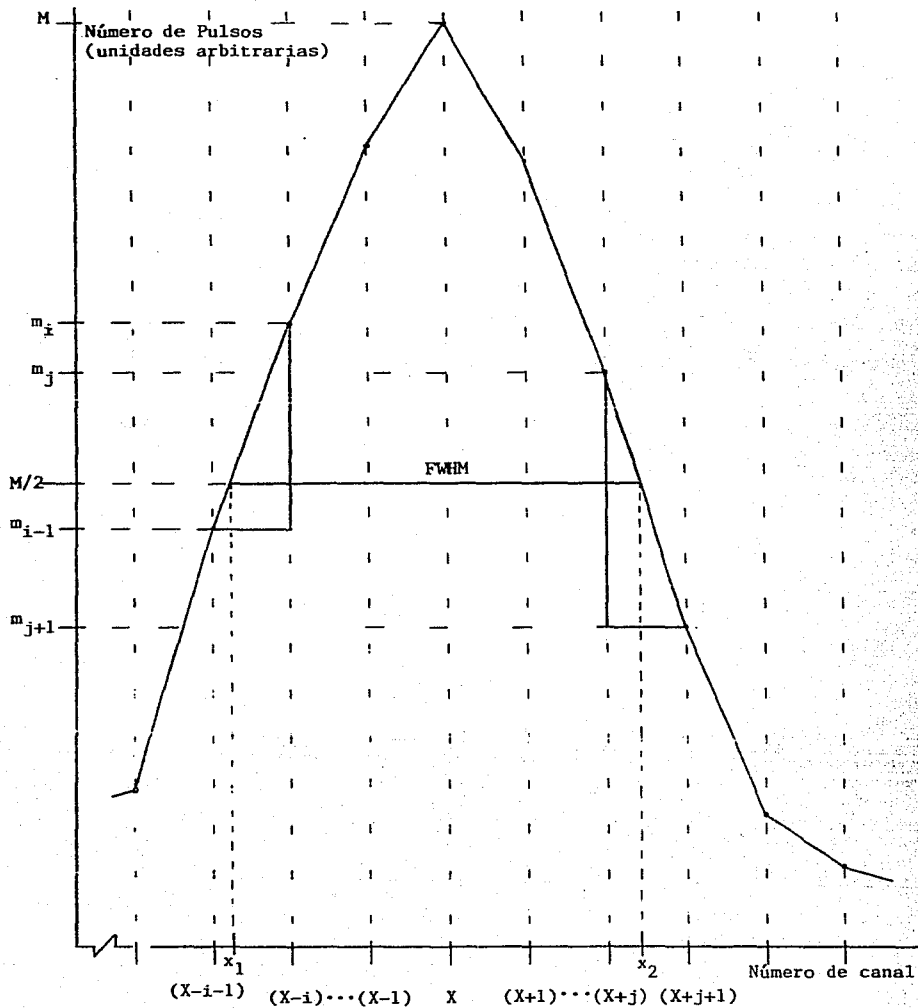


Figura I.1.- Procedimiento para determinar el FWHM de un fotopico.

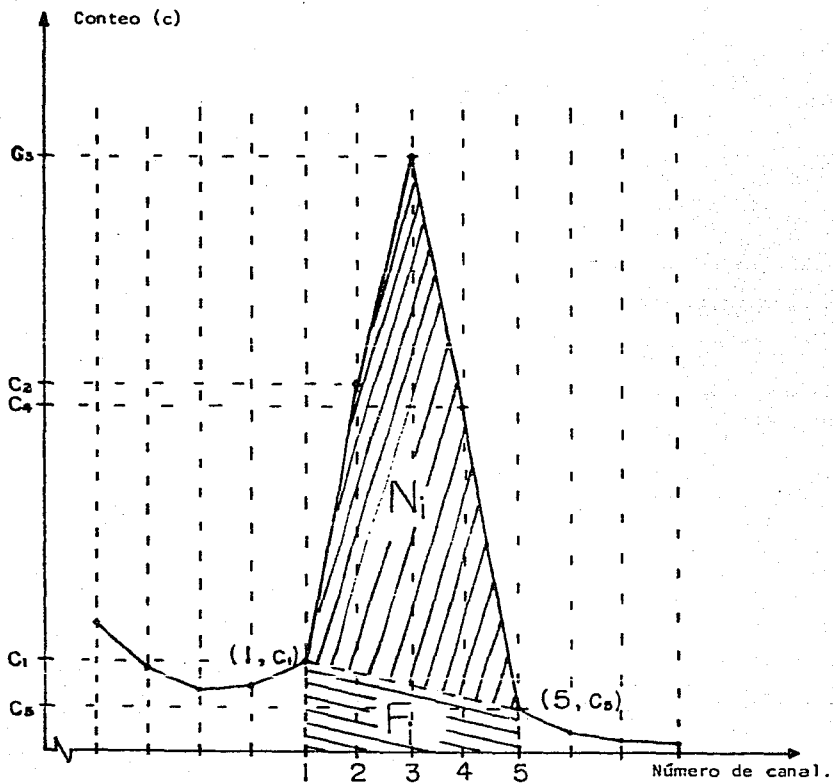
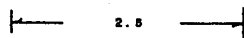
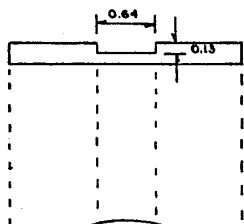
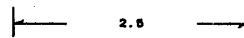
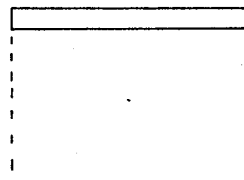


Figura 11.1.- Sección de un espectro mostrando al i -ésimo fotopico. La parte superior designada con N_i es el área del fotopico y la parte inferior designada con F_i es el conteo de fondo bajo él.

Cara "A" con etiqueta en donde se especifica el nombre del isótopo y el número de la fuente.



Cara "B" con etiqueta en donde se especifica la fecha.



acotaciones
en cm.

Figura IV.1.- Soporte para la preparación de fuentes para hacer medidas en sistemas de conteo con detector de Ge(Li). Material: Plástico P.G. Blanco.

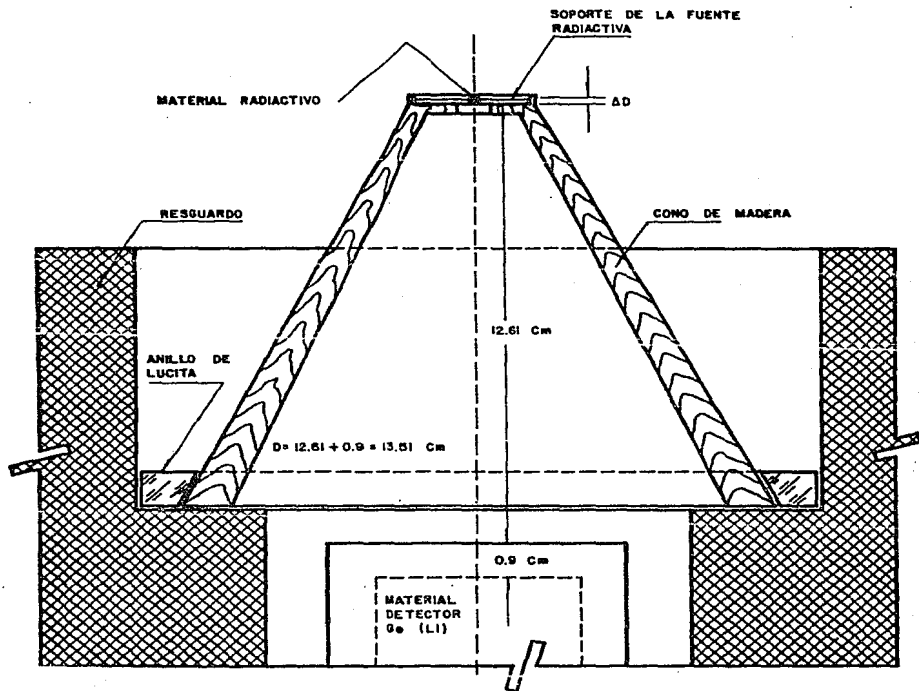


FIGURA V.1.- CONO DE MADERA SOPORTANDO A LA FUENTE RADIATIVA A UNA DISTANCIA FIJA D, DEL DETECTOR

Referencias.-

- 1.-) I.A.E.A., Report N° 128, "Radioisotope Production and Quality Control, Vienna (1971).
- 2.-) Bulbulian S., "Comportamiento Químico del Tc-99m", Soc. Quim. Mex., Vol.29 N° 1, Enero-Febrero(1985).
- 3.-) De Halter M.E.R.A. y Bulbulian S., "El Tecnecio, Creación Humana", Ciencia y Desarrollo, N° 67, 129 (1986).
- 4.-) Robert L. Ayres and Alan T. Hirsfeld, "Radioactivity Standardization of Tc-99m and Mo-99", Int. J. Appl. Radiat. Isot. Vol. 33 (1982) pp. 835 to 841.
- 5.-) L.M.R.I., "Table de Radionucléides", N. Coursol. Décembre (1982).
- 6.-) Cortés A., "Calibración en Energías y Eficiencias del Sistema de Conteo con Detector de Ge(Li)", ININ, Informe Técnico AI-85-418, Abril (1985).
- 7.-) J. A. Cooper, "Factors Determining The Ultimate Detection Sensitivity of Ge(Li) Gamma-Ray Spectrometers", Nucl. Instr. and Meth., 82 (1970).
- 8.-) U.S. Department of Health, Education Welfare, Public Health Service, "Radiological Health Handbook", Revised Edition, January (1970).
- 9.-) Philip R. Bevington, "Data Reduction and Error Analysis For The Physical Sciences", McGraw-Hill Book Company, New York, (1969).
- 10.-) Glenn F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", John Willey and Sons (1979), p. 673.
- 11.-) Robley D. Evans, "The Atomic Nucleus", McGraw-Hill Book Company, Inc, (1955) p. 482.
- 12.-) Kaj Heydorn and Witold Lada, Analytical Chemistry, 44(14), (1972).
- 13.-) ANSI, "Calibration and Usage of Germanium Detectors for Measurement of Gamma-Ray Emission of Radionuclides", N42.14-1978.
- 14.-) Cortés A., Paredes L. y Ramírez C., ININ, Informe Técnico AII-82-57, Diciembre (1982).
- 15.-) Operating Instructions Eppendorf Pipette, B315-AE, Eppendorf Geratebau Neetheler+Hinze GmbH.2000 Hamburg 63 (Hummelsbuttel), Postfach 63 03 24.