



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO**

---

**FACULTAD DE QUÍMICA**

**DETERMINACIÓN DEL COCIENTE  
ISOTÓPICO  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  EN MATERIAL  
PARTICULADO  $\text{PM}_{2.5}$  COMO TRAZADOR  
DE INTERCAMBIOS ATMOSFÉRICOS**

**TESIS**

**QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE  
INGENIERO QUÍMICO**

**PRESENTA:**

**GERARDO ROJAS LÓPEZ**

**DIRECTORA DE TESIS:**

**DRA. CARMEN GRISEL MÉNDEZ GARCÍA**

**CIUDAD DE MÉXICO**

**2021**



Universidad Nacional  
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

**Biblioteca Central**



**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 esta 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.

**JURADO ASIGNADO**

**PRESIDENTE: MARÍA RAFAELA GUTIÉRREZ LARA \_\_\_\_\_**

**VOCAL: HARLEM HAYDEE CRUZ BAILON \_\_\_\_\_**

**SECRETARIO: CARMEN GRISEL MENDEZ GARCIA \_\_\_\_\_**

**1er. SUPLENTE: VICTOR BARRERA GUZMAN \_\_\_\_\_**

**2do. SUPLENTE: ALEJANDRA MENDOZA CAMPOS \_\_\_\_\_**

**SITIO DONDE SE DESARROLLO EL TEMA**

**Este trabajo se realizó en el Instituto de Física, en el Laboratorio de Isótopos Cosmogénicos y en el Laboratorio Nacional de Espectrometría de Masas con Aceleradores.**

## **Agradecimientos**

Primero que todo quiero agradecer a Dios a que estoy cumpliendo una meta importante en mi vida, sin bien no fue fácil debido a todas las adversidades que tuve que afrontar, pero siempre me ayudo a encontrar motivación y fuerzas para salir adelante y concluir mis estudios.

Quiero agradecer a tres personas muy importantes en mi vida que han estado siempre apoyándome y animando a cumplir mis metas, que son mi madre Susana López Arévalo, mi padre Gerardo Rojas Garrido y mi tía Diana López Arévalo, gracias por siempre tener confianza y creer en mí

A mi abuela Soledad Arévalo Meléndez por todo el cariño que me ha brindado durante toda mi vida, así como a mi abuelo Ricardo López Casados, que, si bien a partir de mi etapa de preparatoria ya no estuvo conmigo, siempre el cariño brindado a su manera, sus palabras, así como la manera en cómo se expresaba de mí haciéndome parecer el mejor muchacho del mundo siempre fueron una fuente de motivación, toda mi vida te recordare con mucho cariño

A mis tías, tíos y primos por ser gran parte de mi familia

A todos los amigos que fui conociendo durante esta etapa universitaria, y con los que viví grandes momentos, pero en especial a Brenda, Sarahí, Itzel e Israel que, a pesar del tiempo, la distancia y las responsabilidades de cada uno, seguimos en contacto y conservando una gran amistad. Así como recordando siempre al que fue mi mejor amigo William Martínez que desgraciadamente te toco partir muy joven, pero te recuerdo con mucha estima.

A mí directora de tesis, la Doctora Grisel Méndez por darme la oportunidad de trabajar y realizar este proyecto con ella, y por todo el apoyo otorgado a nivel escolar y personal, sin duda alguna es una gran profesionalista, pero mucho mejor como persona.

A los miembros del jurado por tomarse el tiempo para la revisión de la tesis, así como dar sus correcciones de manera que se tenga una mejor comprensión.

A el personal del Laboratorio de aerosoles y del Laboratorio Nacional de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA), del Instituto de Física de la UNAM, por permitir la realización de este proyecto, al Dr. Santiago Padilla, al Físico Arcadio Huerta, al Lic. Juan Carlos Pineda y al Sr. Sergio Martínez por su amabilidad y por estar siempre a disposición de ayudarme cuando lo necesitaba.

Por último, pero no menos importante, quiero agradecer a una persona muy especial, que siempre estuvo conmigo en las buenas, en las malas, que se volvió mi mejor amiga, mi confidente y siempre estuvo conmigo cuando la necesite, Ana Karen Martínez Ortiz.

Agradezco al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACYT) por el apoyo financiero para el equipamiento y la consolidación del LEMA, a través del proyecto número 314857 de la Convocatoria “Apoyos Para Acciones De Mantenimiento de Infraestructura Científica en Laboratorios Nacionales 2020. Agradezco a la Dirección General de Asuntos del Personal Académico (DGAPA) por los recursos otorgados para la realización de esta investigación en el marco del proyecto PAPIIT IG100619 y también doy mi total agradecimiento a la Coordinación de la Investigación Científica de la UNAM por la beca otorgada para el desarrollo de esta tesis.

## Índice General

Introducción.....	1
1. Antecedentes.....	3
1.1 Radioactividad.....	3
1.2 Producción de radioisótopos.....	4
1.3 Radioisótopos cosmogénicos.....	5
1.3.1 Producción atmosférica (origen meteórico) .....	5
1.3.2 Producción de $^{10}\text{Be}$ .....	8
1.3.3 Producción $^{26}\text{Al}$ .....	10
1.3.4 Producción in situ.....	10
1.4 Aplicaciones.....	10
1.5 Medición de radioisótopos cosmogénicos.....	13
1.5.1 Espectrometría de masas.....	15
1.5.2 Espectrometría de masas con aceleradores (AMS).....	17
1.5.2.1 Zona de baja energía.....	18
1.5.2.2 Fuente de iones.....	18
1.5.2.3 Inyector.....	19
1.5.2.4 Acelerador.....	19
1.5.2.5 Zona de alta energía.....	20
1.5.2.6 Sistema de detección.....	20
2. Justificación.....	22
3. Objetivos.....	23
4. Metodología.....	24
4.1 Pretratamiento de las muestras.....	25
4.2 Digestión de la muestra.....	26
4.3 Separación de Fe de la muestra.....	26
4.4 Separación de Be y Al.....	28
4.5 Obtención del precipitado $\text{Be}(\text{OH})_2$ .....	29
4.6 Obtención del precipitado $\text{BeO}$ .....	30
4.7 Obtención del precipitado $\text{Al}(\text{OH})_3$ .....	30

4.8 Obtención del precipitado $\text{Al}_2\text{O}_3$ .....	31
4.9 Sintonización del sistema AMS.....	32
4.10 Sistema de baja energía.....	32
4.11 Acelerador.....	33
4.12 Zona de alta energía.....	33
5. Análisis de datos.....	38
6. Resultados y discusión.....	41
6.1 Concentraciones de $^{10}\text{Be}$ en $\text{PM}_{2.5}$ en 2016.....	41
6.2 Determinación de la cantidad mínima de $\text{PM}_{2.5}$ necesaria para la medida de $^{26}\text{Al}$ mediante AMS.....	48
6.3 Concentraciones de $^{26}\text{Al}$ en $\text{PM}_{2.5}$ en 2016.....	50
6.4 Correlacionar las concentraciones de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$ , así como las concentraciones promedio de cada mes con los parámetros de radiación solar y temperatura.....	54
6.5 Cociente isotópico $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ .....	56
7. Conclusiones.....	62
8. Anexo I: Técnica por fluorescencia de rayos X (XRF).....	64
8.1 Sub anexo I.....	65
9. Anexo II.....	67
10. Bibliografía.....	69

## Índice de figuras

1.1. Tipos de radiaciones.....	4
1.2 Producción de $^{10}\text{Be}$ .....	9
1.3 Funcionamiento básico de un espectrómetro de masas.....	15
1.4 Esquema general de un espectrómetro de masas con aceleradores.....	17
1.5 Fuente de iones de tipo sputtering.....	18
4.1 Lugar de muestreo.....	24
4.2. Pretratamiento y digestión de la muestra.....	25
4.3. Acondicionamiento de la columna $\text{Cl}^-$ , y procesamiento para la eliminación de Fe.....	27
4.4. Acondicionamiento de la columna $\text{H}^+$ , y procesamiento para la colecta de Be y Al.....	28
4.5. Tratamiento para la obtención de hidróxido de berilio.....	29
4.6. Obtención del óxido de berilio.....	30
4.7. Obtención del hidróxido de aluminio.....	31
4.8. Obtención del óxido de aluminio.....	31
4.9. Espectro representativo del STD 5.1 de $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ .....	35
4.10. Espectro del representativo del STD 4.1 de $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ .....	35
4.11. Espectro representativo para un blanco de $^{10}\text{Be}$ .....	36
4.12. Espectro representativo para un blanco de $^{26}\text{Al}$ .....	36
6.1a. Concentración de $^{10}\text{Be}$ en el mes de enero.....	41
6.1b. Concentración de $^{10}\text{Be}$ en el mes de febrero.....	42
6.1c. Concentración de $^{10}\text{Be}$ en el mes de marzo.....	43
6.1d. Concentración de $^{10}\text{Be}$ en el mes de diciembre.....	44

6.2. Concentración de $^{10}\text{Be}$ en función de la altitud y latitud .....	46
6.3. Espectro de $^{26}\text{Al}$ para una muestra.....	49
6.4 Cociente isotópico $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ en $\text{PM}_{2.5}$ .....	57
a1.1. Descripción de XRF.....	64
a1.2. Curva de calibración.....	66
a2.1. Espectro de $^{10}\text{Be}$ adecuado.....	67
a2.2. Espectro de $^{10}\text{Be}$ no adecuado.....	67

## Índice de tablas

1.1. Radioisótopos cosmogénicos más importantes.....	7
1.2 Isótopos naturales del berilio.....	8
1.3 Isótopos naturales del aluminio.....	8
4.1. Parámetros para la medición de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$ .....	33
4.2. Parámetros para la medición de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$ .....	34
6.1. Concentración promedio de $^{10}\text{Be}$ .....	45
6.2. Resultados de análisis de varianza.....	45
6.3. Concentración promedio de $^{10}\text{Be}$ en otros trabajos.....	47
6.4. Concentración de $^{26}\text{Al}$ .....	50
6.5. Concentración de $^{26}\text{Al}$ por mes.....	51
6.6 Valores FE para $^{26}\text{Al}$ .....	52
6.7 Valores FE para $^{10}\text{Be}$ .....	53
6.8. Concentración promedio de $^{26}\text{Al}$ en otros trabajos.....	54
6.9 Coeficiente de correlación.....	55
6.10. Valores promedio de la temperatura y radiación solar.....	56
6.11 Coeficientes de correlación.....	56
6.12. Cociente isotópico $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ en otros trabajos.....	58
6.13 Cociente isotópico $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ sin considerar FE.....	58
6.14. Cociente isotópico $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ en el mes de diciembre.....	59
6.15. Porcentaje de error para el cociente $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ .....	60

6.16 Cociente isotópico para latitudes medias y altas.....	60
a1. Áreas obtenidas mediante el análisis XRF.....	66

## **Listado de acrónimos**

AMS: Espectrometría de masas con aceleradores por sus siglas en inglés.

CCL: Conteo centello líquido

CPG: Conteo proporcional de gases

ESA: Deflector electrostático de baja energía

FRX: Fluorescencia de rayos X

## Introducción

Existen diversas investigaciones respecto al análisis de las concentraciones de los radioisótopos cosmogénicos de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  debido a la importancia que estos presentan en diversos campos de la ciencia, ambos son considerados potenciales trazadores en el ambiente, especialmente, cuando se estudian en conjunto mediante la relación isotópica  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en estudios climatológicos.

La baja concentración natural de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ ; así como sus grandes periodos de semidesintegración, dificultan su medida, haciendo que la espectrometría de masas con aceleradores (AMS, por sus siglas en inglés), sea prácticamente la única técnica analítica para cuantificarlos. La técnica emplea en conjunto campos eléctricos, magnéticos y un acelerador de partículas, para la separación de especies moleculares y atómicas de acuerdo con su masa, evitando interferencias por elementos isóbaros. Antes de la medición se debe establecer un protocolo de extracción radioquímica óptimo, para extraer, separar y purificar los elementos de interés de la muestra, generalmente, estos procesos emplean resinas de intercambio iónico.

El capítulo 1 describe la parte teórica de los radioisótopos cosmogénicos como la producción, deposición, aplicaciones, relación, así como el fundamento y los componentes de AMS y el porqué es la mejor técnica para la medición de estos radioisótopos. El Capítulo 2 presenta la justificación del trabajo, por qué se considera importante este estudio, y que aplicaciones se pueden obtener de él. En el capítulo 3 se establecen los objetivos de este trabajo. En el capítulo 4 la metodología utilizada, en primera instancia para la extracción radioquímica y posteriormente para la medición de AMS, así como los parámetros que deben cumplirse para poder llevarse a cabo. En el capítulo 5 se presenta el análisis de datos mediante las ecuaciones que permiten convertir los datos obtenidos por AMS, en concentración en unidades de átomos/ $\text{m}^3$ . En el capítulo 6 se presentan los resultados obtenidos, así como su interpretación, análisis, y comparación con otros trabajos. En el capítulo 7, las conclusiones a las que se llegaron. Finalmente se presentan 2 anexos: en el anexo I con el fundamento de la técnica por fluorescencia

de rayos X (XRF) que fue utilizada para determinar la concentración de  $^{27}\text{Al}$  en la muestra, así como la curva de calibración que permitió encontrar esta concentración; por su parte, en el anexo II, se muestran los espectros de energía obtenidos en el sistema AMS de muestras adecuadas y las que no fueron tomadas en cuenta para el análisis del  $^{10}\text{Be}$ .

# CAPÍTULO 1

## Antecedentes

Se define como isótopos a la amplia variedad de átomos que presentan el mismo número de protones, pero difieren en el número de neutrones, por lo que se trata de un mismo elemento con diferente número de masa. Si los isótopos presentan descomposición radiactiva se clasifican en radioisótopos, mientras que los que no, se conocen como isótopos estables.

### 1.1 Radioactividad

A la emisión de partículas o radiación electromagnética del núcleo de un átomo, liberando una cantidad de materia y de energía que procede a la formación de un nuevo núcleo, se le llama radioactividad. Su unidad de medida es el Bequerel (1Bq = 1 desintegración/segundo), se desconoce el tiempo exacto en el cual esta ocurrirá. Una característica importante de estos núcleos, es la semivida ( $T_{1/2}$ ), que es el tiempo necesario para que el número de núcleos radioactivos se reduzca a la mitad [1], el cual puede ir desde una fracción de segundo hasta miles de millones de años.

La figura 1.1 muestra esquemáticamente los diferentes tipos de radiación, las cuales se describen a continuación:

Radiación alfa ( $\alpha$ ): consiste en la emisión de una partícula de helio (partícula  $\alpha$ ), el núcleo que emite este tipo de radiación perderá dos protones y dos neutrones. Por ejemplo, el  $^{238}\text{U}$  se desintegra a  $^{234}\text{Th}$ , emitiendo una partícula  $\alpha$ . La radiación alfa puede recorrer una distancia de apenas unos cuantos centímetros en el aire y puede ser detenida por una simple hoja de papel [2].

Radiación beta ( $\beta$ ): la partícula emitida es un electrón. La masa del núcleo formado no se modifica con la transformación de un neutrón en un protón. La radiación beta puede recorrer una distancia de unos cuantos metros en el aire, y puede ser detenida por ciertos materiales, por ejemplo, vidrio o madera [2].

Radiación gamma ( $\gamma$ ): es un tipo de radiación electromagnética que transporta el exceso de energía de un núcleo inestable. La radiación gamma acompaña a las transformaciones radiactivas alfa y beta, y tiene un fuerte poder penetrante. En el aire puede desplazarse varios metros y para poder detenerla es necesario grandes espesores de plomo o cemento [2].

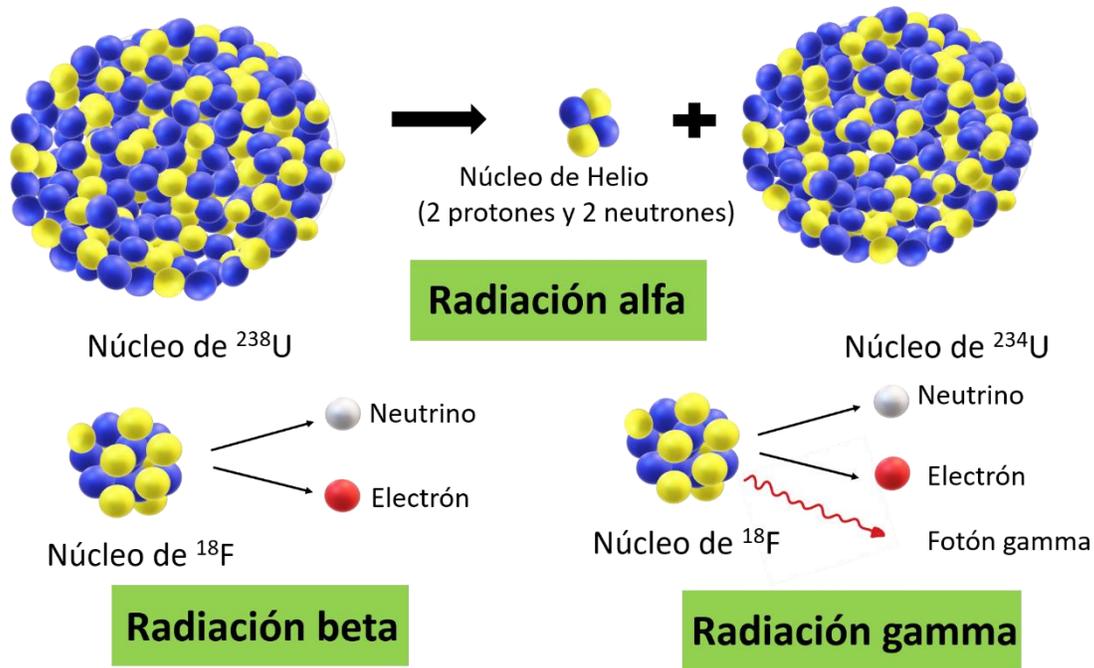


Figura 1.1. Tipos de radiaciones

## 1.2 Producción de radioisótopos

Los radioisótopos pueden producirse naturalmente o de manera artificial en reactores nucleares y aceleradores donde se presenta un alto flujo de protones y neutrones para llevar a cabo diferentes procesos químicos y así adopten la forma química requerida. Mientras que los producidos naturalmente pueden ser debido a las reacciones de nucleosíntesis de las estrellas o al bombardeo de partículas energéticas provenientes fuera de la Heliosfera llamadas rayos cósmicos.

### 1.3 Radioisótopos cosmogénicos

Cuando existe la interacción entre las partículas que forman los rayos cósmicos, con los elementos presentes en la atmósfera, se producen otros núcleos llamados cosmogénicos, por haber sido generados por partículas del cosmos exterior a nuestra Heliosfera [3]. Si bien, es la fuente principal, debido a que es la primera interacción entre partículas del cosmos con la materia terrestre y, además, que la atmósfera tan espesa no permite el paso de las partículas a la superficie terrestre, cuando algunas logran cruzar, la interacción de las partículas secundarias con la superficie terrestre da origen a la producción in situ [4, 5, 6].

Otras formas de producción de los radioisótopos cosmogénicos son:

- 1) Fuente extraterrestre: Muestras existentes en la tierra provienen de meteoritos, cometas y polvo cósmico [4, 5, 6].
- 2) Fuente radiogénica: Como consecuencia del decaimiento natural de U y Th [4, 5, 6].
- 3) Producción antropogénica: Proveniente de actividades humanas en ciencias nucleares y tecnología en la producción de  $^{26}\text{Al}$  [4, 5, 6].

#### 1.3.1 Producción atmosférica (origen meteórico)

Los rayos cósmicos son partículas cargadas tales como protones, núcleos de helio y, en menor proporción, diversos núcleos atómicos más pesados que viajan a velocidades próximas a la de la luz y se cree que provienen de las explosiones de las supernovas y de los hoyos negros. Durante este viaje por el espacio chocan con otros núcleos que se encuentran en su trayectoria [7].

La energía de estas partículas es muy elevada y se han llegado a detectar partículas con  $10^{20}$  eV en donde su flujo disminuye con la energía. Por ejemplo, las partículas con 1000 veces más energía que otras, presentan un flujo 10 millones de veces menor. Lo más abundante es la radiación primaria son los protones con una energía de unos 2 GeV [1].

Los protones de la radiación cósmica inciden con la exosfera constituida principalmente por núcleos de hidrógeno y helio y se produce la formación de otros núcleos y varias partículas inestables con una masa de unas doscientas setenta veces la del electrón llamadas piones, que pueden presentar una carga eléctrica positiva, negativa o neutra [1].

Una interacción protón – núcleo puede dar lugar a varios piones. Los piones no llegan a la superficie terrestre, pues su semivida es del orden de  $10^{-17}$  segundos, muchos inducen nuevas reacciones nucleares y el resto se desintegra en neutrinos y en partículas cargadas muy similares al electrón (aunque también pueden presentar carga positiva) y con una masa de unas doscientas seis veces a la del protón llamadas muones [1]. Los muones dan origen a la radiación cósmica secundaria ya que son la componente dominante de este tipo de radiación [8]. Si bien son inestables y pueden desintegrarse en electrones y neutrinos, muchos de ellos llegan a la superficie terrestre e interaccionan con los elementos componentes de la atmósfera (Nitrógeno, Oxígeno y Argón). Esta interacción conlleva a la producción de unos 20 radioisótopos cosmogénicos diferentes [1].

Algunos de estos radioisótopos cosmogénicos se presentan en la tabla 1.1, tanto la producción como la desintegración de estos radioisótopos es constante, por lo tanto, su acumulación en la superficie terrestre también lo es [1].

Tabla 1.1. Radioisótopos cosmogénicos más importantes [1]

<b>Radioisótopo producido</b>	<b>Semi-vida (años)</b>	<b>Producción media (átomos/m<sup>2</sup> año)</b>	<b>Cantidad total en la Superficie Terrestre</b>
<sup>3</sup> He	12.33	1.6 x 10 <sup>11</sup>	7kg
<sup>10</sup> Be	1.6 x 10 <sup>6</sup>	1.26 x 10 <sup>10</sup>	430 toneladas
<sup>14</sup> C	5730	7 x 10 <sup>11</sup>	75 toneladas
<sup>26</sup> Al	7.2 x 10 <sup>5</sup>	4.8 x 10 <sup>7</sup>	1.1 toneladas
<sup>32</sup> Si	104	5 x 10 <sup>7</sup>	2 kg
<sup>35</sup> S	0.24	4.8 x 10 <sup>8</sup>	4.5 gr
<sup>36</sup> Cl	3.01 x 10 <sup>5</sup>	5 x 10 <sup>8</sup>	15 toneladas
<sup>39</sup> Ar	269	4.2 x 10 <sup>11</sup>	

Como se puede observar en la tabla 1.1 entre este tipo de radioisótopos se encuentran el <sup>10</sup>Be y el <sup>26</sup>Al, ambos con una semi-vida alta ( $1.36 \pm 0.07$  Ma [9] y  $0.705 \pm 0.29$  Ma [10], respectivamente). Otra particularidad de estos radioisótopos es que dado su tipo de producción se encuentran en la naturaleza en concentraciones a nivel de ultra-traza. Ambas características hacen complicada la detección de estos radioisótopos.

Tanto el Be como el Al presentan otros isótopos, con una semivida muy corta, en comparación del <sup>10</sup>Be y <sup>26</sup>Al.

En la tabla 1.2 se muestra la comparación entre las principales características de los isótopos de Be, donde se resaltan la diferencia de los valores de semivida de los radioisótopos <sup>10</sup>Be y <sup>7</sup>Be, donde este último presenta una semivida en el orden de días por lo que su constante de desintegración es 10<sup>6</sup> veces mayor.

Tabla 1.2 Isótopos naturales del berilio [11]

Isótopo	<sup>7</sup> Be Radioactivo	<sup>9</sup> Be estable	<sup>10</sup> Be radioactivo
Abundancia natural		100%	
Concentración natural	~5mBq/m <sup>3</sup> aire		10 <sup>7-10</sup> átomos/kg
Semi-vida (T <sub>1/2</sub> )	53.3 días		1.5 x 10 <sup>6</sup> años
Constante de desintegración (λ)	1.5 x 10 <sup>-7</sup> s <sup>-1</sup>		1.5 x 10 <sup>-14</sup> s <sup>-1</sup>

En la tabla 1.3 se presenta isótopos del Al donde la constante de desintegración del <sup>26</sup>Al es del mismo orden que la del <sup>10</sup>Be.

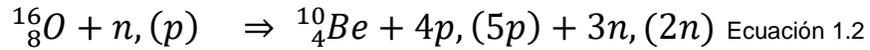
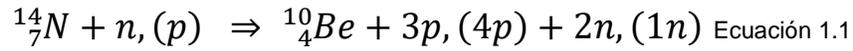
Tabla 1.3 Isótopos naturales del aluminio [11]

Isótopo	<sup>26</sup> Al radioactivo	<sup>27</sup> Al estable
Abundancia natural		100%
Concentración natural	10 <sup>7</sup> átomos / g de cuarzo	
Semi-vida (T <sub>1/2</sub> )	7.2 x 10 <sup>5</sup> años	
Constante de desintegración (λ)	3.07 x 10 <sup>-14</sup> s <sup>-1</sup>	

### 1.3.2 Producción de <sup>10</sup>Be

El <sup>10</sup>Be se forma principalmente a partir de reacciones de espalación entre los rayos cósmicos y el nitrógeno por ser el componente más abundante de la atmósfera con una composición del 79%, aunque también en menor proporción con la reacción del oxígeno que presenta una composición del 20% [12].

Posteriormente la interacción de los rayos cósmicos y la atmósfera de la Tierra causa una cascada de partículas secundarias que a su vez interactúan con las moléculas de gas en la estratósfera y la tropósfera para producir  $^{10}\text{Be}$  de acuerdo a las reacciones de la ecuación 1.1 y 1.2 [13, 14].



Finalmente, como se observa en la figura 1.2, el  $^{10}\text{Be}$  es transportado a la tropósfera inferior unido a aerosoles y depositado en la superficie, en forma soluble en la lluvia o en deposición seca [15].

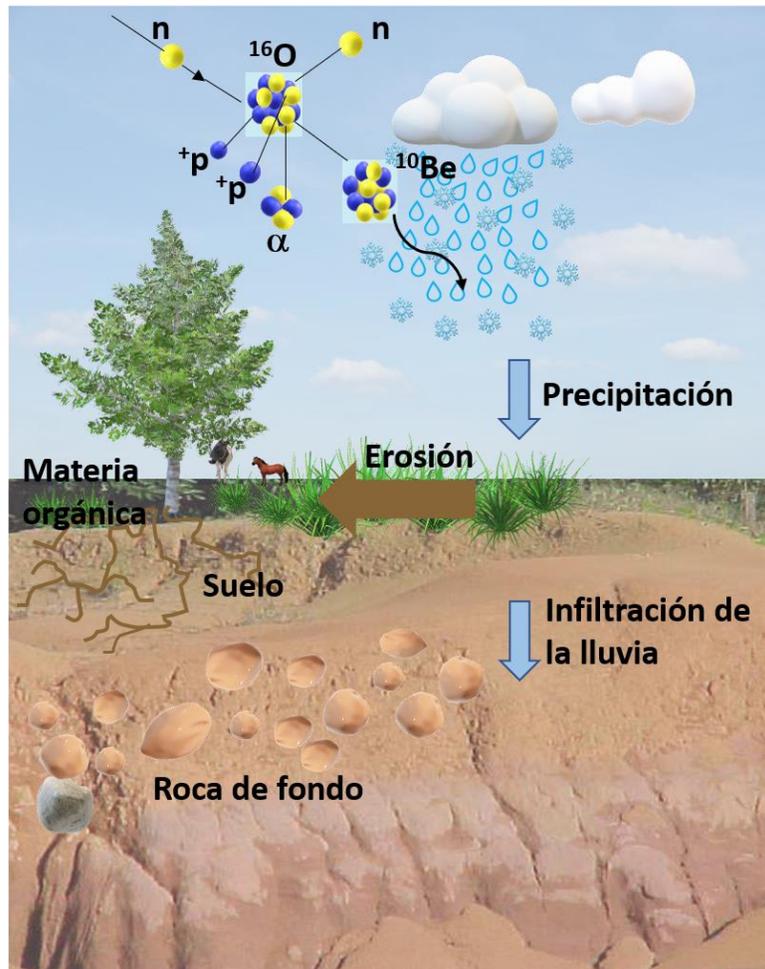
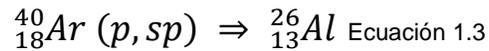


Figura 1.2 Producción de  $^{10}\text{Be}$

### 1.3.3 Producción de $^{26}\text{Al}$

La producción del  $^{26}\text{Al}$  es originada por la reacción del argón, representada en la ecuación 1.3 que constituye poco menos del 1% de la composición del aire, lo que ocasiona que su producción atmosférica sea baja.



Una vez producido experimentará los mismos procesos de transporte y deposición que el  $^{10}\text{Be}$ .

### 1.3.4 Producción in situ

Otra forma de producción de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  es la producción in situ. En esta, los rayos cósmicos secundarios chocan con un mineral, que se trata normalmente de cuarzo, existente en rocas y sedimentos y reaccionan con oxígeno y/o silicio.

Tanto el  $^{10}\text{Be}$  como el  $^{26}\text{Al}$  se acumulan en depósitos superficiales en el tiempo tal que la concentración del radionúclido se relaciona para ambos con la edad y estabilidad del material de la superficie. La producción atmosférica del  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  tiene un valor de pH próximos al neutro lo que garantiza que para ambos radioisótopos que alcanzan el suelo estén realmente adsorbidos a las partículas. En la producción in situ se encuentran bloqueados en los minerales. De ahí, las dos variedades de estos radioisótopos pueden ser separadas a través de lixiviación con ácidos de la superficie del grano (meteórico) y con disolución de la estructura cristalina (in situ). En cualquier caso, los radioisótopos se encuentran a muy bajas concentraciones en dichos materiales, siendo sus valores típicos  $10^7$  átomos/g en sedimentos y  $7 \times 10^5$  átomos/l en agua de mar para  $^{10}\text{Be}$ ,  $10^6$  átomos/g en cuarzo para  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  [16].

## 1.4 Aplicaciones

La aplicación más importante de ambos radioisótopos es la utilización de estos como trazadores en el ambiente, en campos como geología, arqueología, metrología, etc.

En el caso del  $^{10}\text{Be}$  se pueden obtener datos de concentraciones en diferentes medios ya que puede ser muestreado y medido en varios tipos de reservorios naturales tales como el aire, la lluvia, el hielo, sedimentos; permitiendo establecer tasas de denudación o erosión en ríos, tasas de crecimiento en cortezas oceánicas para obtener información sobre las condiciones ambientales y climáticas del pasado y tasas de producción actual. Las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  serán expresadas dependiendo de la aplicación. En medios como hielo, sedimentos, corteza y nódulos, se suele usar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  relativa al peso de muestra total (átomos/g). En muestras de lluvia (átomos/g de agua) y aerosoles (átomos/ $\text{m}^3$  de aire recogido), en los que se estudian las variaciones de las tasas de producción y deposición, el flujo anual (átomos/ $\text{cm}^2\cdot\text{año}$ ) puede ser el parámetro más usado [17].

En el caso del Be tanto el radioisótopo  $^{10}\text{Be}$  y el isótopo estable  $^9\text{Be}$  son muy escasos. El  $^{10}\text{Be}$  tiende a permanecer estático en el medio ambiente, y el tiempo de residencia en suelos bajo condiciones normales es de  $10^5$  años [5]. Además, su alto carácter litófilo (minerales de gran afinidad al oxígeno y que se concentran en los silicatos) conlleva a tener un tiempo de residencia corto en ambientes marinos y a adherirse a las rocas, sedimentos, suelos, y testigos de hielo.

Lo que provoca que el  $^{10}\text{Be}$  y  $^9\text{Be}$  no se fijen lo suficiente para alcanzar el cociente isotópico característico, con lo cual, impide utilizar el Be estable para corregir los efectos de dilución [5].

Para el  $^{26}\text{Al}$  se tiene un menor conocimiento de sus concentraciones en la atmósfera, ya que rara vez se han aplicado estudios atmosféricos y climáticos para este isótopo, debido a que su producción es aproximadamente 500 veces menor que para el  $^{10}\text{Be}$  [19], lo que dificulta aún más su medida por otra técnica analítica que no sea AMS.

En un sedimento la relación de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  es del orden de  $10^{-8}$ , mientras que la de  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  es del orden de  $10^{-14}$ , debido a la gran concentración del  $^{27}\text{Al}$  producido en la superficie terrestre. Aun así, se ha encontrado una aplicación importante para el  $^{27}\text{Al}$  en la datación de los sedimentos marinos [18].

Al igual que el  $^{10}\text{Be}$ , el  $^{26}\text{Al}$  puede ser atmosférico o terrestre (producido por espalación de Si). El  $^{26}\text{Al}$  terrestre se acrecienta comúnmente junto con  $^{26}\text{Al}$  atmosférico. Si bien  $^{26}\text{Al}$  terrestre y atmosférico se han investigado exhaustivamente, los datos sobre  $^{26}\text{Al}$  atmosférico son extremadamente escasos hasta la fecha, aunque su uso potencial en la investigación atmosférica y climática se ha reconocido particularmente cuando se mide en combinación con  $^{10}\text{Be}$  [19].

La combinación del  $^{26}\text{Al}$  y del  $^{10}\text{Be}$  se usa para la medición de rocas, estudios de meteoritos midiendo muestras para su producción, historia y material original extraterrestre. Mientras que para muestras de lluvia y aerosoles se ha buscado obtener un modelo del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  para conocer intercambios atmosféricos [19].

La ventaja de recurrir al  $^{26}\text{Al}$  y al  $^{10}\text{Be}$  en paralelo (en realidad se usa la relación de las dos actividades radiactivas) es que el método no depende de las variaciones de la tasa de producción. A partir de:

$${}^{26}_{13}\text{Al} = {}^{26}_{13}\text{Al}^0 e^{-\lambda(\text{Al})t} \text{ y } {}^{10}_4\text{Be} = {}^{10}_4\text{Be}^0 e^{-\lambda(\text{Be})t} \text{ Ecuación 1.4}$$

Se calcula el cociente:

$$\frac{{}^{26}_{13}\text{Al}}{{}^{10}_4\text{Be}} = \left( \frac{{}^{26}_{13}\text{Al}^0}{{}^{10}_4\text{Be}^0} \right) e^{-\lambda' t} \text{ Ecuación 1.5}$$

Donde:

$$\lambda' = \lambda_{\text{Al}} - \lambda_{\text{Be}} = 0.50 \times 10^{-6} \text{ a}^{-1} \text{ Ecuación 1.6}$$

El cociente aumenta con el tiempo según su constante de desintegración [20].

Como se mencionó anteriormente el  $^{26}\text{Al}$  y el  $^{10}\text{Be}$  se depositan de manera similar en el ambiente lo que permite obtener a través del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  datos de archivos climáticos.

Con respecto a la producción atmosférica, la relación  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  disminuye con el tiempo debido a las diferentes semividas de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ , suponiendo una relación temporal y espacialmente constante de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en la deposición atmosférica, es posible deducir directamente la edad de una muestra, siempre que la relación inicial sea bien conocida. El rango de edad que se puede abordar con este método es del orden de 1 Ma hasta 5 Ma. Para aplicar  $^{26}\text{Al}$  en la investigación atmosférica, sus fuentes y transporte en la atmósfera deben ser bien conocidos, lo cual es un requisito para el método de datación  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  donde una relación atmosférica constante de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  es una condición básica [19].

El cociente  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ , así como las concentraciones de cada uno de estos radioisótopos se ha buscado aplicar a material particulado en diferentes zonas, como en una estación cerca a nivel del mar, altitudes medias, y centros urbanos y observar su comportamiento con las condiciones climáticas [39, 41, 43, 44].

### **1.5 Medición de radioisótopos cosmogénicos**

Para la medición de estos radioisótopos existen tres técnicas: conteo proporcional de gases (CPG), centello líquido (CCL) y la espectrometría de aceleración de masas (AMS). Las dos primeras técnicas se denominan técnicas radiométricas, porque determinan el decaimiento radiactivo del radioisótopo de la muestra relativo a la cantidad total.

Conteo proporcional a gas (CPG): se utiliza para determinar las tasas de emisión de radioisótopos por emisiones  $\alpha$  o emisiones  $\beta$ . Se usa gas con una composición de 10% metano y 90% argón para detectar la radiación cuando entra a la cámara de conteo. El gas se ioniza y el voltaje aplicado a la cámara hace que se ionice en cascada, lo que da como resultado un pulso de corriente que se puede detectar [21].

Conteo de centello líquido (CCL): también se puede utilizar para detectar emisiones  $\alpha$  o  $\beta$ , y es más efectivo que los sistemas de conteo proporcional de gas en la detección de partículas  $\beta$ , que tienen una capacidad de penetración limitada. Los

contadores por centello también permiten el conteo de alta velocidad de rayos X y rayos  $\gamma$  [21].

Las dos técnicas que más se utilizan en la actualidad son CCL y AMS, sin embargo, los métodos radiométricos no se utilizan para el  $^{10}\text{Be}$ , porque a pesar de que se puede medir la desintegración, la actividad específica es tan baja que imposibilita su aplicación [20]

En el caso del  $^{26}\text{Al}$  a pesar de ser litófilo como el  $^{10}\text{Be}$ , la aplicación de la técnica AMS resulta difícil ya que en la mayoría de las muestras se obtienen unos cocientes  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  muy bajos, por la presencia de altas cantidades de  $^{27}\text{Al}$  (elemento estable) en la corteza terrestre [5].

Otros obstáculos en la aplicación de  $^{26}\text{Al}$  a la investigación atmosférica son su baja concentración atmosférica (aproximadamente  $100 \text{ átomos/m}^3$ ). La eficiencia de detección para medir  $^{26}\text{Al}$  por AMS es solo del orden de  $10^{-4}$ . Para lograr una precisión del 10%, se requieren aproximadamente 10 a 6 átomos de  $^{26}\text{Al}$  [19].

La técnica más apropiada para la medición tanto de este radioisótopo como para el  $^{10}\text{Be}$  es la AMS, porque es capaz de identificar y contar los átomos de forma individual utilizando los elementos ópticos de un acelerador sin esperar a que se decaigan. Por lo que es posiblemente el método más sensible para medir radioisótopos de semivida corta y larga con abundancias isotópicas tan bajas como  $10^{-12}$  a  $10^{-16}$  [10]. Además de presentar las siguientes características:

- 1) El tamaño de la muestra. Para AMS es posible obtener un resultado confiable con solamente  $50 \mu\text{g}$  para muestras recientes y  $1,000 \mu\text{g}$  para muestras mayores de 10,000 años, mientras que en la técnica CCL se requieren muestras relativamente grandes (que contengan mínimo 1 g de muestra después de la limpieza). [22]

2) El tiempo de análisis. En AMS se requiere de un tiempo de análisis corto, aproximadamente de 5 min y máximo 20 min para muestras mayores de 25,000 años. En el caso de CCL el decaimiento radiactivo es un proceso espontáneo, por lo que es necesario analizar la muestra por largos periodos de tiempo, típicamente 2,500 minutos y hasta 10,000 minutos para muestras mayores de 30,000 años, para obtener un resultado confiable y una precisión aceptable [23].

### 1.5.1 Espectrometría de masas

La espectrometría de masas (MS) se enfoca en la separación de especies moleculares y atómicas de acuerdo con su masa. La figura 1.3, muestra los tres elementos básicos que lo componen:

- 1) Fuente de iones
- 2) Analizador de masa
- 3) Detector

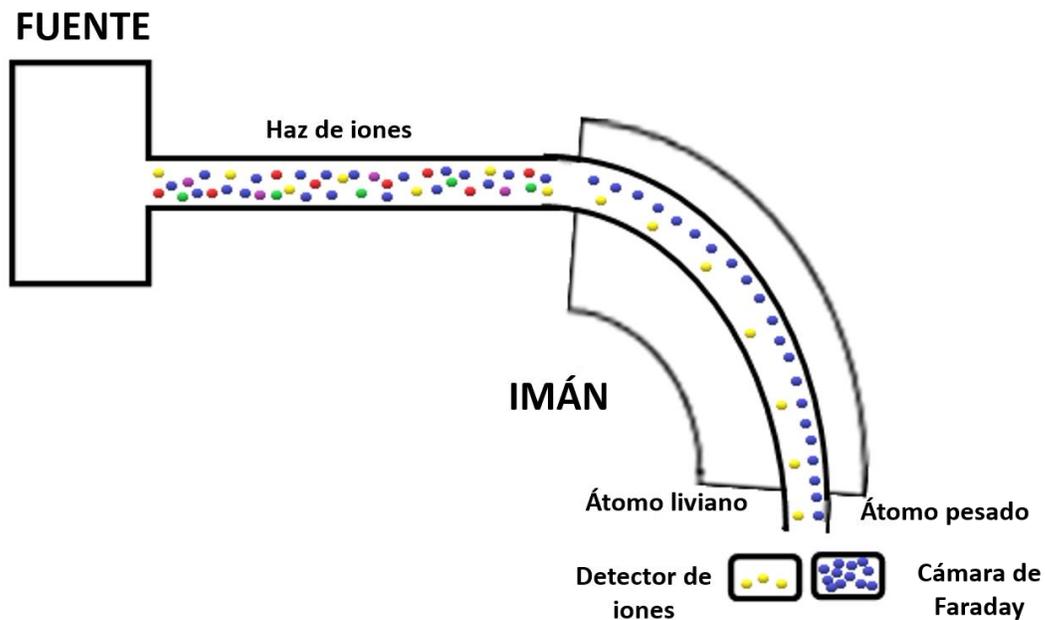


Figura 1.3 Funcionamiento básico de un espectrómetro de masas [24]

Cuando la muestra se encuentra en la fuente de iones, una cierta cantidad de moléculas se rompe por el bombardeo de un rayo de electrones, que origina la formación de iones positivos (cationes) con diferentes relaciones masa/carga ( $m/z$ ).

La trayectoria de estos iones, es desviada al aplicarse un campo magnético, provocando que choquen contra las paredes del analizador aquellos iones que no tienen una relación adecuada  $m/z$ , mientras que los iones con una relación  $m/z$  de interés seguirán la trayectoria hacia el analizador.

Al aplicar el campo magnético  $[B]$ , tanto la masa  $[M]$ , la energía cinética  $[E]$  y carga  $[q]$  influyen sobre el radio de curvatura ( $\rho$ ) de la trayectoria de cada ion [25].

$$\rho = \sqrt{\frac{2 \times M \times E}{q \times B}} \quad \text{Ecuación 1.7}$$

Posteriormente el deflector magnético selecciona las partículas en función de su rigidez magnética ( $B \cdot \rho$ ), mediante la expresión:

$$\frac{B^2 \times \rho^2}{2} = \frac{M \times E}{q^2} \quad \text{Ecuación 1.8}$$

Una señal eléctrica es procesada y enviada a un ordenador cuando la corriente de iones con el valor necesario de  $ME/q^2$  llega al detector. La energía del ion es bastante baja que permite al detector discriminar cualquier masa o número atómico similar. Sin embargo, se puede aumentar la sensibilidad con el uso de un centellador o un multiplicador de electrones [26].

Se tiene que tener presente que hay isóbaros (núcleos con la misma masa, pero con distinto número atómico) que se generan en la fuente de iones, además de producirse uniones moleculares con la misma masa y carga eléctrica que las del ion de interés. En el caso del  $^{10}\text{Be}$ , el  $^9\text{BeH}$  tiene la misma masa, por lo que no es posible la identificación del ion de interés. Además de que el  $^{10}\text{B}$  tiene la misma masa y carga aproximada del  $^{10}\text{Be}$  [27, 28, 29, 30, 31, 32, 33].

Los isobaros limitan la posibilidad de alcanzar mejores sensibilidades quedando en el orden de  $10^{-10}$  e incluso menores [34].

Existen hasta ahora aproximadamente 55 radioisótopos que han sido utilizados en experimentos de AMS. La mayoría presenta semividas de más de 100 años, y comprenden aproximadamente la mitad de los radioisótopos que existen en este intervalo de tiempo en la naturaleza [10].

### **1.5.2 Espectrometría de masas con aceleradores**

Para poder alcanzar mejores sensibilidades se utiliza la técnica de espectrometría de masas con aceleradores (AMS), ya que permite medir relaciones isotópicas de hasta  $10^{-15}$  e incluso menores en algunos casos [31], debido a que al agregar una etapa de aceleración otorgando mayor energía: se reducen los interferentes isobáricos obteniéndose una mayor identificación del isótopo problema, mediante la medida de su masa nuclear y carga [26].

En la figura 1.4, se muestra un sistema de espectrometría de masas con acelerador convencional, usando un acelerador tipo tándem, donde se presentan tres zonas:

- 1) Zona de baja energía
- 2) Acelerador tándem
- 3) Zona de alta energía

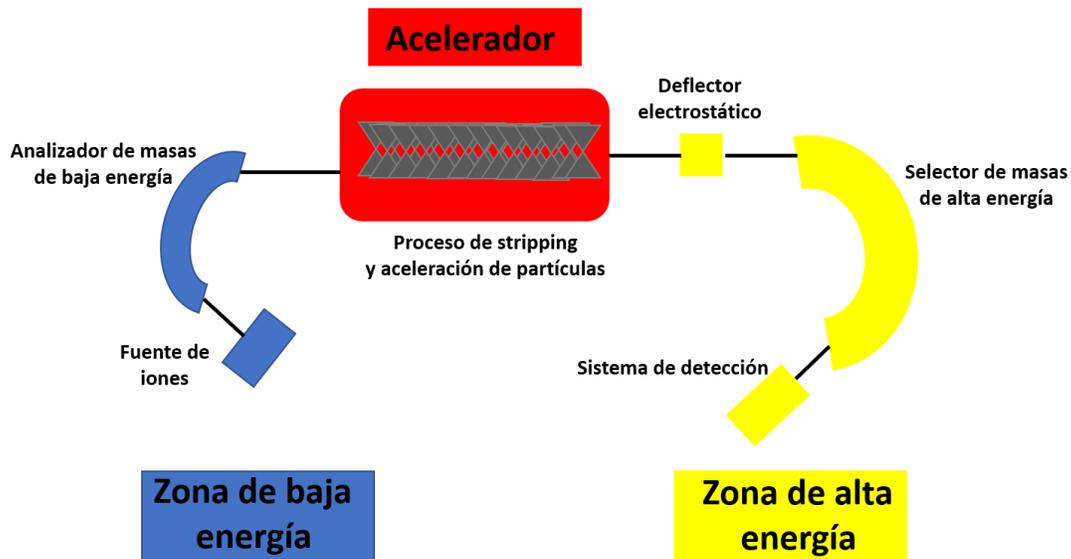


Figura 1.4 Esquema general de un espectrómetro de masas con aceleradores

### 1.5.2.1 Zona de baja energía

En esta zona se encuentra la fuente de iones y el inyector.

### 1.5.2.2 Fuente de iones

Se presenta el proceso llamado *sputtering* con átomos de cesio. El cesio es calentado (inicialmente se encuentra en forma líquida) para que evaporado quede adherido al ionizador, donde la pérdida de un electrón genera cationes de  $\text{Cs}^+$ . En la figura 1.5 se observa que existe una diferencia de voltaje de 28 kV, entre el cátodo que contiene a la muestra y el electrodo de extracción (situado detrás del ionizador), lo que permite un bombardeo de los cationes de  $\text{Cs}^+$  en la muestra. De esta forma una fracción de átomos extraídos del cátodo terminen como iones negativos, donde se encuentran tanto el ion de interés como otros iones. Por lo que son dirigidos a la primera etapa de selección magnética, realizada por el imán inyector del acelerador [24, 35, 36, 37].

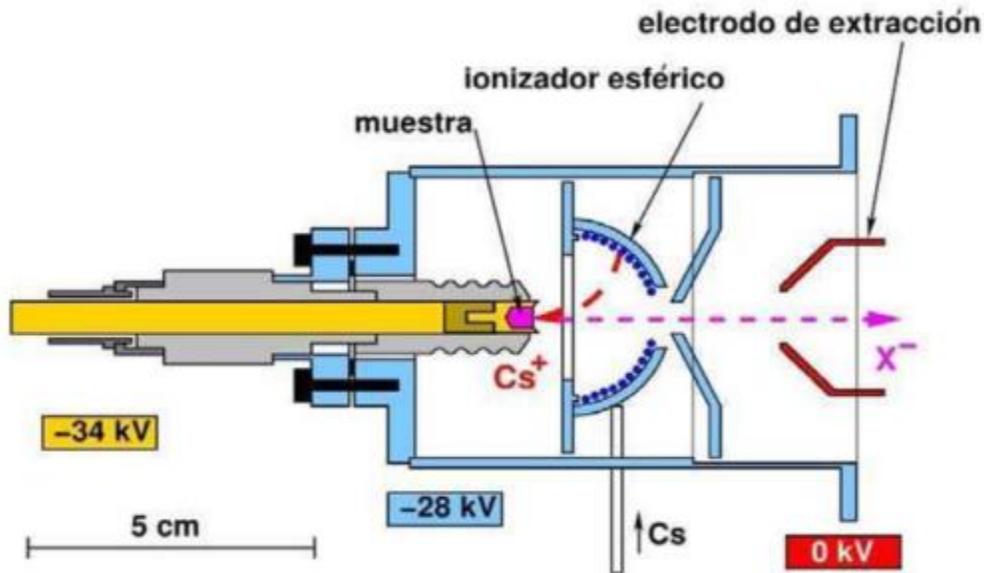


Figura 1.5 Fuente de iones de tipo *sputtering* [35]

### 1.5.2.3 Inyector

En esta etapa se realiza una selección de iones por medio de un deflector magnético que se encarga del cumplimiento de la ecuación 1.9.

$$\frac{Em}{q^2} = \text{constante} \quad \text{Ecuación 1.9}$$

Donde E= energía, m= masa y q= carga

La energía y la carga es la misma para todos los átomos a la salida de la fuente, por lo que solo ocurre una selección en la masa de los átomos.

En este primer filtro pueden existir iones de masa distinta a la de interés que pueden superarlo porque en el proceso de *sputtering* se produce una serie de fenómenos que introducen cierta dispersión en los componentes del haz [24, 35, 36, 37].

#### 1.5.2.4 Acelerador

Es la parte que marca la diferencia entre la espectrometría de masas tradicional y la AMS. Los iones negativos entran al centro acelerador, ya que son atraídos por una terminal de alto voltaje, donde chocan con el gas *stripper* (puede ser Ar, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> o CO<sub>2</sub>) y se produce el proceso de *stripping*. En este proceso los iones inyectados sufren una pérdida de electrones, que hace que de su carga negativa (-1), adquiera una diversidad de carga positiva (+n).

Para evitar descargas por la diferencia de potencial entre la terminal y las paredes del tanque donde se encuentran los iones, el acelerador se encuentra relleno de hexafluoruro de azufre (SF<sub>6</sub>), el cual sirve como aislante dieléctrico [38].

El proceso de *stripping* es básico para la eliminación del fondo molecular. Hay dos posibilidades: Si trabajamos con aceleradores de alta energía, podemos obtener estados de carga superiores a +3 en los cuales las moléculas son inestables. Si trabajamos con aceleradores, el proceso de ruptura se produce debido a choques sucesivos de las moléculas interferentes con el gas de *stripper*. En cualquier caso, la fragmentación de las moléculas hace que la gran mayoría de interferentes puedan ser eliminados en los filtros de zona de alta energía [38].

#### 1.5.2.5 Zona de alta energía

Los iones a la salida del acelerador presentan variedades de cargas positivas, además la presencia de isóbaros y fragmentos de moléculas que llegaron al acelerador por tener la misma masa del ion de interés, estos fragmentos poseen una energía dada por la expresión 1.10 [24, 35, 36, 37].

$$E(eV) = \left( \frac{m}{M} + q \right) V_{terminal} + V_{fuente} \quad \text{Ecuación 1.10}$$

Donde  $m$  es la masa del fragmento en estado de carga  $q$  y  $M$  es la masa de la molécula inicial, que es igual a la del ion de interés.

De la misma forma que en la zona de baja energía, en esta etapa se hace una selección del ion de interés mediante la utilización de un deflector magnético y otro electrostático que realiza un análisis en  $\frac{E}{q}$ , lo que minimiza las posibilidades de interferentes en  $\frac{M}{q}$  hacia la zona de detección.

### **1.5.2.6 Sistema de detección**

En este paso se utilizan magnitudes como la energía total, el poder de frenado, la energía residual o la velocidad, porque son magnitudes que pueden inferir unívocamente el valor de masa y/o carga nuclear. De esta forma identificaremos los iones de interés frente al resto de los componentes del haz. Para la determinación precisa de estas magnitudes existen una gran variedad de detectores [38].

El más utilizado es la cámara de ionización, en la cual un ion atraviesa un gas, ioniza sus partículas y mediante la aplicación de un campo eléctrico se recolecta la carga generada. La cantidad de carga generada dependerá de la energía depositada por el ion incidente. Con los resultados obtenidos de las cámaras de Faraday las cuentas obtenidas en el detector se obtiene el valor del cociente isotópico de la muestra [38].

Si bien es imposible eliminar la presencia de isobaros, una adecuada preparación química permite disminuir su concentración para posibilitar que los métodos de detección propios de la física nuclear sean capaces de identificar las partículas de interés [35, 36, 37].

## CAPÍTULO 2

### Justificación.

En diversas instalaciones AMS del mundo se realizan investigaciones climatológicas utilizando isótopos para estudiar las variaciones del clima y la respuesta del medio ambiente a estas variaciones. La gran mayoría de los estudios se han realizado en ambientes marino y polares. Sin embargo, existe gran interés en estudiar regiones con latitudes medias y bajas con el fin de detectar cambios climáticos en regiones continentales, debido que al tener datos de los eventos climatológicos en todas las regiones del mundo sería un indicador para pronosticar las consecuencias de los futuros cambios del clima.

Una de las formas para el estudio de estas zonas es mediante el análisis del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ . Este cociente, tiene un valor numérico medido, es temporal y constante para una determinada zona. Para determinarlo es necesario el conocimiento de las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ . Por lo cual en este trabajo realizado en la ciudad de México se establecen las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  y por primera vez se logró cuantificar el  $^{26}\text{Al}$  en esta zona, y de esta manera determinar el cociente isotópico, para determinar una correlación con las condiciones climatológicas, y en un futuro sea una zona de estudio para fijar la escala de tiempo correcta de sucesos climáticos anteriores, así como futuros,

## **CAPÍTULO 3**

### **Objetivos**

#### **Objetivo general**

Determinar el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  para establecer intercambios atmosféricos.

#### **Objetivos particulares**

Cuantificar la concentración del radioisótopo  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  para determinar el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  y los intercambios de masas atmosféricas.

Determinar la cantidad mínima necesaria de  $^{27}\text{Al}$  en  $\text{PM}_{2.5}$  para poder llevar a cabo la medida  $^{26}\text{Al}$  mediante AMS.

Correlacionar las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ , con determinados parámetros climáticos para determinar la influencia de estos en la producción de los radioisótopos.

## CAPÍTULO 4

### Metodología

La Ciudad de México (latitud 19.5, longitud -99.12 y altitud de 2220 m), está situada en una zona de mesetas altas del centro de México cuenta con aproximadamente 8.9 millones de habitantes, por lo que presenta una alta contaminación, al poseer alrededor de 30,000 industrias y 5 millones de vehículos. Por lo que se sitúa entre las 50 capitales mundiales con mayor contaminación por material particulado 2.5  $\mu\text{m}$  ( $\text{PM}_{2.5}$ ). La figura 4.1 muestra el lugar de muestreo llevado a cabo en Ciudad Universitaria considerado como un centro urbano de zona residencial, tráfico medio y presencia de reserva ecológica, se recolectó material particulado menor a  $2.5\mu\text{m}$  en filtros de cuarzo que se colocó en un muestreador  $\text{PM}_{2.5}$  de alto volumen con un caudal de  $1.9 \text{ m}^3/\text{min}$  durante 48 horas (Grase de Andersen SA -2000H), en el techo del laboratorio de isótopos cosmogénicos, durante los meses de enero, febrero, marzo y diciembre del 2016.

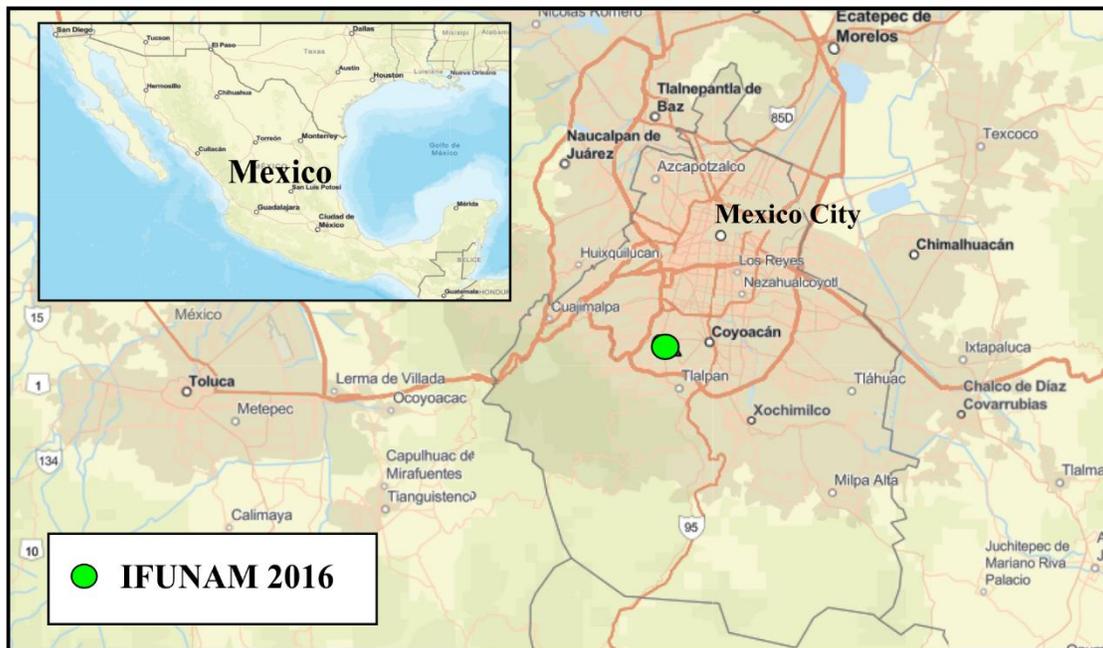


Figura 4.1 Lugar de muestreo

#### 4.1 Pretratamiento de las muestras

La figura 4.2 muestra el pretratamiento y el proceso de digestión al que fue sometida la muestra antes de ser tratada por las columnas de intercambio iónico.

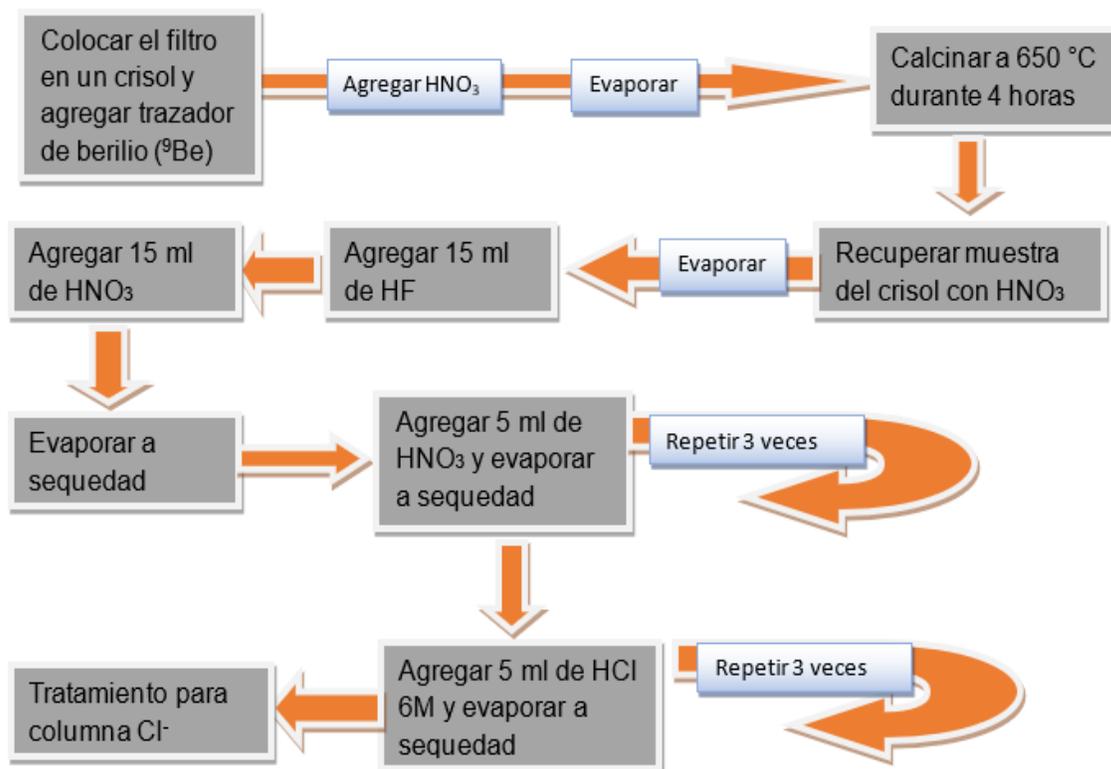


Figura 4.2. Pretratamiento y digestión de la muestra

Para iniciar el procesamiento del material particulado, el filtro de cuarzo se corta en trozos pequeños y se coloca en un crisol de cerámica, en donde se le agregan 250  $\mu\text{l}$  de trazador de berilio ( $^9\text{Be}$ ), en seguida se le agrega  $\text{HNO}_3$  recubriendo toda la muestra para que así quede homogenizada. Después se coloca en una placa calefactora hasta la evaporación total, de esta forma es calcinada a  $650\text{ }^\circ\text{C}$  durante 4 horas para eliminar la materia orgánica.

Una vez calcinada la muestra se coloca en un vaso de teflón, los posibles residuos de muestra en el crisol se recuperan agregando  $\text{HNO}_3$  y se deja evaporar para poder traspasarlos al vaso de teflón, repitiendo este procedimiento hasta que el crisol se encuentre lo más limpio posible.

## **4.2 Digestión de la muestra**

Se procede a colocar la muestra en un vaso de teflón, para iniciar el proceso de digestión adicionando 15 mL de Fluoruro de hidrógeno (HF) y 15 mL de HNO<sub>3</sub> para después evaporar a sequedad.

Al precipitado obtenido se le adicionan 5 mL de HNO<sub>3</sub> y se evapora a sequedad, este paso se repite 2 veces más, para eliminar los restos de HF. Finalmente se prepara a la muestra para el paso por la columna de intercambio aniónica de Cl<sup>-</sup>, adicionando 5 mL de HCl 6M y evaporando, repitiendo este paso en 3 ocasiones.

## **4.3 Separación de Fe de la muestra**

Al tratarse de muestras ambientales es común que se presente el compuesto de óxido férrico (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), el cuál será necesario eliminar, debido a que el Fe interfiere en el proceso de extracción radioquímica y reduce la salida de aluminio en la fuente de iones.

En la figura 4.3 se muestra el procesamiento para la separación de Fe a través de las columnas Cl<sup>-</sup>, además del acondicionamiento que debe tener la columna para poder ser utilizada.

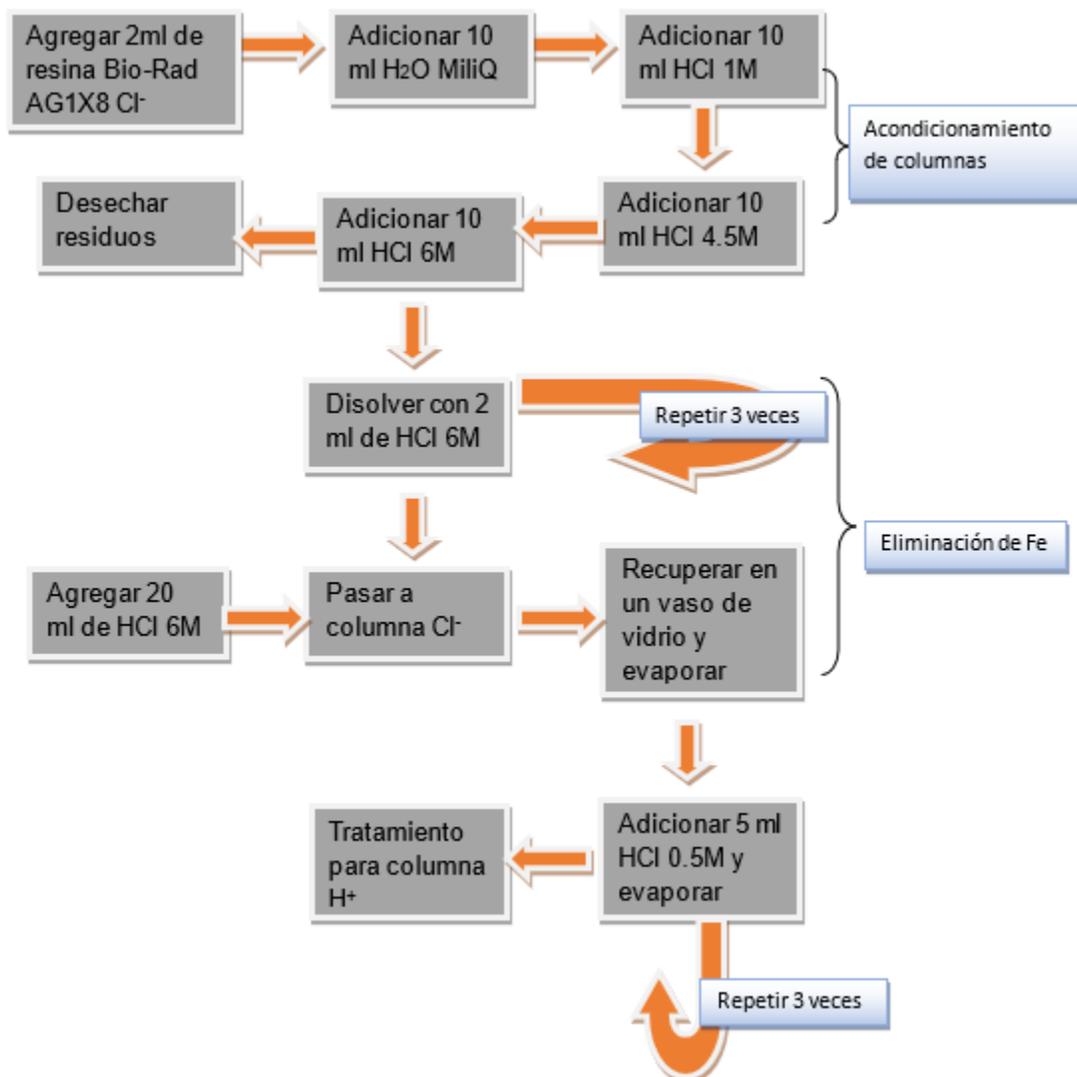


Figura 4.3. Acondicionamiento de la columna Cl<sup>-</sup>, y procesamiento para la eliminación de Fe

Una vez acondicionadas, se procede a pasar la muestra del vaso de teflón a la columna para la eliminación de Fe, para esto se agregan 2 mL de HCl 6M para traspasarlos, se realiza 2 veces más y finalmente se completan 20 mL. El volumen total de 26 mL es recolectado en un vaso de vidrio y se lleva a evaporación total, para así realizar el proceso por la columna H<sup>+</sup>, pero antes será necesario adicionar 5 mL de HCl 0.5M y evaporar, realizando este paso en 3 ocasiones.

#### 4.4 Separación de Be y Al

Como se muestra en la figura 4.4, el precipitado obtenido pasa a la segunda columna de intercambio catiónica  $H^+$ , en donde se hará la colecta de Be y Al, pero también será necesario el acondicionamiento de estas columnas.

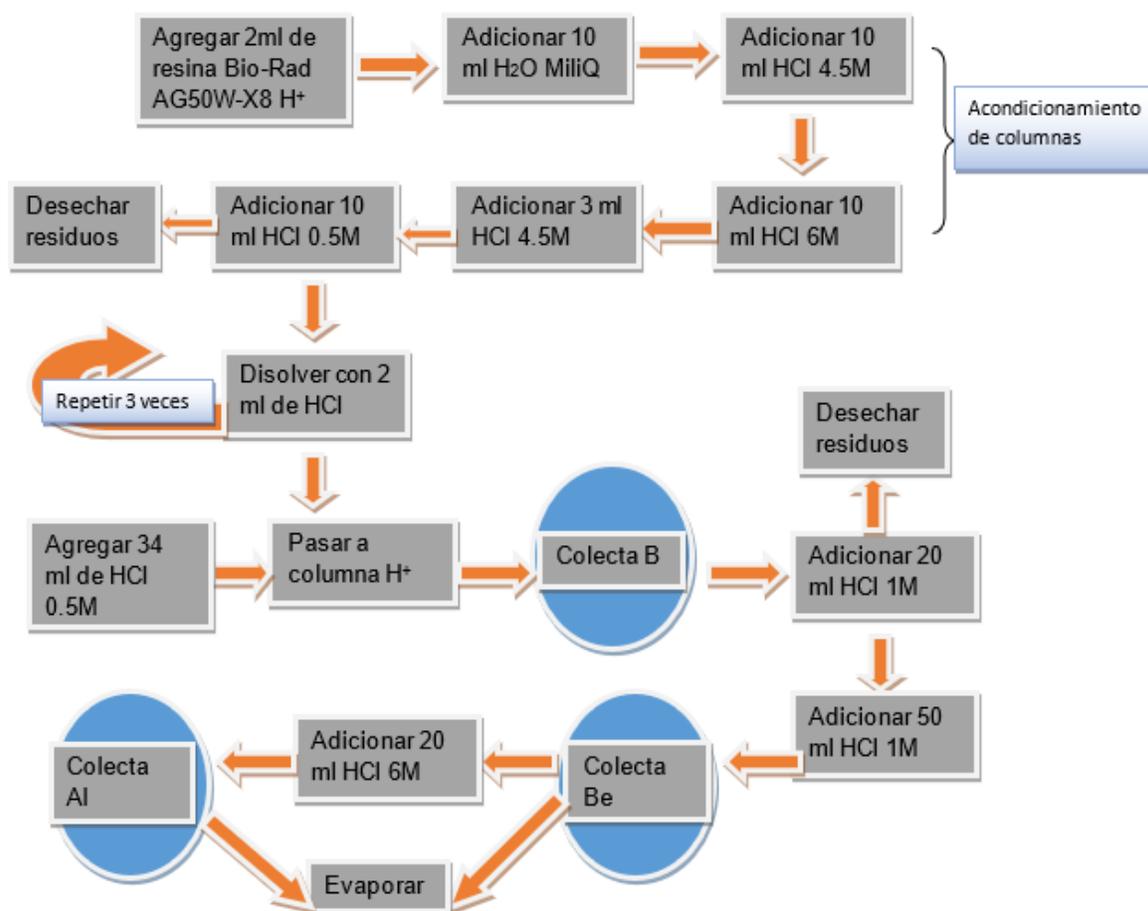


Figura 4.4. Acondicionamiento de la columna  $H^+$ , y procesamiento para la colecta de Be y Al

La muestra se disuelve con 2 mL de HCl 0.5M y se traspassa del vaso de teflón a las columnas ya acondicionadas, este procedimiento se repite 2 veces más para después adicionar 34 mL del mismo ácido, se colectan en viales de centrifuga (colecta de boro), posteriormente se le añaden 20 mL de HCl 1M, que es el desecho de berilio, para después recuperar en vasos de teflón 50 mL de HCl 1M (colecta de berilio), y finalmente se agregan 20 mL de HCl 6M para recuperar en vasos de vidrio (colecta de aluminio).

Las muestras recuperadas de berilio y aluminio se evaporan a sequedad.

#### 4.5 Obtención del precipitado de $\text{Be}(\text{OH})_2$

La muestra ya evaporada de berilio es sometida a un tratamiento para la obtención de hidróxido de berilio siguiendo el procedimiento citado en la figura 4.5.

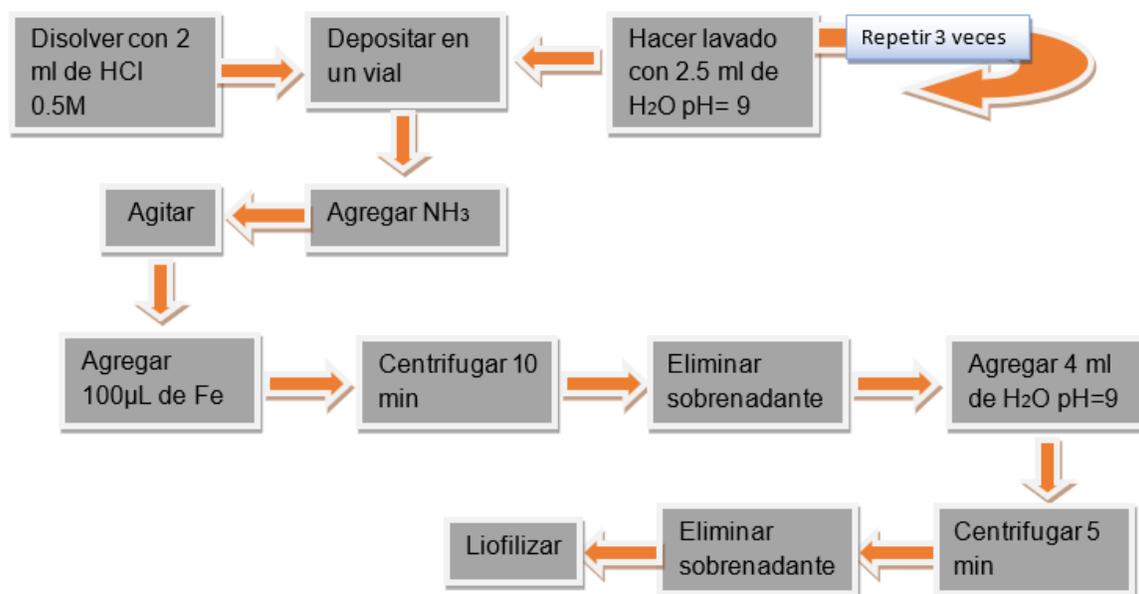


Figura 4.5. Tratamiento para la obtención de hidróxido de berilio

La muestra se disuelve con 2 mL de HCl 0.5M y se traspasa a un vial, donde se lleva a un volumen de 9.5 mL, haciendo 3 lavados con  $\text{H}_2\text{O}$  a pH de 9, debido a que el  $\text{Be}(\text{OH})_2$  precipita a este pH, aun así la muestra no alcanza el pH deseado, por lo que es necesario agregar  $\text{NH}_3$  (aproximadamente de 4 a 5 gotas), se agita la muestra para que quede homogenizada y se adicionan 100 µL de Fe para evitar la formación de 2 fases. Las muestras se centrifugan por 10 minutos a 4500 rpm eliminando el sobrenadante de  $\text{NH}_3$ , finalmente se agregan 4 mL de agua pH de 9, se centrifuga durante 5 minutos y se elimina el sobrenadante para poder liofilizar.

La liofilización es necesaria para eliminar por completo toda el agua presente en la muestra, está se realiza durante 24 horas a condiciones de vacío menores a 0.133

mbar y  $-40^{\circ}\text{C}$  de temperatura, para realizarse es necesario congelar las muestras con nitrógeno líquido por algunos minutos.

#### 4.6 Obtención del precipitado de $\text{BeO}$

Al finalizar la liofilización es necesario oxidar el precipitado para formar el óxido de berilio, la figura 4.6 muestra las condiciones para este proceso.

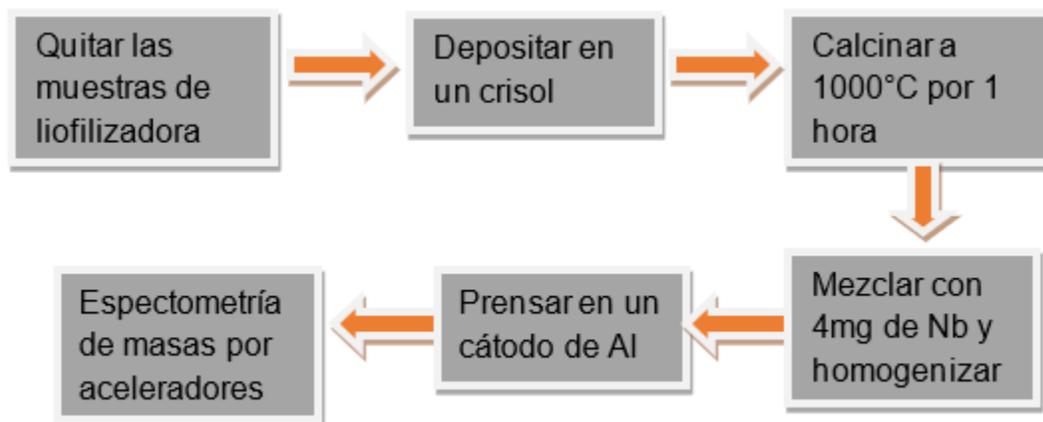


Figura 4.6. Obtención del óxido de berilio

La muestra se calcina a  $1000^{\circ}\text{C}$  durante 1 hora. Terminada la calcinación, el precipitado se mezcla con 4 mg de Nb y se homogeniza para ser prensada en un cátodo de aluminio y realizar el análisis por espectrometría de masas con aceleradores.

#### 4.7 Obtención del precipitado de $\text{Al}(\text{OH})_3$

La figura 4.7 muestra el procedimiento para obtener el hidróxido de aluminio el procedimiento es similar a la obtención de  $\text{Be}(\text{OH})_2$ , aunque en este caso los lavados se realizan con agua a pH igual a 7 y no se adiciona Fe.

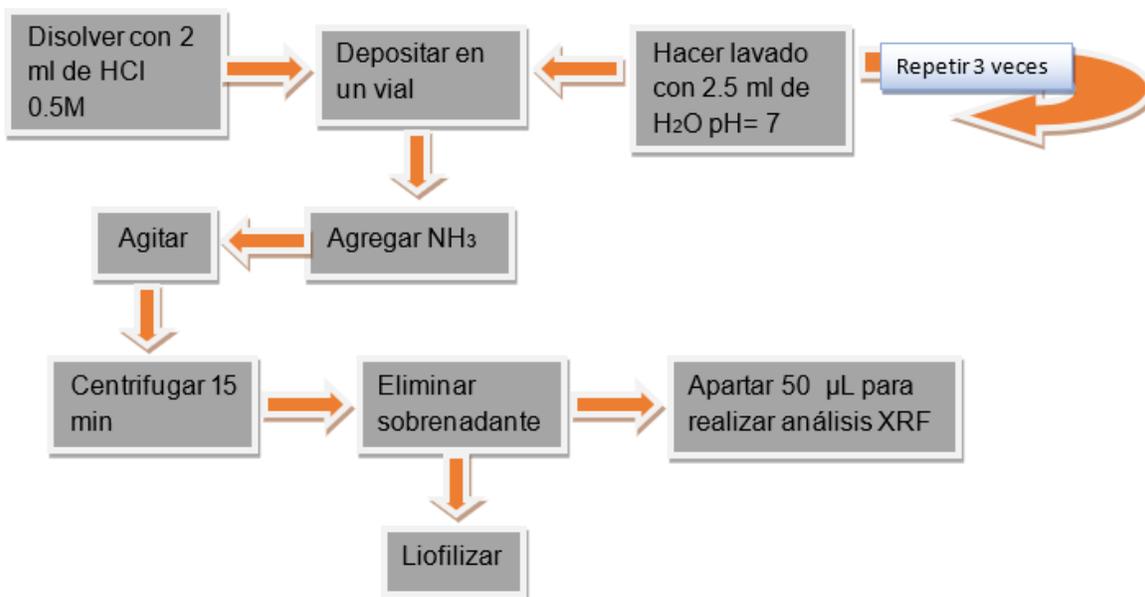


Figura 4.7. Obtención del hidróxido de aluminio

#### 4.8 Obtención del precipitado $Al_2O_3$

En la figura 4.8 se presenta el procedimiento para la obtención del óxido de aluminio.

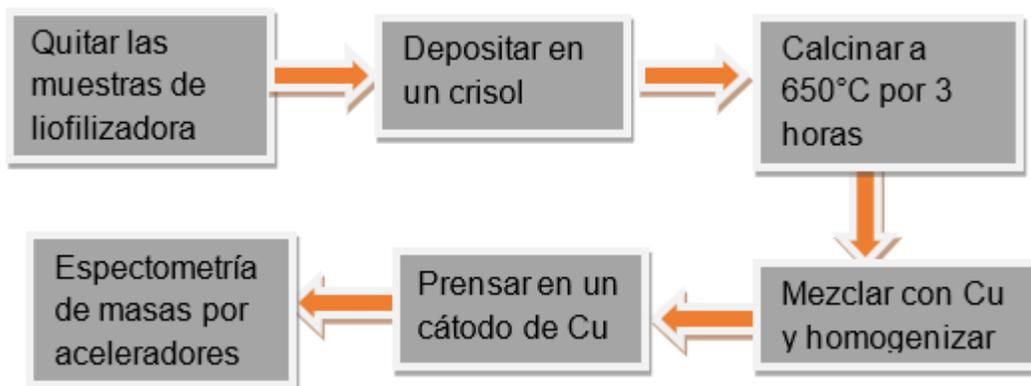


Figura 4.8. Obtención del óxido de aluminio

En este caso la calcinación ocurre a 650°C durante 3 horas, una vez terminada se realizará el proceso de prensado, para lo que el precipitado se mezcla con Cu, tomando en cuenta la relación atómica 1 a 1 de Al con Cu, para facilitar el proceso de sputtering y obtener mayores corrientes en el haz de Al. Lo que nos da como resultado que por cada miligramo de  $Al_2O_3$  se necesitan 0.623 miligramos de Cu.

Ya homogenizados se colocan en un cátodo de Cu para realizar el análisis por espectrometría de masas con aceleradores.

#### **4.9 Sintonización del sistema AMS**

El sistema AMS se utiliza para la medición de diferentes isótopos. Por lo cual es necesario realizar una sintonización de manera de ajustar los parámetros necesarios como los filtros electromagnéticos, elementos de transporte y el acelerador para que estén adaptados a las propiedades de carga, masa y energía de los isótopos de interés, en este caso  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ .

#### **4.10 Sistema de baja energía**

Como primer paso de la sintonización tenemos a la fuente de iones con una corriente de ionización de 18 A, el Cs se somete a una temperatura de  $80^{\circ}\text{C}$  y empieza a incrementarse hasta lograr una temperatura de  $100^{\circ}\text{C}$  de tal forma que permita la ionización de la muestra. Existe una diferencia de potencial entre el electrodo de extracción y el cátodo de 28 kV, además el voltaje de ionización es de 7 kV, por lo que se tiene una energía inicial de 35 kV en el haz de iones con un estado de carga de -1.

El siguiente paso en la zona de baja energía corresponde al acondicionamiento del inyector conformado por: dos lentes electrostáticas (lentes *Einzel*) encargados de focalizar antes y después del deflector electrostático de baja energía (ESA).

El ESA es el encargado de filtrar el haz de iones de acuerdo a la energía y la carga. El voltaje de desplazamiento vertical (*Y-steerer*) encargado de desviar el haz en la vertical para que su centro geométrico coincida con el centro de la trayectoria que debe seguir el haz. Y el deflector magnético de baja energía donde el haz vuelve a ser filtrado pero esta vez teniendo en cuenta la masa, carga y energía. Las condiciones necesarias para cada isótopo se muestran en la tabla 4.1.

Tabla 4.1. Parámetros para la medición de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  [41]

Componente	$^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$
Lente Einzel (antes del ESA)	20.53 KV	22.67 KV
Voltaje de desplazamiento vertical (antes del ESA)	145.12 V	47.44 V
ESA	4 KV	4 KV
Lente Einzel (posterior al ESA)	9.18 KV	11.77 KV
Imán de baja energía	68 A	70.4 A
Voltaje de desplazamiento vertical después del ESA	-80 V	-203 V

#### 4.11 Acelerador

El acelerador Tándem del LEMA lo componen dos tubos de aceleración de 80 cm, uno de baja energía y otro de alta energía. En medio de los tubos está situado el canal de stripping que contiene argón para llevar a cabo el rompimiento molecular a una presión de  $1 \times 10^{-2}$  mbar y  $2.2 \times 10^{-2}$  para el Be y Al respectivamente. Además, para ambos isótopos se utiliza el potencial máximo de terminal que alcanza el acelerador que es de 1 MV. Posteriormente el cuadrupolo se encarga de focalizar el haz de salida y es fijado a un valor de 69.4% para Be y 61.2% para Al. Finalmente se coloca un *Y-steerer* con una diferencia de potencial de -86.4V.

#### 4.12 Zona de alta energía

En esta zona se lleva a cabo la separación final del radioisótopo de interés. Está compuesta por el imán de alta energía donde se filtran los iones que cumplan con una relación constante de masa, carga y energía, cuatro copas Faraday y el deflector electrostático de alta energía. Las condiciones necesarias se muestran en la tabla 4.2.

Tabla 4.2. Parámetros para la medición de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  [41]

Componente	$^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$
Imán de alta energía	170 A	160.2 A
Y- steerer	4.98 KV	4.98 KV
ESA de alta energía	51.7 KV	52.11 KV

Al presentar el  $^{10}\text{Be}$  su isobaro  $^{10}\text{B}$  es necesario un componente esencial en esta zona que permita la separación de estos, que es el absorbente pasivo que consiste en una ventana de  $\text{Si}_3\text{N}_{3,2}$  de 150 nm de espesor. De esta manera se elimina gran parte del  $^{10}\text{B}^+$  antes de que llegue al detector final. Esto se lleva por que el  $^{10}\text{B}$  al presentar un protón de más, perderá mayor energía que el  $^{10}\text{Be}$  al atravesar la ventana.

Ajustando la rigidez electrostática del ESA de alta energía a la del  $^{10}\text{Be}$ , éste deflecta continuando con la trayectoria deseada hacia el detector mientras que el  $^{10}\text{B}$  lo hace con un radio de giro menor, debido a que tiene menor energía [41].

Cumplidos los parámetros seleccionados inicia la medición, mediante 10 ciclos de 30 segundos para cada muestra, repitiéndose 12 veces de forma que se obtendrán 120 valores de cociente isotópico de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ , además de los espectros de energía.

En la figura 4.9 y 4.10 se observan los espectros de energía para los estándares STD 5.1 perteneciente a  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y STD 4.1 perteneciente a  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ , donde los cocientes isotópicos son  $2.71 \times 10^{-11}$  y  $7.444 \times 10^{-11}$ , respectivamente. En ambos espectros se puede observar una región de color negro, en la que se presentan puntos de diferentes colores que indican la detección de átomos de los radioisótopos deseados. Estos átomos están cuantificados y su valor se puede observar en la parte del espectro ROISum.

En el caso de STD 5.1 se puede distinguir perfectamente dos regiones, lo cual indica una correcta separación de los isótopos. La región de la derecha corresponde al  $^{10}\text{Be}$ , mientras que la región de la izquierda representa a su isobaro  $^{10}\text{B}$ .

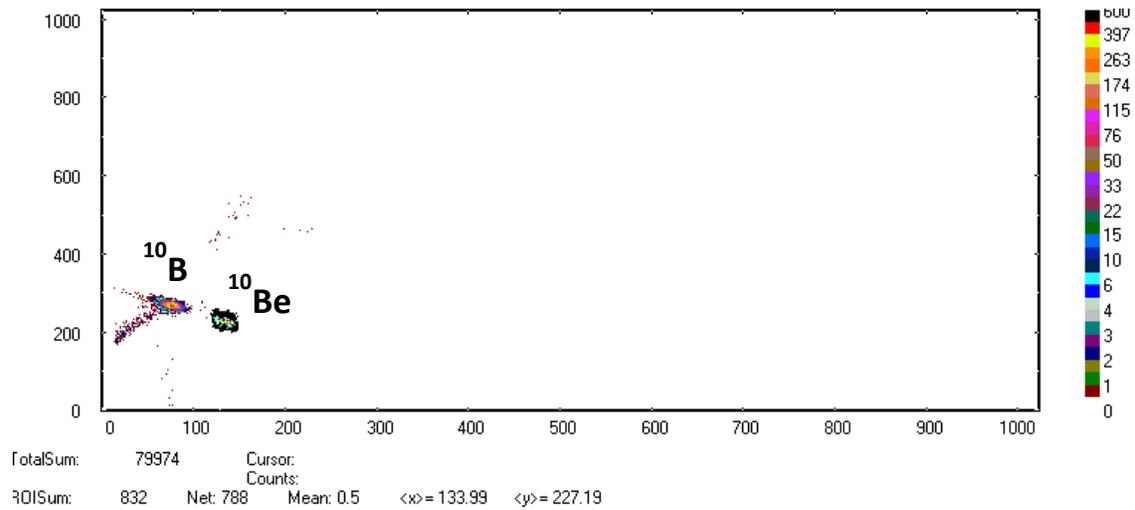


Figura 4.9 Espectro representativo del STD 5.1 de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$

Mientras que para el STD 4.1, solo se puede identificar una zona, que corresponde a el  $^{26}\text{Al}$ , si bien este radioisótopo también presenta un isobaro ( $^{26}\text{Mg}$ ) es eliminado desde la fuente de iones al no producir iones negativos.

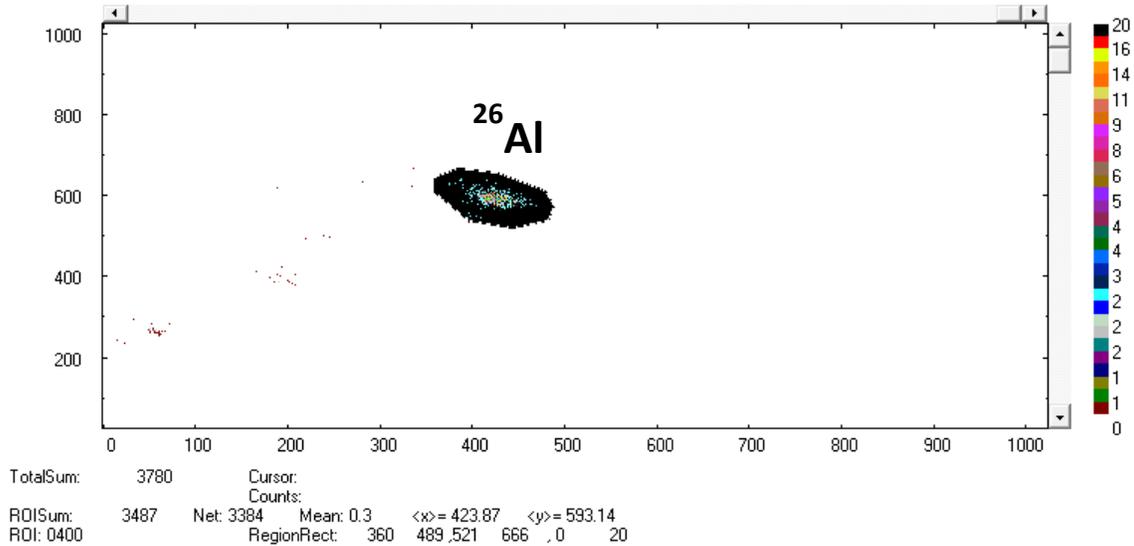


Figura 4.10. Espectro del representativo del STD 4.1 de  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$

Es necesario la medición de blancos donde las detecciones (ROIsum) deben ser nulas para asegurar un correcto funcionamiento.

La figura 4.11 y 4.12 muestran los blancos de Be y Al respectivamente.

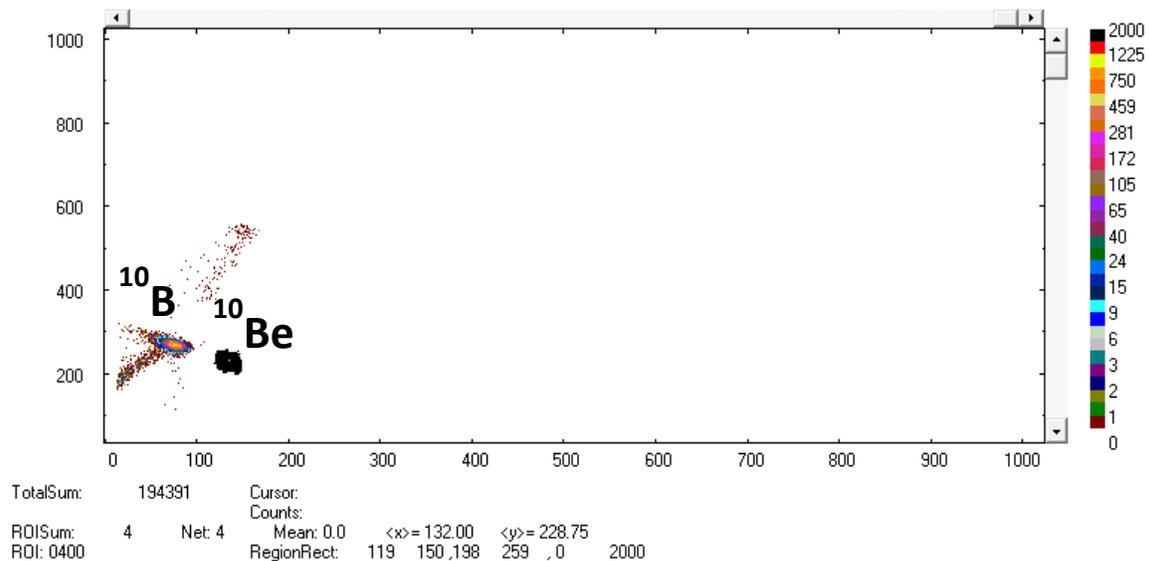


Figura 4.11. Espectro representativo para un blanco de  $^{10}\text{Be}$

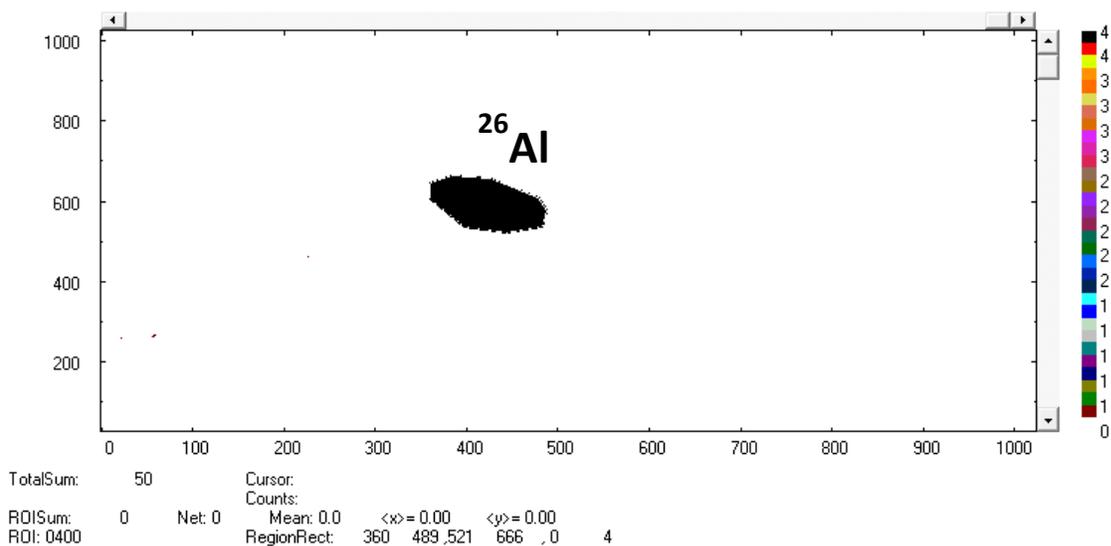


Figura 4.12. Espectro representativo para un blanco de  $^{26}\text{Al}$

En el caso del blanco de  $^{10}\text{Be}$ , a pesar de que se vuelven a presentar las dos regiones, observamos que la región correspondiente al  $^{10}\text{Be}$  presenta solo 4 cuentas, si las comparamos con el STD 5.1 que presenta 832 determinamos que las cuentas presentes en el blanco son mínimas, y si bien lo deseable era no presentar ninguna detección, estas pudieron provenir de la contaminación durante el procesamiento.

Para el caso del  $^{26}\text{Al}$  no se presenta ninguna detección, mientras que pasa el STD 4.1 fueron de 3487.

## CAPÍTULO 5

### Análisis de datos

Una vez realizada la medición por AMS, se obtienen los diferentes datos que permitirán determinar la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Uno de esto, es el cociente isotópico de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ , al cual, debe realizarse una corrección por cambios de corriente, una normalización del cociente medido respecto al valor nominal del cociente del estándar y por último la sustracción del cociente de los blancos.

El cociente final corregido por corrientes y normalizado por el estándar se obtiene, mediante la ecuación 5.1

$$Rr = \frac{Rn}{Rs} (Rm - Rb) \quad \text{Ecuación 5.1}$$

Donde:

$R_r$  = cociente isotópico real de la muestra

$R_n$  = cociente del estándar nominal

$R_s$  = cociente del valor nominal medido con la técnica AMS

$R_m$  = cociente de la muestra medida por la técnica AMS

$R_b$  = cociente del blanco

De esta forma el cociente isotópico está corregido y se puede calcular la concentración de  $^{10}\text{Be}$  mediante la ecuación tal sin la presencia de átomos del blanco, mediante la ecuación 5.2

$$N_{Be} = \frac{1}{M} \left( \frac{Rr M_p N_A}{M_{Be}} \right) \quad \text{Ecuación 5.2}$$

Donde:

$N_{Be}$  = concentración de  $^{10}\text{Be}$  [átomos/g]

$M$  = masa de la muestra [g]

$M_p$  = masa portador de berilio [g]

$M_{Be}$  = masa molar de  $^9\text{Be}$  [9.012 g/mol]

$N_A$  = número de Avogadro [6.022x10<sup>23</sup> átomos/mol]

Mientras que el error asociado a el cociente isotópico real, se determina mediante la ecuación 5.3

$$\sigma r = \sqrt{\left(\frac{\partial Rr}{\partial Rn}\right)^2 \sigma^2 n + \left(\frac{\partial Rr}{\partial Rs}\right)^2 \sigma^2 s + \left(\frac{\partial Rr}{\partial Rm}\right)^2 \sigma^2 m + \left(\frac{\partial Rr}{\partial Rb}\right)^2 \sigma^2 b} \quad \text{Ecuación 5.3}$$

Cada derivada parcial está determinada por las siguientes ecuaciones:

$$\frac{\partial Rr}{\partial Rn} = \frac{1}{Rs} (Rm - Rb) \quad \text{Ecuación 5.4}$$

$$\frac{\partial Rr}{\partial Rs} = -\frac{Rn}{R^2s} (Rm - Rb) \quad \text{Ecuación 5.5}$$

$$\frac{\partial Rr}{\partial Rm} = \frac{Rn}{Rs} \quad \text{Ecuación 5.6}$$

$$\frac{\partial Rr}{\partial Rb} = -\frac{Rn}{Rs} \quad \text{Ecuación 5.7}$$

Sustituyendo las ecuaciones 5.4, 5.4, 5.6 y 5.7 en 5.3 obtenemos la ecuación 5.8

$$\sigma r = \frac{1}{Rs} \sqrt{(Rn - Rb)^2 (\sigma^2 n + \left(\frac{Rr}{Rs} \sigma s\right)^2) + Rn^2 (\sigma^2 m - \sigma^2 b)} \quad \text{Ecuación 5.8}$$

El error de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  se calcula mediante la ecuación 5.9

$$\sigma NBe = \sqrt{\left(\frac{\partial NBe}{\partial Rr}\right)^2 \sigma^2 r + \left(\frac{\partial NBe}{\partial Mp}\right)^2 \sigma^2 Mp} \quad \text{Ecuación 5.9}$$

Resolviendo las derivadas parciales tenemos las siguientes ecuaciones

$$\frac{\partial NBe}{\partial Rr} = \frac{1}{M} \frac{MpNA}{MBe} \quad \text{Ecuación 5.10}$$

$$\frac{\partial NBe}{\partial Mp} = \frac{1}{M} \frac{RrNA}{MBe} \quad \text{Ecuación 5.11}$$

Sustituyendo las ecuaciones 5.10 y 5.11 en 5.9:

$$\sigma NBe = \sqrt{\left(\frac{1}{M} \frac{MpNA}{MBe}\right)^2 \sigma^2 r + \left(\frac{1}{M} \frac{RrNA}{MBe}\right)^2 \sigma^2 Mp} \quad \text{Ecuación 5.12}$$

El procedimiento para el  $^{26}\text{Al}$  es prácticamente el mismo. La única diferencia importante en el procesamiento químico es que la muestra contiene una cantidad relativamente grande de  $^{27}\text{Al}$  al ser un elemento abundante en la corteza terrestre, por lo que no es necesario agregar portador de Al [40]. Es necesario tomar una alícuota y determinar el valor de  $^{27}\text{Al}$  por la técnica XRF (descrita en el sub anexo I) para realizar la corrección del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ .

La concentración de  $^{26}\text{Al}$  está dada por la ecuación 5.13:

$$N_{Al} = \frac{1}{M} \left( \frac{R_{26}}{^{27}M_{Als}} \frac{N_A}{M_{Al}} - n_{26b} \right) \quad \text{Ecuación 5.13}$$

$N_{Al}$  = concentración de  $^{26}\text{Al}$  [átomos/m<sup>3</sup>]

$R_{26/27}$  = cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  de la medida de AMS

$M_{Als}$  = masa de la muestra [g]

$N_A$  = número de Avogadro [ $6.022 \times 10^{23}$  átomos/mol]

$M_{Al}$  = masa molar del  $^{27}\text{Al}$  [26.982 g/mol]

$n_{26b}$  = concentración de átomos de  $^{26}\text{Al}$  en blanco [átomos/m<sup>3</sup>]

El error asociado está dado por: la ecuación 5.14

$$\sigma_{N26} = \sqrt{\left( \frac{\partial N_{26}}{\partial R_{26/27}} \sigma_{R_{26/27}} \right)^2 + \left( \frac{\partial N_{26}}{\partial n_{26}} \sigma_{N_{26B}} \right)^2 + \left( \frac{\partial N_{26}}{\partial M_{Als}} M_{Als} \right)^2}$$

Ecuación 5.14

Las derivadas parciales son iguales a:

$$\frac{\partial N_{26}}{\partial R_{26/27}} = \frac{M_{Als} N_A}{M M_{Al}} \quad \text{Ecuación 5.15}$$

$$\frac{\partial N_{26}}{\partial n_{26}} = -\frac{1}{M} \quad \text{Ecuación 5.16}$$

$$\frac{\partial N_{26}}{\partial M_{Als}} = \frac{R_{26/27} N_A}{M M_{Al}} \quad \text{Ecuación 5.17}$$

Las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  se presentan en átomos/m<sup>3</sup>.

## CAPÍTULO 6

### Resultados y análisis

En este capítulo se exponen los valores del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ , para ello, primero se presentan los resultados de la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Para determinar si esta cuantificación de  $^{10}\text{Be}$  resulta ser un valor ideal, se compara con un modelo de transporte atmosférico y diversos trabajos realizados. Para la concentración del  $^{26}\text{Al}$ , en primera instancia se determinó la cantidad de alícuota necesaria para no caer por debajo del límite de detección, una vez hecho esto, se pudo cuantificar al  $^{26}\text{Al}$  y al igual que el  $^{10}\text{Be}$  se realizó una comparación con otros trabajos realizados. Obtenidas ambas concentraciones se pudo determinar el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ , además de realizar un análisis de correlación de éstas, con algunos parámetros climatológicos tales como lluvia y radiación solar permite la producción de ambos radioisótopos.

#### 6.1 Concentraciones de $^{10}\text{Be}$ en $\text{PM}_{2.5}$ en 2016

Las figuras 6.1 (6.1a a la 6.1d) muestran la variación de la concentración de  $^{10}\text{Be}$ , respecto a los meses de muestreo.

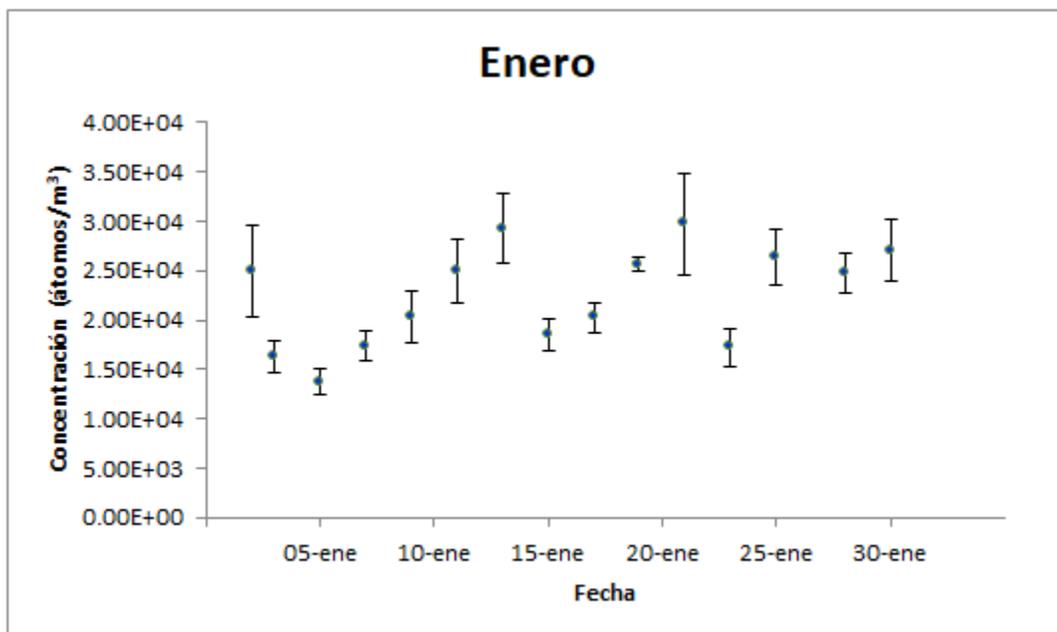


Figura 6.1a. Concentración de  $^{10}\text{Be}$  en el mes de enero

En la figura 6.1a se observa que para el mes de enero existe una variación significativa en la concentración, obteniéndose en dos ocasiones una máxima de  $3 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>, y las demás concentraciones en un intervalo de  $1.5$  y  $2.5 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>.

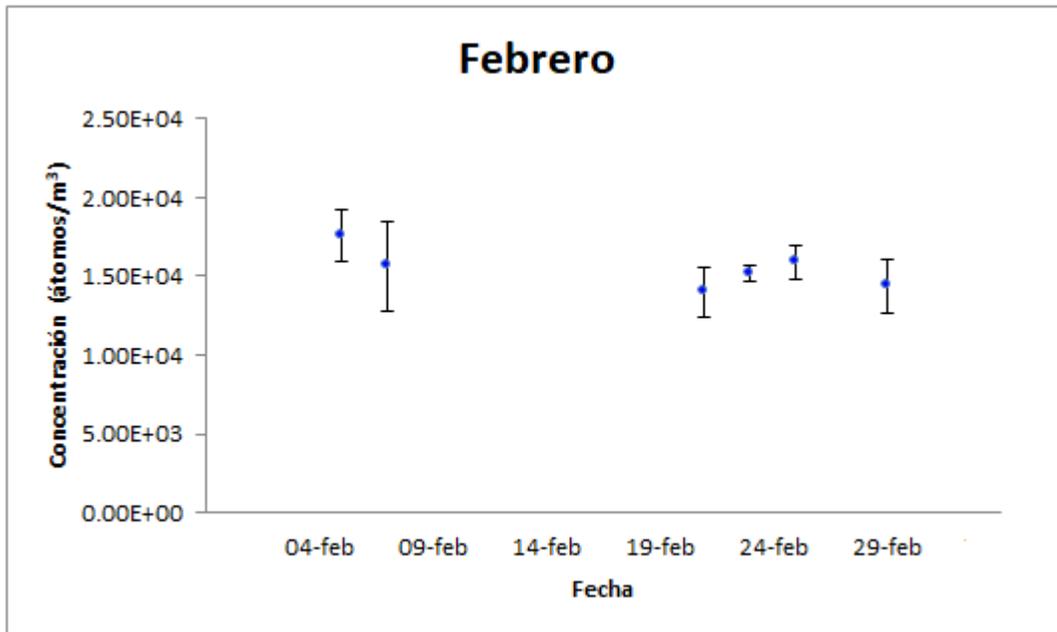


Figura 6.1b. Concentración de <sup>10</sup>Be en el mes de febrero

En la figura 6.1b se presenta la concentración obtenida para el mes de febrero, presentando un intervalo de menor variación respecto al mes de enero, ya que en este caso la concentración se encuentra entre los valores de  $1.5 \times 10^4$  a  $2 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>.

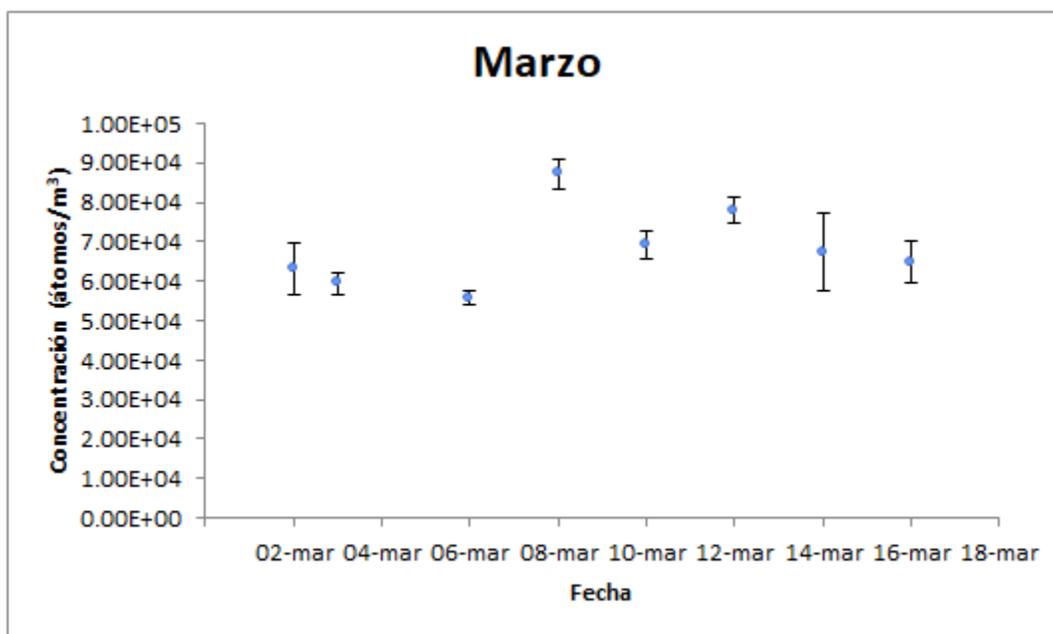


Figura 6.1c. Concentración de <sup>10</sup>Be en el mes de marzo

En el caso de las concentraciones para el mes de marzo presentadas en la figura 6.1c, se observan concentraciones más altas que las encontradas para los meses de enero y febrero. Donde la concentración menor para este mes fue de  $6 \times 10^4$  y la mayor de  $9 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>. La media de concentraciones se encuentra en el rango de  $6 \times 10^4$  a  $8 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>, si consideramos solo este rango de valores, no existe una variación significativa en las concentraciones para este mes.

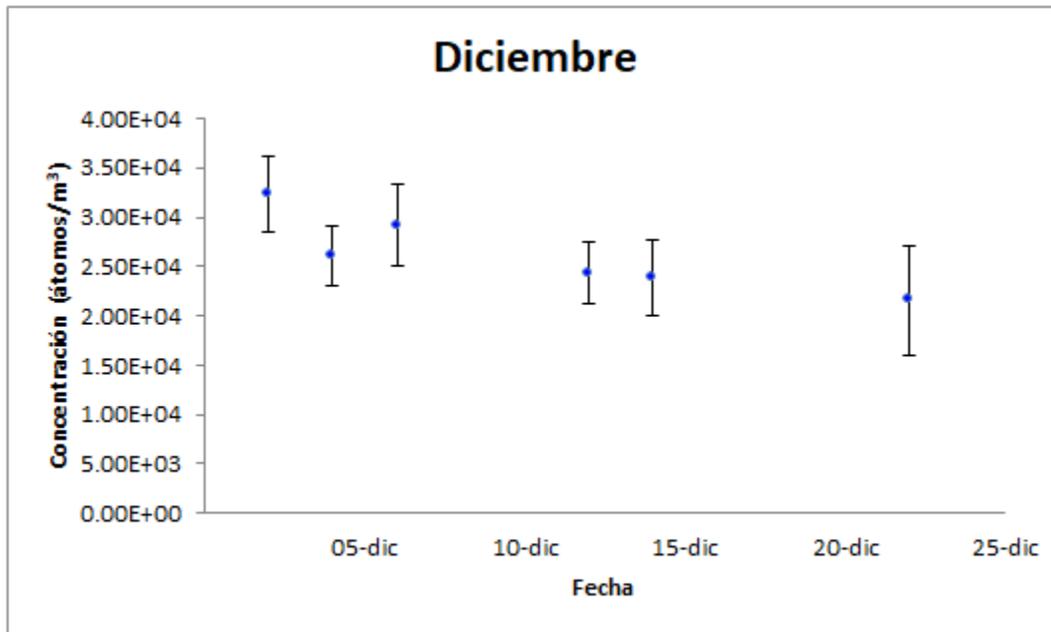


Figura 6.1d. Concentración de  $^{10}\text{Be}$  en el mes de diciembre

Por último, en la figura 6.1d correspondiente al mes de diciembre tampoco existe una variación significativa ya que el intervalo de concentraciones los valores se encuentran entre el rango de  $2.5 \times 10^4$  a  $3.5 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>.

Comparando las concentraciones de todos los meses, a pesar de que en todos encontramos el mismo orden de magnitud de  $10^4$ , marzo presenta concentraciones más altas que en los demás meses, de hecho, la concentración mínima de marzo, no es alcanzada en ningún mes, y prácticamente es el doble que la concentración más alta que enero y diciembre, y más del doble que en febrero. Los meses de febrero y diciembre no existe una variación significativa entre ninguna de sus muestras por lo que presentan la mayor consistencia de concentración. Mientras que para enero y marzo las concentraciones máximas y mínimas determinan una variación significativa entre las demás muestras.

En la tabla 6.1, se muestra la concentración promedio para cada mes analizado.

Tabla 6.1. Concentración promedio de  $^{10}\text{Be}$

Mes	$^{10}\text{Be}$ [átomos/m <sup>3</sup> ] x10 <sup>4</sup>
Enero	2.24 ± 0.24
Febrero	1.55 ± 0.15
Marzo	6.81 ± 0.46
Diciembre	2.59 ± 0.39

Para saber si existe diferencia significativa en la concentración promedio de  $^{10}\text{Be}$  respecto a los meses de muestreo, se realiza un análisis de varianza de un factor con un nivel de significancia de 0.05, con la siguiente hipótesis:

$H_0$ = el promedio de concentración de  $^{10}\text{Be}$  no varía respecto a los meses muestreados

Y las siguientes reglas de decisión

- 1) F estadístico < valor crítico para F; la hipótesis se acepta
- 2) F estadístico > valor crítico para F; la hipótesis se rechaza

Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 6.2

Tabla 6.2. Resultados de análisis de varianza

F estadístico	Valor crítico F
124.86	2.90

De acuerdo a los valores de la tabla 6.2, F estadístico es mayor que F crítico por lo que se cumple la condición número 2, la cual indica que existe una variación significativa en la concentración promedio de los meses muestreados en al menos dos concentraciones, lo que se puede deber a que no todos los meses tienen la misma cantidad de muestras.

Las concentraciones promedio de  $^{10}\text{Be}$  son comparadas con otros trabajos realizados y con el modelado del transporte atmosférico de los radionucleidos

cosmogénicos  $^{10}\text{Be}$  y  $^7\text{Be}$  utilizando el modo de circulación general ECHAM5 – HAM.

En la figura 6.2 se muestra la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en función de la altura y la latitud de acuerdo al modelo.

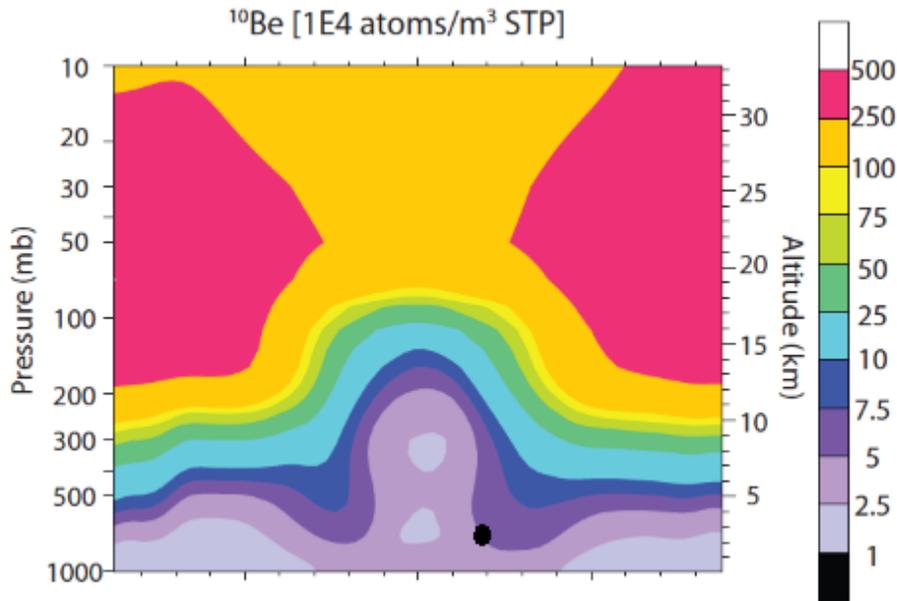


Figura 6.2. Concentración de  $^{10}\text{Be}$  en función de la altitud y latitud [12]

La altitud y latitud de la Ciudad de México son de 2.25 Km y 19°42' respectivamente, trasladando estos valores a la figura 6.2, el punto de ubicación se encuentra en la frontera entre la región color lila y la región color morada (punto negro), por lo que el rango de concentración es de 2.5 a 7.5 x10<sup>4</sup> átomos/m<sup>3</sup>. En este rango se encuentran prácticamente todas las concentraciones de este trabajo

En la tabla 6.3 se presentan los resultados obtenidos en otros trabajos.

Tabla 6.3. Concentración promedio de  $^{10}\text{Be}$  en otros trabajos

Localización	Altitud [m]	$^{10}\text{Be}$ [átomos/m <sup>3</sup> ] x10 <sup>7</sup>
Antártida [41]	15000	1.10±0.08
	20000	10.02±0.07
Alpes [42]	3100	7.1±3.4
	1200	4.4±2.3
Antártida [42]	Nivel del mar	4.3±2.1
		3.4±1.0
	Estratósfera	305±23
Sevilla, España [37]	30	0.005±0.0001
Ciudad de México [39]	2220 m	0.0057±0.00025
Ciudad de México (este trabajo)	2220 m	0.0033±0.00031 Valor promedio de todos los meses analizados

La concentración promedio en este trabajo estuvo en el orden de  $10^4$  átomos/m<sup>3</sup>, se puede observar que en comparación a otros trabajos reportados presenta el mismo orden de magnitud, sin embargo, en otros más se tiene diferencia de hasta 3 ordenes de magnitud, esta diferencia se debe a que las muestras fueron tomadas en la Antártida y en los Alpes debido a que la producción de  $^{10}\text{Be}$  es directamente proporcional a la altura y también es mayor en los polos. Su presencia en la atmósfera varía desde el orden de dos semanas en la troposfera hasta varios años en la estratosfera.

En los trabajos donde se presenta el mismo orden de magnitud, ambos fueron tomados de un centro urbano, podemos notar una pequeña influencia nuevamente de la altura, ya que el trabajo realizado en Sevilla, España presenta una concentración menor a los dos trabajos realizados en la Ciudad de México, incluido éste.

En el trabajo de Sevilla también se tienen concentraciones promedias para los meses de enero, febrero, marzo y diciembre que son  $[2.02 \pm 0.12, 5.27 \pm 0.32, 4.08 \pm 0.25$  y  $2.85 \pm 0.18] \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup> [37] respectivamente, aunque son TSP (partículas suspendidas totales). Se observa que se alcanzó la mayor concentración en el mes de febrero, mientras que en este trabajo fue el mes que obtuvo menor concentración, para el caso de marzo que fue la mayor concentración en este trabajo, hay una diferencia significativa con Sevilla, mientras que enero y diciembre son los meses con valores similares de concentración. Al no existir una tendencia podemos deducir que tanto las condiciones climatológicas como las coordenadas geográficas influyen en la concentración de <sup>10</sup>Be. Esta influencia se puede notar claramente en el otro trabajo realizado en la Ciudad de México, debido a que este se llevó a cabo durante los meses de noviembre, diciembre, obteniendo una concentración promedio de  $2.57 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>, prácticamente la misma concentración promedio obtenida en este trabajo para el mes de diciembre  $2.59 \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup>.

## **6.2 Determinación de la cantidad mínima de PM<sub>2.5</sub> necesaria para la medida de <sup>26</sup>Al mediante AMS**

En el caso del <sup>26</sup>Al para garantizar tener valores por arriba del límite de detección, para la medición de AMS fue necesario determinar la cantidad mínima necesaria de PM<sub>2.5</sub>. Para ello se realizó la medición de cada mes juntaron todas las muestras contenidas en ese mes. En el caso de enero y diciembre se realizaron también análisis por semana, porque se tenían muestras en todas las semanas de esos meses. Por lo que la masa de las alícuotas de <sup>26</sup>Al fue entre 0.1 a 2 miligramos, donde se llegaron a obtener hasta 24 cuentas (ROI Sum), como se muestra en la figura 6.3.

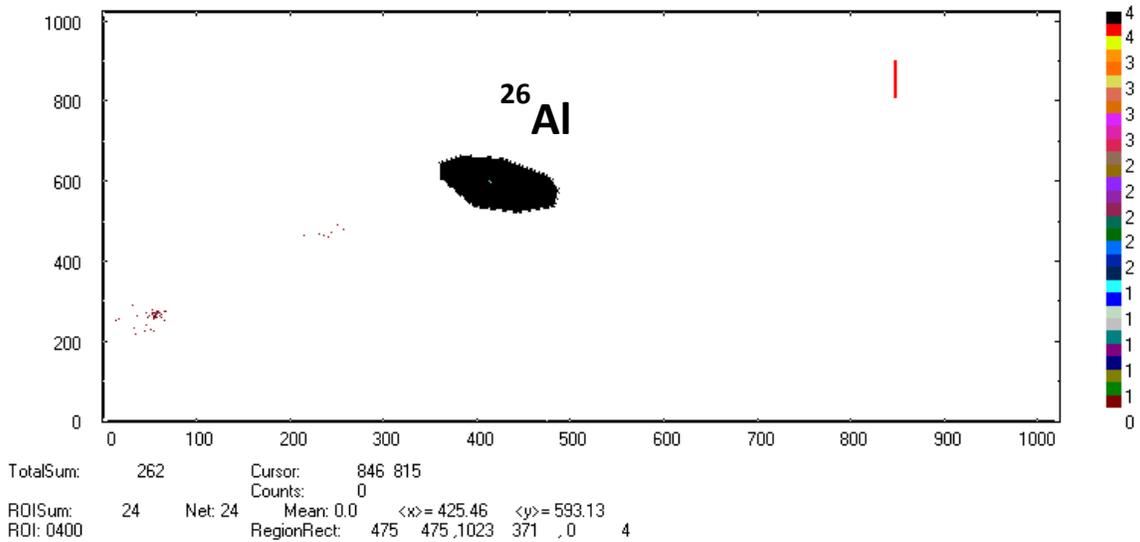


Figura 6.3. Espectro de  $^{26}\text{Al}$  para una muestra

En la tabla 6.4 se proporcionan las concentraciones de  $^{26}\text{Al}$ .

Tabla 6.4. Concentración de  $^{26}\text{Al}$

Fecha	Concentración [átomos/m <sup>3</sup> ] $\times 10^2$	Masa muestra [mg]	% Error
Enero	9.57 $\pm$ 0.47	1.88	4.95
	8.44 $\pm$ 0.29	1.88	3.84
Febrero	2.58 $\pm$ 0.09	0.73	3.43
	3.44 $\pm$ 0.06	0.73	1.08
Marzo	14.3 $\pm$ 0.83	0.58	5.82
	13.6 $\pm$ 0.09	0.58	2.66
Diciembre	2.14 $\pm$ 0.31	1.57	14.7
	1.84 $\pm$ 0.13	1.57	7.2
Semana 1 enero	3.69 $\pm$ 0.03	0.15	0.7
Semana 2 enero	16.8 $\pm$ 0.24	0.88	1.43
Semana 3 enero	20.1 $\pm$ 0.34	0.67	1.7
Semana 4 enero	85 $\pm$ 0.13	0.58	0.15
Semana 1 diciembre	3.16 $\pm$ 0.08	0.53	2.67
Semana 2 diciembre	4.84 $\pm$ 0.07	0.30	1.4
Semana 3 diciembre	1.72 $\pm$ 0.02	0.27	1.63
Semana 4 diciembre	56.2 $\pm$ 0.85	0.27	1.53

Se observa que para el mes de enero y diciembre se alcanzó una masa mayor a 1 miligramo, en diciembre se observa una diferencia de concentración entre ambas muestras, pero obteniendo un porcentaje de error mayor en una. En el caso de los meses de febrero y marzo tenemos muestras menores a 1 miligramo, febrero tiene concentraciones diferentes con los menores porcentajes de error, mientras que

marzo también presenta porcentajes de error bajos y concentración parecida, aunque esta aumenta en un orden de magnitud. Todas estas variaciones se pudieron deber a errores en el momento de colocar la muestra en el cátodo.

Tanto para enero como para diciembre, donde se presenta un perfil por semana no se puede establecer una tendencia entre la masa de la alícuota y la concentración, ya que no varían proporcionalmente.

Cabe destacar que las concentraciones de  $^{26}\text{Al}$  ya están corregidas por el factor de enriquecimiento, el cual se explica en el siguiente apartado.

### 6.3 Concentraciones de $^{26}\text{Al}$ en $\text{PM}_{2.5}$ en 2016

En la tabla 6.5 se presenta la concentración de  $^{26}\text{Al}$  por mes con la menor incertidumbre, para realizar una comparación entre los meses.

Tabla 6.5. Concentración de  $^{26}\text{Al}$  por mes.

Mes	$^{26}\text{Al}$ [átomos/ $\text{m}^3$ ] $\times 10^2$
Enero	$8.44 \pm 0.29$
Febrero	$3.44 \pm 0.06$
Marzo	$13.6 \pm 0.09$
Diciembre	$1.84 \pm 0.13$

Al ser paralela la producción de  $^{26}\text{Al}$  a el  $^{10}\text{Be}$  y presentar los mismos procesos de transporte y deposición, se espera que ambos radioisótopos presenten el mismo comportamiento en los meses muestreados. Para ambos radioisótopos marzo presenta la mayor concentración, seguido del mes de enero, pero la tendencia difiere en febrero y diciembre, ya que, para el  $^{26}\text{Al}$ , febrero presenta mayor concentración que diciembre y para el  $^{10}\text{Be}$  diciembre tiene mayor concentración que febrero. Esta variación se puede deber a que en el caso de el  $^{10}\text{Be}$  no se tomaron en cuenta todas las muestras en el mes de diciembre, debido a que sus espectros no fueron adecuados (ver anexo II).

Las concentraciones de  $^{26}\text{Al}$  están corregidas por el factor de enriquecimiento (FE), debido a que existe un exceso de  $^{26}\text{Al}$ , por el aporte de  $^{27}\text{Al}$ , que es un elemento en exceso en la corteza terrestre.

El FE se utiliza a menudo para detectar contribuciones de fuentes no corticales en concentraciones observadas de elementos. Los cálculos se basan generalmente en la composición media de la corteza continental superior [43].

El FE está dado por la ecuación

$$FE = \frac{\left(\frac{X}{R}\right)_{PM_{2.5}}}{\left(\frac{X}{R}\right)_{suelo}} \quad \text{Ecuación 6.1}$$

Donde:

X y R son respectivamente el elemento y la concentración del elemento de referencia en la muestra y la corteza.

El Al y el Fe son los elementos más utilizados para este fin [44], y en este caso se utilizó el Fe, de manera que la concentración corregida de  $^{26}\text{Al}$  está dada por la ecuación 6.2

$${}^{27}_{13}\text{Al}_{corr} (\text{átoms } m^{-3}) = \left[ {}^{27}_{13}\text{Al}_{PM_{2.5}} - \left( \frac{Fe_{PM_{2.5}}}{Fe_{suelo}} \times {}^{27}_{13}\text{Al}_{suelo} \right) \right] \times [PM]$$

Ecuación 6.2

Donde:

$\frac{Fe_{PM_{2.5}}}{Fe_{suelo}}$  es el factor de enriquecimiento

PM es la masa de la alícuota en  $g/m^3$

En la tabla 6.6 se muestran los datos representativos del FE

Tabla 6.6. Valores FE para  $^{26}\text{Al}$ .

Promedio FE	70.23
Valor mínimo FE	12.14
Valor máximo FE	154.42

El factor de enriquecimiento puede indicar emisiones naturales, fuentes marinas y actividades antropogénicas. Se asume que los elementos con FE menor a 10 se originan en la erosión de la corteza. Los elementos con valores de FE que oscilan entre 10 y 100 probablemente se enriquezcan moderadamente con fuentes antropogénicas [44]. En la tabla 6.6, observamos que el valor promedio de FE es de 70.23 por lo que el factor que está alterando la producción es de origen antropogénico, de hecho, en ninguna muestra el FE, es menor a 10, notando que el valor mínimo que se obtuvo fue de 12.14.

Mediante la concentración del  $^{27}\text{Al}$  en el material particulado deducimos que es correcto utilizar el FE, debido a que las concentraciones de aluminio en el aire varían entre 0.2 y 0.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en entornos rurales y 1 a 6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en entornos urbanos [45]. En la concentración de  $^{27}\text{Al}$  en las muestras todas fueron por arriba de esta concentración, lo que nos indicaba un exceso de Al.

También para el  $^{10}\text{Be}$  se realizó el FE, los datos se encuentran en la tabla 6.7.

Tabla 6.7. Valores FE para  $^{10}\text{Be}$ .

Promedio FE	0.28
Valor mínimo FE	0.07
Valor máximo FE	0.74

En este caso el FE es menor a 1, lo que indica que la concentración atmosférica calculada no es afectada por aporte de partículas provenientes del suelo y mucho menos por contribución antropogénica.

En la tabla 6.8 donde se compara el valor de la concentración promedio de  $^{26}\text{Al}$  con otros trabajos realizados, observamos que la concentración es aproximadamente 100 veces menor o inclusive más, para las muestras tomadas en la Antártida y los Alpes, debido a que al igual que el  $^{10}\text{Be}$ , el  $^{26}\text{Al}$  también varía con la latitud y altitud, siendo mayor a grandes alturas y en los polos, lo cual se puede notar perfectamente.

Tabla 6.8. Concentración promedio de  $^{26}\text{Al}$  en otros trabajos

Localización	Altitud [m]	$^{26}\text{Al}$ [átomos/m <sup>3</sup> ] x10 <sup>4</sup>
Antártida [41]	15000	4.38 ± 0.66
	20000	3.40 ± 0.99
Alpes [42]	3100	14.2 ± 7.2
	1200	8.77 ± 4.44
Antártida [42]	Nivel del mar	7.7 ± 3.9
		6.6 ± 2.4
	Estratósfera	541 ± 111
Sevilla, España [37]	30	0.72 ± 0.39
Ciudad de México (este trabajo)	2220 m	0.065±0.004 Valor promedio de todos los meses analizados

La concentración promedio de Sevilla es un orden de magnitud mayor, por lo cual el  $^{26}\text{Al}$  en este caso no presenta la misma tendencia que el  $^{10}\text{Be}$ , sin embargo, tomando las concentraciones solamente para los meses de enero, febrero, marzo y diciembre tenemos que son  $[1.1\pm 0.8, 6.2\pm 2.9, 11\pm 7, 9.7\pm 2.9]\times 10^2$  átomos/m<sup>3</sup> [37], a pesar de que también en marzo se alcanza una concentración mayor, no podemos establecer una tendencia, aunque este trabajo también se haya realizado en un centro urbano.

#### 6.4 Correlacionar las concentraciones de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$ , así como las concentraciones promedio de cada mes con los parámetros de radiación solar y temperatura

La actividad solar reduce el flujo de rayos cósmicos primarios responsables de la formación de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ . Por lo que se buscó correlacionar las concentraciones de ambos radioisótopos con algún parámetro que pueda ser medido, en este caso la radiación solar, debido a que esta muestra variaciones de aproximadamente el 0.1% de la actividad solar [46].

Se determinó un coeficiente de correlación para ambos radioisótopos presentado en la tabla 6.9 por cada mes con el valor de concentración de todas las muestras, y la radiación solar (valor obtenido del Programa de Estaciones Meteorológicas del Bachillerato Universitario "PEMBU") en el día de muestreo.

Tabla 6.9 Coeficiente de correlación

Mes	Coeficiente de correlación $^{10}\text{Be}$	Coeficiente de correlación $^{26}\text{Al}$
Enero	-0.15	-0.12
Febrero	0.30	
Marzo	-0.06	
Diciembre	0.28	0.34

En el caso del  $^{26}\text{Al}$  solo se presentan los valores para enero y diciembre, fueron los únicos que se pudieron determinar, debido a que había un perfil por semana, mientras que en los otros meses solo se tenía un dato de concentración.

En ningún radioisótopo se observó una correlación, se esperaba que al ser una relación inversa al menos los resultados fueran negativos, pero en febrero y diciembre resultaron ser positivos.

No se pudo correlacionar la concentración de los radioisótopos con la radiación solar, esto no quiere decir que la actividad solar no interfiera en la producción del  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ , pero depende en conjunto con la variación del campo magnético terrestre y como se ha visto con la altitud y latitud.

Debido a que no se pudo correlacionar la concentración con la radiación solar, tomando los datos de cada día, solo se buscó correlacionar las concentraciones promedio del mes. Los datos promedios de la radiación solar y la temperatura se encuentran en la tabla 6.10.

Tabla 6.10. Valores promedio de la temperatura y radiación solar

Mes	Temperatura [C]	Radiación solar [W/m <sup>2</sup> ]
Enero	13.43	149.17
Febrero	15.77	204.74
Marzo	15.64	199.98
Diciembre	15.4	161.93

Los coeficientes de correlación para el <sup>26</sup>Al y <sup>10</sup>Be con respecto a la temperatura y radiación solar se encuentran en la tabla 6.11.

Tabla 6.11. Coeficientes de correlación

Radioisótopos	Coeficiente de correlación para temperatura	Coeficiente de correlación para radiación solar
<sup>10</sup> Be	0.29	0.37
<sup>26</sup> Al	0.27	-0.41

Se obtuvieron valores muy alejados de uno, por lo que no es posible establecer una correlación, además en el caso de la radiación solar, no se obtuvo el mismo signo.

No fue posible correlacionar las concentraciones de todo un mes, o las promedio con algún parámetro de medición.

### 6.5 Cociente isotópico <sup>26</sup>Al/<sup>10</sup>Be

Una vez determinadas las concentraciones de <sup>26</sup>Al y <sup>10</sup>Be se procedió a determinar el cociente isotópico <sup>26</sup>Al/<sup>10</sup>Be, se presenta el cociente para todos los meses, pero en el caso de diciembre se presenta un perfil semanal, debido a que no presento un valor similar a los otros meses, ni a los valores reportados en otros trabajos, debido a la cantidad de muestras que no fueron adecuadas para este mes. También se

presentan los valores de error para los meses de enero, febrero y marzo, para determinar si todo el  $^{26}\text{Al}$  es de origen atmosférico.

En la figura 6.4 se presenta el cociente isotópico para los meses de enero, febrero y marzo.

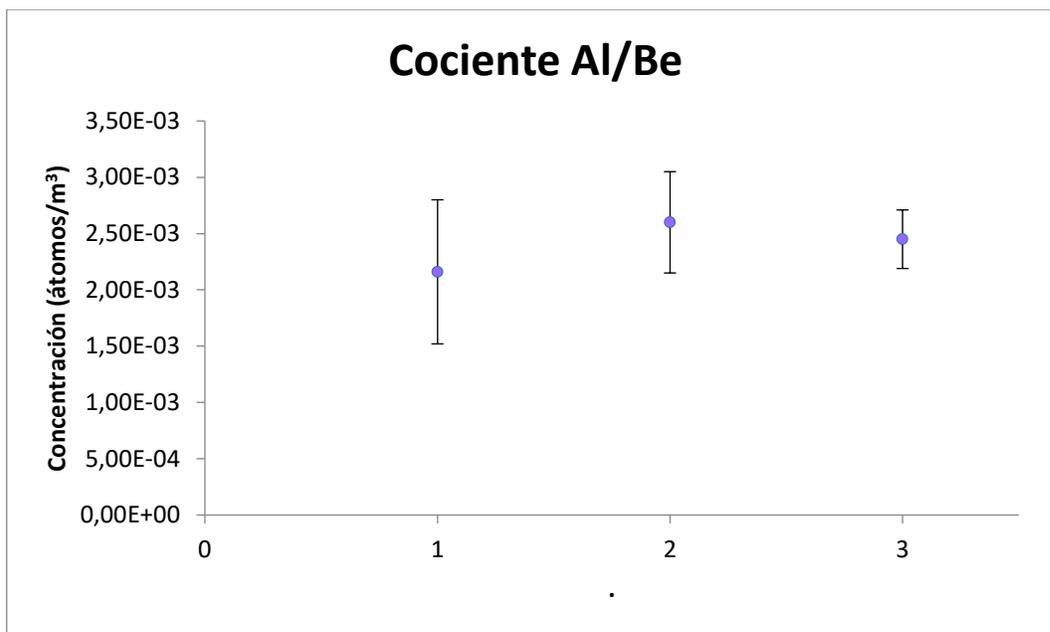


Figura 6.4 Cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en  $\text{PM}_{2.5}$

El cociente isotópico es de  $10^{-3}$ , y en la figura 6.4, se observa que no presenta una variación significativa.

Si tenemos en cuenta que la producción de  $^{26}\text{Al}$  es 500 veces menor que la del  $^{10}\text{Be}$ , el cociente sería  $1/500 = 2 \times 10^{-3}$ , en este trabajo el cociente isotópico presenta valores de  $[2 \text{ a } 2.6] \times 10^{-3}$ , lo que nos indica que el cociente isotópico es correcto

La tabla 6.12, muestra una comparación entre el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  encontrado en la ciudad de México y en otros trabajos, este dato, es el primero reportado para este punto de muestreo, debido a que anteriormente la determinación de  $^{26}\text{Al}$  por AMS quedó debajo del límite de detección (LDD) [39], por esta razón lo primero se buscó al iniciar este proyecto fue determinar la cantidad mínima de  $\text{PM}_{2.5}$  necesaria para superar el LDD de  $^{26}\text{Al}$  en AMS.

Tabla 6.12. Cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en otros trabajos

Localización	Altitud [m]	$[^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}] \times 10^{-3}$
Antártida [41]	15000	$3.98 \pm 0.97$
	20000	$3.33 \pm 1.0$
Alpes [42]	3100	$1.99 \pm 0.26$
	1200	$1.99 \pm 0.21$
Antártida [42]	Nivel del mar	$1.79 \pm 0.15$
		$1.92 \pm 0.21$
	Estratósfera	$1.78 \pm 0.29$
Sevilla, España [37]	30	$20 \pm 19$
Ciudad de México (este trabajo)	2220 m	$2.4 \pm 0.12$ Valor promedio de todos los meses analizados

En los trabajos de la Antártida y los Alpes, si bien en algunos casos el cociente isotópico es mayor y en otra menor al obtenido en este trabajo, considerando la desviación estándar prácticamente se encontrarían en la relación 1/500, por lo cual deducimos que en las concentraciones si hay una influencia de las condiciones geográficas, pero en la relación isotópica no. En el caso del trabajo realizado en Sevilla, observamos que, a pesar de ser un centro urbano, el cociente isotópico es de un orden mayor, esto se puede explicar debido a que en ese trabajo no se consideró el FE. De hecho, en la tabla 6.13. se muestran los de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  de este trabajo, sin considerar el FE.

Tabla 6.13. Cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  sin considerar FE

Mes	$^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be} [10^{-2}]$
Enero	2.45
Febrero	2.60
Marzo	4.36

En este caso el valor de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  es del orden de  $10^{-2}$ , por lo cual la relación 1 a 500 ya no sería válida. Nos percatamos de la importancia de considerar el FE en el aluminio.

En el caso del cociente isotópico del mes de diciembre, los resultados se presentan en la tabla 6.14.

Tabla 6.14. Cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en el mes de diciembre

Localización	$[^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}] \times 10^{-3}$
Semana 1 diciembre	$1.37 \pm 0.24$
Semana 2 diciembre	$0.94 \pm 0.12$
Semana 3 diciembre	$1.15 \pm 0.38$
Semana 4 diciembre	$0.31 \pm 0.05$

En cada semana de diciembre se presentaron espectros no adecuados (ver anexo II), debido a la interferencia del isobaro  $^{10}\text{B}$  en la primera semana, que es un valor que entra en el rango del cociente isotópico de los meses de enero, febrero y marzo, se presentó un espectro no adecuado, mientras que las demás semanas presentan mínimo 2 espectros no adecuados, lo cual interfiere en el valor  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ , siendo mas evidente en las dos últimas semanas donde el valor  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  a pesar de ser del mismo orden de magnitud es más alto.

Para saber si la producción de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  es puramente atmosférica el cociente isotópico debe tener un error igual o menor al 15% [18].

En la tabla 6.15, se presenta el error para los meses enero, febrero y marzo.

Tabla 6.15. Porcentajes de error en los meses muestreados.

Mes	%Error
Enero	11.9
Febrero	13.2
Marzo	6.9

En todos los casos es menor al 15% lo que indica que la producción es puramente atmosférica, aunque hay que recordar que si hay aporte ya sea por el fenómeno de re-suspensión debido a que este es común en centros urbanos y como se vio con el valor de FE, por factores antropogénicos, por lo que se corrigió la concentración de  $^{26}\text{Al}$ .

El valor  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  temporal es constante y en este trabajo cumple la relación 1 a 500, por lo que puede utilizarse como trazador de intercambios atmosféricos. Dependiendo del valor del  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  se podrá determinar si la producción solo se dio en alguna capa de la atmósfera, en donde no existirán intercambios atmosféricos o si se presentaron estos. En la tabla 6.16 se encuentran los valores del cociente isotópico, para latitudes medias ( $30^\circ - 60^\circ$ ) y altas ( $60^\circ - 90^\circ$ ), según el modelo de tasa de producción de isótopos [47].

Tabla 6.16. Cociente isotópico para latitudes medias y altas

	Latitud 30 a 60	Latitud 30 a 60	Latitud 60 a 90	Latitud 60 a 90
Capa	$^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$ producción (%)	$^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$ producción (%)
Troposfera	1.6	20	1.8	10
Estratosfera	2.4	80	2.5	90
Troposfera más estratosfera	2.3		2.3	

Aproximando el valor de la latitud de la Ciudad de México el valor de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  es de  $2.4 \times 10^{-3}$ , que es el valor promedio obtenido, además que prácticamente todos los valores de los meses se encuentran en ese rango. De la tabla observamos que para este valor predomina la producción estratosférica, por lo cual no existen intercambios de troposfera-estratosfera.

## Conclusiones

En el perfil de  $^{10}\text{Be}$  se obtuvo una concentración del orden de  $10^4$  átomos/ $\text{m}^3$ , mismo orden que en los trabajos realizados en un centro urbano. Así como también la concentración se encuentra en el rango de valores de acuerdo al modelado de del transporte atmosférico de los radionucleidos cosmogénicos  $^{10}\text{Be}$  y  $^7\text{Be}$  utilizando el modo de circulación general ECHAM5 – HAM. Además, en la comparación con las mismas condiciones geográficas y climatológicas se obtiene prácticamente la misma concentración. Esto indica que la concentración de  $^{10}\text{Be}$  es constante.

Con alícuotas mayores a 1 miligramo se pudo cuantificar por primera vez la concentración de  $^{26}\text{Al}$ , aunque incrementando la cantidad de  $^{26}\text{Al}$  en el cátodo, se podrían obtener mayores detecciones. Es recomendable un análisis de repetibilidad y reproducibilidad para determinar la cantidad mínima necesaria de  $^{26}\text{Al}$

Es necesario considerar el factor de enriquecimiento para no sobrestimar la concentración de  $^{26}\text{Al}$ , a partir de la del  $^{27}\text{Al}$ , ya que al ser tan abundante en la naturaleza puede haber un aporte adicional de este en el material particulado. Afectando la concentración de  $^{26}\text{Al}$  y por ende el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$ .

Tanto la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  presentan prácticamente la misma tendencia de concentración, teniendo una concentración máxima en marzo y enero y mínima en febrero y diciembre

No se pudo establecer una correlación con algún parámetro para las concentraciones de estos radioisótopos lo que indica que estos parámetros no influyen en la concentración de los radioisótopos en el  $\text{PM}_{2.5}$ .

Sin importar las diferencias entre concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  y/o de  $^{26}\text{Al}$  entre los meses el cociente isotópico a escala temporal es constante, por lo que puede ser utilizado como un trazador atmosférico.

Si no se considera el factor de enriquecimiento, el cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  presenta un orden mayor de magnitud y no se respeta la relación 1/500.

El valor menor del cociente  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  de este trabajo, respecto a los hechos en la Antártida, sugiere que no existen intercambios atmosféricos en los meses muestreados.

## Anexo I

### Técnica por fluorescencia de rayos X (XRF)

La fluorescencia de rayos X (XRF) se basa en la medida de la energía de la radiación electromagnética absorbida o emitida en transacciones electrónicas de un átomo que pasa de un estado basal (estable) a otro de mayor energía (inestable).

El fenómeno de XRF inicia con la absorción fotoeléctrica, en donde un fotón con alta energía interactúa con la muestra, lo que provoca que se rompa la energía de enlace de un electrón de las capas internas del átomo para que este sea expulsado y el átomo quede en un estado altamente excitado (inestable).

En la figura a1.1 se observa pasar un electrón de otra capa y con una energía diferente a la del electrón saliente donde la diferencia de energía, se emite en forma de radiación de rayos X. El fotón de rayos X emitido tendrá una energía específica igual a la diferencia entre las dos energías de enlace de un electrón de las capas interna y adyacente y esta energía es única para cada elemento [31].

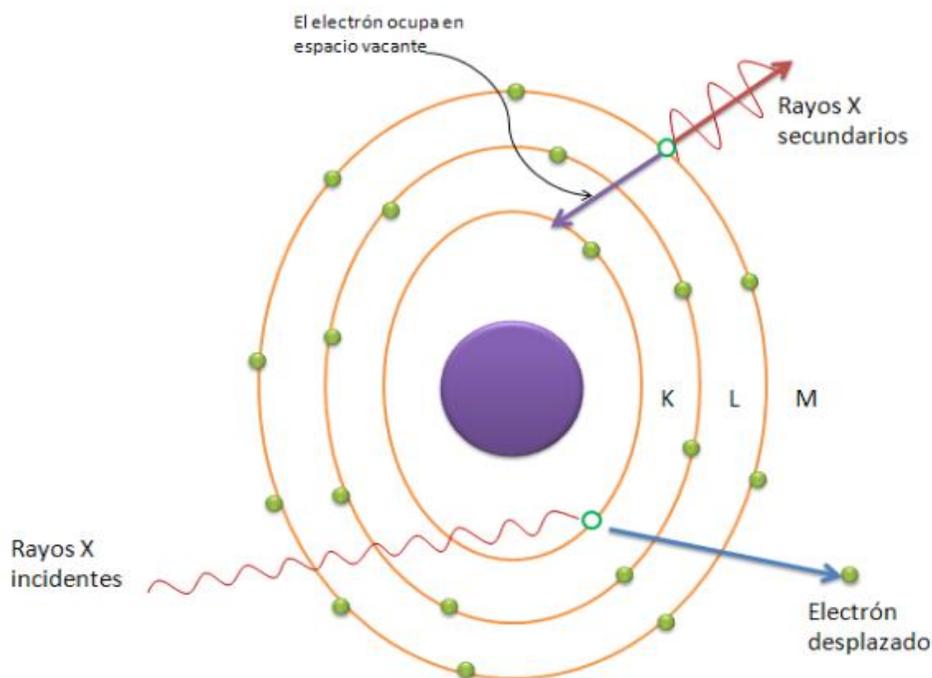


Figura a1.1. Descripción de XRF [33]

Los principales componentes de un equipo de XRF son los tubos de rayos X que pueden ser de molibdeno (Mo), rodio (Rh) o wolframio (W), con un voltaje de 75 W que se pueden combinar con detectores de Si-PIN y Cd-Te para analizar regiones de 0.5 a 4 mm de diámetro.

El láser que permite definir el punto de análisis sobre la muestra, de manera que se mantengan constantes las distancias entre la muestra al tubo y al deflector [29].

Las ventajas de la fluorescencia de rayos X, es que el análisis no es destructivo, determinación rápida, interpretación de resultados simple, permite determinar varios elementos a la vez, preparación de muestras mínima [31].

### **Sub anexo I**

Cuando se obtuvo el  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , se destinaron 50  $\mu\text{L}$  para el análisis por fluorescencia de rayos X, para determinar la cantidad de  $^{27}\text{Al}$  presente en la muestra de manera que se hiciera la corrección del cociente isotópico  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ . Para esto se utilizaron por cada muestra un filtro de policarbonato de tipo 0.2 $\mu\text{m}$  GTTP, donde se adiciono el volumen de la muestra y posteriormente se evaporo para realizar el análisis XRF.

Para lo cual también fue necesario realizar una curva de calibración con concentraciones de  $^{27}\text{Al}$  conocidas para obtener una ecuación de relación entre área y concentración. De esta forma con los valores de área obtenidas por el análisis XRF para cada muestra, se puede obtener su concentración.

Las concentraciones utilizadas 1000, 1250, 1667, 2500 y 5000 ppm. La tabla a1 presenta el valor del área obtenido para cada concentración.

Tabla a1. Áreas obtenidas mediante el análisis XRF

Concentración [ppm]	Área
1000	146
1250	209
1667	255
2500	399
5000	697

Con estos datos se pudo obtener la curva de calibración de la figura a1.2.

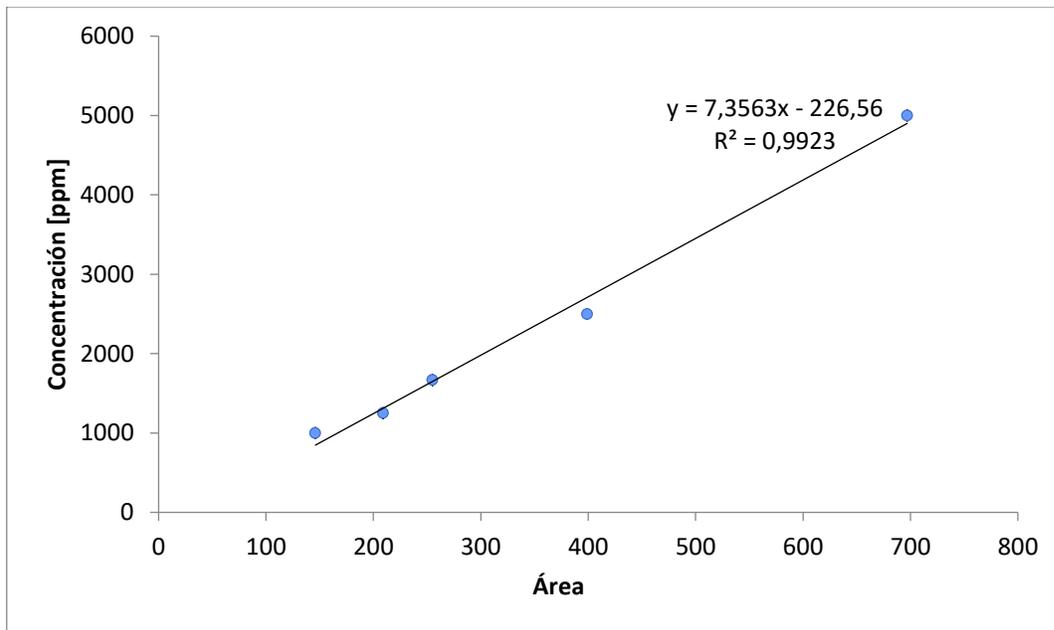


Figura a1.2. Curva de calibración

De acuerdo a la ecuación tenemos:

$$\text{Concentración [ppm]} = 7.3563\text{Área} - 226.56 \text{ Ecuación a1}$$

## Anexo II

Se presentan los espectros de energía del  $^{10}\text{Be}$ , para observar la diferencia entre los espectros que fueron tomados en cuenta (figura a2.1), y los que no para el mes de diciembre (figura a2.2).

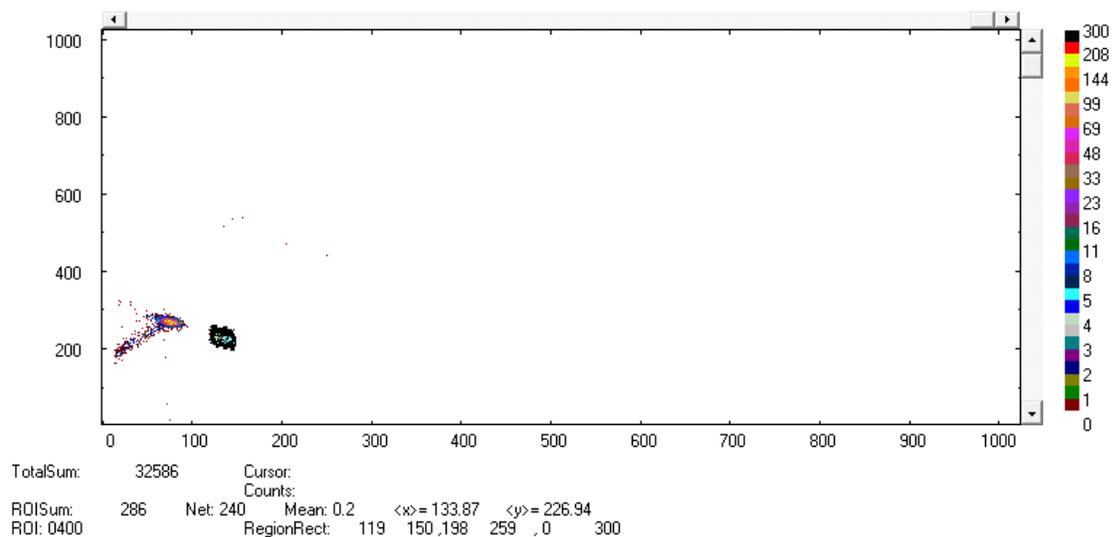


Figura a2.1. Espectro de  $^{10}\text{Be}$  adecuado

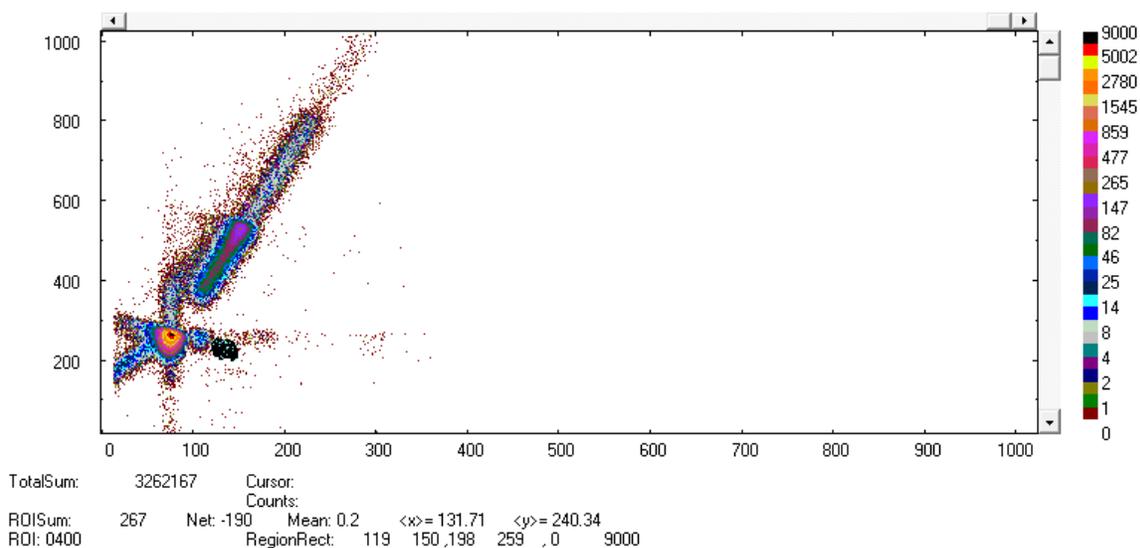


Figura a2.2. Espectro de  $^{10}\text{Be}$  no adecuado

A pesar de que ambos espectros presentan detecciones similares, debido a que el espectro de la figura a2.1 tiene 286 contra 267 del espectro de la figura a.2, este

último no fue tomado en cuenta debido a la gran interferencia que tiene el isobaro  $^{10}\text{B}$ , que pudo deberse a que el proceso de extracción radioquímica no fue llevado a cabo correctamente en algunas muestras.

## Bibliografía

- [1] Núñez, Lagos, Rafael, "La radioactividad ambiental", Logos Ciencia y Tecnología, Vol. 2, No 2, 2011, pp. 50-61
- [2] López, Muñoz, Beatriz; Iturbide, García, José; "Radiactividad natural y artificial en nuestro entorno," Ciencia AMC, 2004
- [3] Mendoza, Ortega, Blanca, "Actividad solar y clima", Monografías del Instituto de Geofísica, 8, UNAM
- [4] Buchmann, L., Baumeister, H. and Rolfs, C. (1984). "*The fabrication of  $^{26}\text{Al}$  targets.*" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 4.(1): 132-151 p.
- [5] Finkel, R.C.S., M. (1993). "*AMS in the Earth Sciences: Technique and Applications*", JAI PRESS INC.
- [6] Sharma, P., Middleton, R. (1989). "*Radiogenic production of  $^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$  in uranium and thorium ores: implications for studying terrestrial samples containing low levels of  $^{10}\text{Be}$  and Al.*" Geochimicaet Cosmochimica Acta 53: 709 p.
- [7] ESCALANTE, Sigfrido; GASQUE, Laura. El origen de los elementos y los diversos mecanismos de nucleosíntesis. Educ. quím, México, v. 23, n. 1, p. 62-68, 2012
- [8] Estévez, J., Villaseñor, L., González, A., Moreno, A., "Medición de la razón de muones positivos a negativos es la radiación cósmica secundaria," Revista Mexicana de Física, No. 4, 1995, pp-649-692
- [9] Nishiizumi, K., Imamura, M., Caffee, M.W., Southon, J.R., Finkel, R.C. and McAninch, J. (2007). "*Absolute calibration of  $^{10}\text{Be}$  AMS standards.*" Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.258(Copyright (C) 2015 American Chemical Society (ACS). All Rights Reserved.): 403-413 p.
- [10] Nishiizumi, K. (2004). "*Preparation of  $^{26}\text{Al}$  AMS standards.*" Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.223-224. (Copyright (C) 2015 American Chemical Society (ACS). All Rights Reserved.): 388-392
- [11] Mook, W., Isótopos ambientales en el ciclo hidrológico: principios y aplicaciones, Madrid, Instituto Geológico de España, 2002.

[12] Heikkilä U. (2007). "Modeling of the atmospheric transport of the cosmogenic radionuclides  $^{10}\text{Be}$  and  $^7\text{Be}$  using the ECHAM5-HAM General Circulation Model". Zürich, ETH Zürich. Doctor of Sciences.

[13] Dunai T.J. Cosmogenic nuclides: principles, concepts, and applications in the earth surface sciences. Cambridge University Press 2010

[14] Jürg Beer R.v.S. Ken McCracken. Cosmogenic Radionuclides: Theory and Applications in the Terrestrial and Space Environments. Physics of Earth and Space Environments, Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 1 ed. 2012

[15] Field, C.V., Schmidt, G.A., Koch, D. and Salyk, C. (2006). "Modeling production and climate-related impacts on  $^{10}\text{Be}$  concentration in ice cores." Journal of Geophysical Research: Atmospheres. 111. (D15): D15107 p.

[16] von Blanckenburg, F., Belshaw, N.S. and O'Nions, R.K. (1996). "Separation of  $^9\text{Be}$  and cosmogenic  $\text{Be}$  from environmental materials and SIMS isotope dilution analysis." Chemical Geology. 129.(1–2):93-99 p.

[17] von Blanckenburg, F. (2006). "The control mechanisms of erosion and weathering at basin scale from cosmogenic nuclides in river sediment." Earth and Planetary Science Letters. 242.(3–4): 224-239 p.

[18]. Canoas, F., "Datación Radiactiva", Física Nuclear y partículas, 2006-2007

[19] Auer, M., Kutschera, W. Priller, A., Wagenbach, D., Wallner, A., Wild, E.M. (2007). "Measurement of  $^{26}\text{Al}$  for atmospheric and climate research and the potential of  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  ratios." Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 259.(1): 595-599 p.

[20] Mook, W., "Isótopos naturales de elementos diferentes Al, H, C, O", Isótopos ambientales en el ciclo hidrológico, 2002

[21] Schell, W., "Environmental measurements of radioactive gases," Low-level Measurements of Radioactivity in The Environment: Techniques and Applications- Proceedings of The Third International Summer School, p. 195, 1994.

[22] BERNAL, Juan Pablo; BERAMENDI OROSCO, Laura E.; LUGO-IBARRA, Karina C. y DAESSLE, Luis Walter. Revisión a algunos geocronómetros radiométricos aplicables al Cuaternario. *Bol. Soc. Geol. Mex* [online]. 2010, vol.62, n.3 [citado 2020-01-14], pp.305-323.

[23] Hogg, A.G., Fifield, L.K., Turney, C.S.M., Palmer, J.G., Galbraith, R., Baillie, M.G.K., 2006, Dating ancient wood by high-sensitivity liquid scintillation counting and accelerator mass spectrometry – Pushing the boundaries: Quaternary Geochronology, 1, 241–248.

[24] Rodríguez Ferreira Maltez D.P. Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores. PhD thesis, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires, 2016

[25] Gómez-Guzmán, J.M. (2010). *"Medida de <sup>129</sup>I en el sistema de Espectrometría de Masas con Aceleradores de 1 MV del Centro Nacional de Aceleradores. Aplicación a problemas ambientales."* Física Atómica, Molecular y Nuclear. Sevilla., Universidad de Sevilla.

[26] Tuniz C., B.J.R., Fink D. Herzog, G.F. (1998). *Accelerator mass spectrometry: Ultrasensitive Analysis for Global Science*, LLC, CRC Press, Boca Raton, FL.

[27] Child, D., Elliott, G., Mifsud, C., Smith, A. and Fink, D., "Sample processing for earth science studies at antares", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 172, no. 1-4, pp 856-860, 2000

[28] Hellborg, R., Faarinen, M., Kiisk, M., Magnusson, C-E., Persson, P., Skog, G., and Stenström, K., "Accelerator mass spectrometry-an overview," Vacuum, vol. 70, no. 2, pp. 365-372, 2003

[29] Jull, A. T., and Burr, G., "Accelerator mass spectrometry; Is the future bigger or smaller," Earth and Planetary Science Letters, vol. 243, no. 3, pp. 305- 325, 2006

[30] Jull, A., Burr, G., Beck, J., Donahue, D., Biddulph, D., Hatheway, A., Lange, T., and McHargue L., "Accelerator mass spectrometry at Arizona: geochronology of the climate record and connections with the ocean," Journal of environmental radioactivity, vol. 69, no. 1, pp. 3-19, 2003

[31] Kutschera, W. "Accelerator mass spectrometry: From nuclear physics to dating" Radiocarbon, vol 25, no. 2, pp. 667-691, 1983

- [32] Liu, K., Gao, H., Zhou, L., Xu, F., Peng, S., Yuan, J., and Guo, Z., "Ams measurements of  $^{10}\text{Be}$  concentration in chinese loess using pkuams" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 223, pp. 168-171,2004
- [33] Vogel, J. S., Turteltaub, K. W., Finkel, R., and Nelson, D. E., "Accelerator mass spectrometry," Analytic Chemistry, vol. 67, no.11, pp 353A-359A, 1995, PMID 9306729
- [34] H.E. "Principles and applications" E. de Hoffmann et V, 20
- [35] Aragón, J., Determinación de la medida  $^{14}\text{C}$  por espectrometría de masas con aceleradores. 12 2015.
- [36] Calvo, E. C., Medida de isótopos de Plutonio,  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{240}\text{Pu}$ , mediante espectrometría de masas con aceleradores de baja energía, Universidad de Sevilla, 2009
- [37] Domínguez, S, P., Medidas de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en espectrometría de masas con acelerador de baja energía en el Centro Nacional de Aceleradores, PhD thesis, Universidad de Sevilla, 2015
- [38] León Dueñas, S.D, Aceleradores, técnicas de análisis, laboratorios del CNA y sus aplicaciones. Universidad de Sevilla
- [39] Borges Sánchez Aurora, Caracterización de isótopos cosmogénicos mediante Espectrometría de Masas con Aceleradores, tesis, Ciudad Universitaria, México, 2019
- [40] Greg Balco, Converting Al and Be isotope ratio measurements to nuclide concentrations in quartz, Cosmogenic Nuclide Lab, University of Washington, mayo 2006.
- [41] Raisbeck, G.M., Yiou, F., Klein, J. and Middleton, R. (1983). "Accelerator mass spectrometry measurement of cosmogenic  $^{26}\text{Al}$  in terrestrial and extraterrestrial matter." Nature. 301.(5902): 690-692.
- [42] Auer, M., Wagenbach, D., Wild, E.M., Wallner, A., Priller, A., Miller, H., Schlosser, C., Kutschera, W. (2009). "Cosmogenic  $^{26}\text{Al}$  in the atmosphere and the prospect of a  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  chronometer to date old ice." Earth and Planetary Science Letters. 287.(3–4): 453-462 p.

[43] Rudnick, R.L., Gao, S., 2003. The composition of the continental crust, in Treatise on Geochemistry, edited by Holland, H.D., Turekian, K.K., Elsevier–Pergamon, Oxford, pp. 1–64.

[44] Reshmi D, Bahareh K, Bijayan S, Subhajt D, Pradip K. S, Richard D. W, Xianfeng W, Trace element composition of PM2.5 and PM10 from Kolkata – a heavily polluted Indian metropolis, Atmospheric Pollution Research 6 (2015) 742-750

[45] WHO/IPCS (World Health Organization International Programme on Chemical Safety, 1997. Environmental Health Criteria 194, Aluminium. World Health Organization, Geneva, pp. 282.

[46] Netting, Ruth, (2013), NASA  
[https://ciencia.nasa.gov/cienciasespeciales/08jan\\_sunclimate](https://ciencia.nasa.gov/cienciasespeciales/08jan_sunclimate)

[47] Masarik, J., Beer, J., 1999. Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere. J. Geophys. Res. D104 (10), 12099–13012.