



---

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO  
FACULTAD DE CIENCIAS

CARACTERIZACIÓN DE ISÓTOPOS  
COSMOGÉNICOS MEDIANTE  
ESPECTROMETRÍA DE MASAS CON  
ACELERADORES

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:  
**FÍSICA**

PRESENTA:  
**Aurora Guadalupe Borges Sánchez**

DIRECTOR:  
Dra. Carmen Griselda Méndez García



Ciudad Universitaria, CDMX, 2019



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**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.

---

1. Datos del alumno

Borges  
Sánchez  
Aurora Guadalupe  
56 1432 1518  
Universidad Nacional Autónoma de  
México  
Facultad de Ciencias  
Física  
415010825

2. Datos del tutor

Dra  
Carmen Grisel  
Méndez  
García

3. Datos del sinodal 1

Dr  
Efraín Rafael  
Chávez  
Lomelí

4. Datos del sinodal 2

Dr  
Miguel Ángel  
Martínez  
Carrillo

5. Datos del sinodal 3

Dra  
Corina  
Solís  
Rosales

6. Datos del sinodal 4

Dra  
María Elba  
Ortiz  
Romero Vargas

7. Datos del trabajo escrito

Caracterización de isótopos comogénicos mediante espectrometría de masas con aceleradores  
60 p  
2019

*A la memoria de mis abuelos: Susana, Consuelo, Celso y Tachito.  
Por darme todo su amor.*

# Agradecimientos

---

A mis padres, Aurora Sánchez y Lorenzo Borges por todo su apoyo, paciencia y motivación, pero sobre todo por todo el amor que me brindan día a día.

A mis hermanas Diana y Mariana, por motivarme siempre a alcanzar mis metas, por todos esos buenos momentos que hemos pasado que me hacen sentir todo su cariño. Las quiero mucho.

A Gaby y Jenaro, por acompañarme durante todo este camino con su amistad. Agradezco su tiempo para reír y llorar juntos, escucharme y por su apoyo incondicional cuando más lo necesité. Su amistad significa mucho para mí.

A Anel G. por su constante motivación. Agradezco su infinita paciencia para hacerme ver el lado bueno de las cosas, por todas sus enseñanzas y consejos. Más aún, le doy gracias por su compañía y por siempre tener una sonrisa para mí, haciéndome saber que la vida es bonita. Sin duda, un gran ejemplo de esfuerzo y perseverancia, a quien yo admiro demasiado.

A la Dra. Grisel Méndez, por ser mi directora de tesis. Le agradezco la confianza, tiempo, comprensión y su gran paciencia en el desarrollo de este trabajo.

A los miembros del jurado, Efraín Chávez, Miguel Ángel Martínez, Corina Solís y María Elba Ortiz por su tiempo para revisar esta tesis, corregirla y complementarla de la mejor manera, despejando dudas y permitiéndome una mejor comprensión.

A Karen por su atención, tiempo y amabilidad para apoyarme en el proceso de preparación de muestras y dar respuesta a mis diversas dudas.

Al Fis. Arcadio y a Sergio Martínez por toda su amabilidad y apoyo brindado en el laboratorio.

Al programa de becas "100 Becas Generación Bicentenario, Nacional Monte de Piedad" porque sin su apoyo todo esto no sería posible.

Agradezco a la Dirección General de Asuntos del Personal Académico (DGAPA) por el apoyo otorgado en el marco del proyecto PAPIIT IG100619, a CONACyT por los recursos otorgados a través del proyecto de Laboratorios Nacionales 294537 y al Instituto de Física por el apoyo brindado por medio del proyecto PIIF 5-19.

# Declaración de autenticidad

---

Por la presente declaro que, salvo cuando se haga referencia específica al trabajo de otras personas, el contenido de esta tesis es original y no se ha presentado total o parcialmente para su consideración para cualquier otro título o grado en esta o cualquier otra Universidad. Esta tesis es resultado de mi propio trabajo y no incluye nada que sea el resultado de algún trabajo realizado en colaboración, salvo que se indique específicamente en el texto.

Aurora Guadalupe Borges Sánchez. Ciudad Universitaria, CDMX, 2019

# Resumen

---

En el presente trabajo se determinó la concentración de  $^{10}\text{Be}$  contenido en muestras de material particulado  $\text{PM}_{10}$ , colectado en Iztapalapa, utilizando la técnica de espectrometría de masas con aceleradores. El desarrollo de este estudio permitió analizar el efecto que tiene la cantidad de material portador de  $^9\text{Be}$  añadido durante el procedimiento, cuando se trata de muestras pequeñas, en los resultados obtenidos (cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y concentración de  $^{10}\text{Be}$ ). También se compararon dos procedimientos de extracción radioquímica, empleando el material de referencia estándar NIST 1648a (material certificado para material particulado de origen urbano). Dado que los procedimientos radioquímicos empleados, ofrecen la posibilidad de extraer tanto Be como Al, se prepararon blancos de este último, mismos que fueron mezclados con Ag, Cu, Fe y Nb, para determinar el idóneo durante el proceso de medición.

Para llevar a cabo este estudio, los isótopos cosmogénicos de Be y Al fueron extraídos de alícuotas, tomadas del material particulado y del material certificado, mediante un proceso de extracción radioquímica que utiliza resinas de intercambio iónico para separar los componentes presentes en una disolución y, posteriormente, el separador isotópico del Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA) del IFUNAM, fue calibrado para realizar las mediciones de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en estas muestras.

Con los resultados obtenidos, se determinó la concentración de  $^{10}\text{Be}$  del material particulado durante el tiempo de muestreo (19 de noviembre al 2 de diciembre, del año 2012),  $(2.85 \pm 1.02) \times 10^4$  átomos/ $\text{m}^3$ , en promedio, y conocer su comportamiento durante ese periodo; esta concentración fue comparada con análisis previos reportados, encontrando que existe consistencia en el orden de magnitud de los valores obtenidos. El análisis de la variación en la cantidad de portador mostró que, para muestras pequeñas, el portador de  $^9\text{Be}$  sí afecta el valor obtenido para el cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y la concentración de  $^{10}\text{Be}$ , pues se encontró que el cociente isotópico y la concentración

de  $^{10}\text{Be}$  aumentan cuando la cantidad de material portador disminuye (con masa de las muestras constantes) y decrece cuando la masa de las muestras también lo hacen (conservando la cantidad de portador). Respecto a los blancos de Al, se encontró que, al mezclar los blancos de Al con Ag y Cu, se presentan mayores corrientes de haz, comparados con Fe y Nb, siendo más estables con la mezcla Al-Cu. Finalmente, al término de este análisis y, debido a las pequeñas alícuotas tomadas para el mismo, no fue posible determinar la concentración de  $^{26}\text{Al}$ , sin embargo se pudieron observar las primeras cuentas de éste, sugiriendo incrementar el tamaño de las alícuotas para estudios posteriores.

# Índice general

---

<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
<b>2. Antecedentes</b>	<b>3</b>
2.1. Isótopos cosmogénicos . . . . .	3
2.1.1. $^{10}\text{Be}$ . . . . .	6
2.1.2. $^{26}\text{Al}$ . . . . .	8
2.2. Espectrometría de Masas con Aceleradores (AMS) . . . . .	9
2.2.1. Descripción del sistema . . . . .	10
2.2.1.1. Zona de baja energía . . . . .	11
2.2.1.2. Zona del acelerador . . . . .	15
2.2.1.3. Zona de alta energía . . . . .	17
2.2.2. Medición . . . . .	20
2.2.3. Cálculo de concentraciones de $^{10}\text{Be}$ . . . . .	21
<b>3. Objetivos y alcances</b>	<b>24</b>
3.1. Objetivo general . . . . .	24
3.1.1. Objetivos específicos . . . . .	24
3.2. Alcances . . . . .	24
3.3. Hipótesis . . . . .	25
<b>4. Materiales y Métodos</b>	<b>26</b>
4.1. Materiales . . . . .	26
4.1.1. Estándar de Referencia NIST 1648a . . . . .	26
4.1.2. Material particulado $\text{PM}_{10}$ colectado en Iztapalapa . . . . .	27
4.2. Preparación de muestras . . . . .	28
4.2.1. Método 1 de extracción radioquímica (uso de tres columnas) . . . . .	29
4.2.1.1. Pre-tratamiento de las muestras . . . . .	31
4.2.1.2. Acondicionamiento de las resinas cromatográficas . . . . .	32
4.2.1.3. Paso de las muestras por las resinas . . . . .	32
4.2.1.4. Obtención de las moléculas $\text{BeO}$ y $\text{AlO}$ . . . . .	34
4.2.2. Método 2 de extracción radioquímica (uso de dos columnas) . . . . .	34
4.2.3. Preparación de blancos de sintonización . . . . .	36
4.3. Sintonización del sistema AMS . . . . .	37

4.3.1. Zona de baja energía . . . . .	38
4.3.2. Zona del acelerador . . . . .	39
4.3.3. Zona de alta energía . . . . .	39
4.3.4. Medición de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$ . . . . .	40
<b>5. Resultados y discusión</b>	<b>43</b>
5.1. Blancos de Al mezclados con diferentes metales . . . . .	43
5.2. Material de referencia estándar 1648a . . . . .	47
5.3. Material particulado $\text{PM}_{10}$ colectado en Iztapalapa . . . . .	51
<b>6. Conclusiones y recomendaciones</b>	<b>57</b>

# Índice de figuras

---

2.1.	Producción del $^{10}\text{Be}$ , deposición seca y húmeda [1]. . . . .	7
2.2.	Esquema de los elementos principales del sistema de espectrometría de masas con aceleradores (AMS) [2]. . . . .	11
2.3.	Esquema del funcionamiento de la fuente de iones. [2]. . . . .	12
2.4.	Lente electrostática y análogo óptico [3]. . . . .	13
2.5.	Esquema de una lente tipo Einzel [3]. . . . .	13
2.6.	Esquema del deflector electrostático (ESA) esférico [3]. . . . .	14
2.7.	. Trayectorias descritas por las componentes del haz en el plano en su paso por el deflector magnético, en función de su rigidez magnética, $B\rho = \frac{\sqrt{2mE}}{q}$ [Santos, 2004]. . . . .	15
2.8.	Esquema de un acelerador tipo Tandetrón [3]. . . . .	16
4.1.	Localización geográfica de la alcaldía de Iztapalapa, Ciudad de México (Google Earth. Recuperada el 2 de junio de 2019) . . . . .	28
4.2.	Descripción del método 1 de extracción radioquímica de Be y Al. . . . .	30
4.3.	Descripción del método 2 de extracción radioquímica de Be y Al. . . . .	35
4.4.	Preparación de blancos de sintonización de Be. . . . .	36
4.5.	Preparación de blancos de sintonización de Al. . . . .	37
4.6.	Espectro de detección de $^{10}\text{Be}$ (derecha) y $^{10}\text{B}$ (izquierda) para el estándar de referencia STD 5.1. . . . .	41
4.7.	Espectro de detección de $^{26}\text{Al}$ para el estándar de referencia STD 4.1. . . . .	41
4.8.	Espectro de detección de $^{10}\text{Be}$ para un blanco de este elemento. . . . .	42
4.9.	Espectro de detección de $^{26}\text{Al}$ para un blanco de este elemento. . . . .	42
5.1.	Corriente del haz de Al a lo largo de la medida (110 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Cu. . . . .	44
5.2.	Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Fe. . . . .	45
5.3.	Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Ag. . . . .	45
5.4.	Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Nb. . . . .	46

5.5. Espectro de $^{10}\text{Be}$ correspondiente a una muestra de material de referencia estándar procesada con el método 1. . . . .	49
5.6. Espectro de $^{10}\text{Be}$ correspondiente a una muestra de material de referencia estándar procesada con el método 2. . . . .	50
5.7. Espectro de la elución correspondiente al paso de la eliminación de B en el método 2. . . . .	50
5.8. Cociente isotópico $^{10}\text{Be}/^{10}\text{Be}$ durante el proceso de medida con el sistema AMS, para las muestras M1, M2 y M3. . . . .	52
5.9. Cociente isotópico $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ durante el proceso de medida con el sistema AMS, para las muestras M5,y M6. . . . .	53
5.10. Concentración de $^{10}\text{Be}$ durante el tiempo de muestreo, en la zona de recolección. . . . .	55
5.11. Espectro de la muestra M3 donde se registran 5 cuentas de $^{26}\text{Al}$ . . . . .	56

# Índice de tablas

---

4.1. Características de muestreo del material particulado $PM_{10}$ colectados en Iztapalapa. . . . .	28
4.2. Parámetros fijados para el sistema de inyección en la medición de $^{10}Be$ y $^{10}Al$ (valores aproximados). . . . .	38
4.3. Parámetros establecidos en la zona de alta energía para la medición de $^{10}Be$ y $^{10}Al$ (valores aproximados). . . . .	39
5.1. Concentraciones de $^{10}Be$ en el material de referencia estándar NIST 1648a, obtenidas por dos métodos de extracción diferentes . . . . .	48
5.2. Masa de las alícuotas, tomadas del material particulado colectado en Iztapalapa, y la cantidad de material portador de $^9Be$ añadido. . . . .	51
5.3. Cociente isotópico $^{10}Be/^9Be$ (normalizado) y concentración de $^{10}Be$ de las muestras M1, M2, M3, 1a, 2a y 3a de los filtros I01 e I03, a las cuales se les ha añadido la cantidad de material portador pero variando la masa de las mismas. . . . .	53
5.4. Cociente isotópico $^{10}Be/^9Be$ (normalizado) y concentración de $^{10}Be$ de las muestras M5, M6, 1b, 2b, las cuales tienen una variación en la cantidad de portador de $^9Be$ añadida. . . . .	54
5.5. Comparación del cociente isotópico $^{10}Be/^9Be$ y la concentración de $^{10}Be$ entre el estudio de Padilla [4] y las muestras analizadas en este trabajo. . . . .	55

---

## Capítulo 1

# Introducción

---

El  $^{10}\text{Be}$  y el  $^{26}\text{Al}$  son isótopos cosmogénicos producidos a partir de la interacción de los rayos cósmicos con la materia terrestre. Sus vidas medias son  $1.386 \pm 0.012 \times 10^6$  [5] y  $7.14 \pm 0.17 \times 10^5$  [6] años, respectivamente. El  $^{10}\text{Be}$  es de escasa presencia en materiales naturales, mientras que el  $^{26}\text{Al}$  se encuentra entre los radioisótopos cosmogénicos de larga vida más abundantes. El estudio de estos radioisótopos es de especial interés en varios campos del conocimiento, principalmente en ciencias atmosféricas y de la Tierra. El  $^{10}\text{Be}$  aporta información importante para la investigación del clima y resulta muy útil como trazador en procesos de interés geofísico cuyos tiempos característicos son del orden de los millones de años.

La *espectrometría de masas con aceleradores* (AMS, por sus siglas en inglés) es una técnica que permite el análisis de radioisótopos, especialmente de aquellos con larga vida media y escasa presencia en el ambiente, con muy alta sensibilidad. El fundamento de la técnica, se basa en el empleo de campos eléctricos y magnéticos, en conjunto con un acelerador, para realizar la separación de los componentes moleculares y atómicos presentes en una muestra. Por esta razón, esta técnica es idónea para el estudio del  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ . Para llevar a cabo la medición, es necesario que los átomos del radioisótopo de interés sean extraídos previamente de la muestra, lo cual es logrado mediante la aplicación de procedimientos radioquímicos.

La estandarización de un protocolo de extracción radioquímica de Be y Al, para su medición en el separador isotópico del LEMA, aún se encuentra en desarrollo. En trabajos anteriores se plantean procedimientos de extracción en aerosoles, obteniendo buenos resultados [4, 7] y, en particular, se tiene un antecedente de extracción y medición de  $^{10}\text{Be}$  exitoso, realizado en este laboratorio [1]. Por ello, este trabajo tiene como objetivo determinar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ , de origen meteorítico, en muestras pequeñas de material particulado utilizando la técnica de espectrometría de masas con aceleradores. La atención es puesta principalmente en el efecto que tiene el portador de  $^9\text{Be}$  en el cociente isotópico que se obtiene que, a su vez, repercute en el cálculo de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en las muestras. Con el desarrollo de este estudio, también se

---

pretende comparar dos métodos de extracción radioquímica, los cuales serán aplicados para caracterizar la producción de  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia certificado NIST 1648a; y analizar la dependencia de la corriente del haz de  $^{26}\text{Al}$  con el metal de mezcla, a partir de blancos. Así, esta tesis aporta información encaminada al establecimiento de un protocolo de extracción de los isótopos cosmogénicos de Be y Al en filtros con material particulado en muestras pequeñas y la caracterización del sistema AMS para su medición.

El documento de tesis está organizado en seis capítulos. En el Capítulo 2 se describen los fenómenos que dan origen a los denominados *isótopos cosmogénicos*, sus diversas aplicaciones en los diferentes campos de las ciencias y las utilidades que su estudio ofrece, específicamente, se detalla la producción y presencia del  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en la atmósfera y la corteza terrestre; además, se justifica el uso de la técnica de espectrometría de masas con aceleradores para el estudio de estos isótopos, se describen las bases del funcionamiento de ésta, así como los componentes del sistema AMS del LEMA. El Capítulo 3 contiene los objetivos, alcances e hipótesis en la realización de este trabajo. El Capítulo 4 está dedicado a presentar los materiales utilizados, describir el proceso de extracción radioquímica de Be y Al de las muestras para su posterior medición en el sistema AMS, y detallar el proceso de calibración del separador isotópico para la medición de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ . Finalmente, en los Capítulos 5 y 6 se presentan los resultados obtenidos, el análisis, su interpretación, las conclusiones y recomendaciones producto de éstos.

---

## Capítulo 2

# Antecedentes

---

En este capítulo se exponen las bases teóricas necesarias para el entendimiento y estudio de los isótopos cosmogénicos, haciendo énfasis en la descripción de los radioisótopos de Be y Al, y detallando los componentes y el funcionamiento del separador isotópico del LEMA, ubicado en el Instituto de Física de la UNAM.

### 2.1. Isótopos cosmogénicos

Todos los eventos que ocurren en el universo afectan a nuestro planeta en mayor o menor medida. El principal medio de interacción que éste tiene con el universo son los rayos cósmicos. Los rayos cósmicos son partículas de alta energía originadas por diversos fenómenos: explosión de supernovas, denominados *rayos cósmicos galácticos* (RCG) con un rango de energía de 100 a 10 000 MeV; actividad solar, conocidos como *rayos solares* con una energía entre 0.1 a 100 MeV [8].

Los rayos cósmicos primarios (protones, partículas  $\alpha$ ), al penetrar en la atmósfera terrestre, interactúan con los átomos que la constituyen produciendo rayos cósmicos secundarios (neutrones, piones y muones) en una reacción en cadena [9].

Los núcleos formados como consecuencia de la interacción de rayos cósmicos primarios y secundarios con los núcleos atómicos de la Tierra son llamados *núclidos cosmogénicos*; los rayos solares no intervienen en la formación de estos núcleos debido a que no cuentan con la energía suficiente para producirlos. A su vez, si estos núcleos son producidos en la atmósfera se añade el término atmosférico o meteórico, y si son originados en la superficie terrestre, in situ.

Las principales reacciones nucleares que intervienen en la formación de núclidos cosmogénicos son reacciones de espalación, captura neutrónica y captura de muones [9]. En las reacciones de espalación, un neutrón de alta energía (u otro nucleón) colisiona con núcleos atómicos (núcleos blancos) y, en consecuencia, protones y neutrones son

expulsados del núcleo blanco, resultando un núcleo más ligero.

Los núclidos producidos por estas reacciones pueden ser estables o inestables, a estos últimos se les denomina *radionúclidos*. La estabilidad del núcleo depende de la relación entre el número de protones ( $Z$ ) y neutrones ( $N$ ) que lo componen, siendo estables los que se encuentran en una franja muy estrecha cercana a la recta  $Z = N$  (al graficar en el plano  $Z$ - $N$ ) [10]. Todos los demás núcleos son inestables y decaerán espontáneamente de diversas maneras (decaimientos  $\alpha$ ,  $\beta$  y  $\gamma$ ).

Aquellos núcleos con el mismo número de protones, pero con diferente número de neutrones son conocidos como *isótopos*, los cuales pertenecen a un mismo elemento, conservando las mismas propiedades químicas, pero difiriendo en su configuración nuclear, lo cual repercute en su estabilidad. De esta manera, para un mismo elemento, se tienen isótopos estables e inestables (también llamados radioisótopos). Por ejemplo, en el caso del carbono, podemos encontrar en la naturaleza dos isótopos estables ( $^{12}\text{C}$  y  $^{13}\text{C}$ ) y un isótopo inestable ( $^{14}\text{C}$ ).

Considerando lo previamente expuesto, podemos definir a los *radioisótopos* o *radionúclidos cosmogénicos* como aquellos radioisótopos originados por los procesos nucleares donde intervienen los rayos cósmicos y átomos de la Tierra, descritos anteriormente, ya que en estos es posible alterar el número de nucleones (protones y neutrones) de un átomo, transformando un elemento en otro distinto. Regresando al ejemplo del carbono, el  $^{14}\text{C}$  es producto del  $^{14}\text{N}$ .

La atmósfera es la fuente principal de radionúclidos cosmogénicos ya que en ella ocurre el primer contacto entre la radiación cósmica y la materia terrestre, de tal manera que los isótopos producidos en ella dependerán de la composición de la misma, la cual consiste de nitrógeno (78.09 %) y oxígeno (20.95 %), principalmente, y menos de 1 % de otros gases, como argón (0.93 %), dióxido de carbono (0.0386 %), neón (0.0018 %), criptón (0.0001 %) y xenón (0.000008 %). Así, estos radionúclidos son producidos esencialmente por la interacción de neutrones y protones con nitrógeno (N), oxígeno (O) y argón (Ar), siendo en su mayoría núcleos con masas atómicas por debajo de 16 uma, esto debido a que las reacciones nucleares que las producen resultan en núcleos con masas atómicas menores o iguales que los núcleos blancos (exceptuando la captura neutrónica en donde la masa del núcleo incrementa en una unidad) [8]. Los principales radionúclidos creados en la atmósfera son  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ , producidos primordialmente por núcleos blancos de  $\text{N}_2$  y  $\text{O}_2$ ;  $^{36}\text{Cl}$  y  $^{26}\text{Al}$ , originados a partir de Ar; y  $^{129}\text{I}$  proveniente de Xe.

Aunque la atmósfera es lo suficientemente espesa como para que pocas partículas cósmicas alcancen la superficie de la Tierra, esto no significa que la producción de radionúclidos no tome lugar en otros sistemas ambientales tales como el hielo, las rocas y los meteoritos. En la materia terrestre (y materia extraterrestre presente en la super-

ficie) existe una mezcla más rica de elementos, y algunos núcleos blancos importantes son mucho más abundantes que en la atmósfera [1, 8]. En la superficie de la Tierra, predomina la producción de núclidos originados por partículas secundarias de rayos cósmicos, tales como neutrones y muones [9].

La tasa de producción de isótopos cosmogénicos depende de la intensidad de los rayos cósmicos que entran al planeta que, a su vez, están modulados por la actividad solar y fluctuaciones del campo magnético terrestre, y por la altura de la atmósfera [8, 11].

Debido a las características que presentan los radionúclidos cosmogénicos, éstos desempeñan un papel importante en la geología, geomorfología, arqueología, glaciología, oceanografía y ciencias atmosféricas, entre otras disciplinas; por lo que su estudio es de gran interés. A continuación se mencionan las aplicaciones en algunos campos del conocimiento [12]:

- *Clima y paleoclima.* El contenido de  $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$  y  $^{36}\text{Cl}$  en hielos polares proporciona información acerca del clima en el pasado y de la presencia de gases invernadero a lo largo del tiempo. A su vez, estos datos contribuyen a la comprensión de los fenómenos climáticos de la actualidad.
- *Oceanografía.* El  $^{14}\text{C}$  depositado en los océanos hace posible conocer y analizar la dinámica de sus aguas, permitiendo evaluar mezclas de capas de aguas, tiempos de residencia medio de aguas profundas, la circulación de aguas y el transporte de calor desde las latitudes bajas.
- *Sedimentos.* La datación empleando  $^{14}\text{C}$  y  $^{10}\text{Be}$  puede abarcar hechos ambientales ocurridos desde desde cientos hasta millones de años, proporcionando información sobre los cambios ambientales ocurridos a lo largo del tiempo, como son los cambios climáticos, cambios en el nivel del mar, entre otros.
- *Geología.* Es posible que en esta rama de la ciencia las aplicaciones de los radioisótopos cosmogénicos sea mayor. Por ejemplo, el análisis del transporte del  $^{10}\text{Be}$  permite el estudio de la tectónica de placas analizando sedimentos marinos al magma; además, el estudio de  $^{10}\text{Be}$  y  $^7\text{Be}$  provee mucha información sobre los procesos de producción y redistribución atmosférica de estos radioisótopos; por último, se puede mencionar la capacidad de datación por exposición superficial a los rayos cósmicos de rocas y material extraterrestre.
- *Astronomía.* El estudio de los rayos cósmicos se ve beneficiado por la información proporcionada al analizar los radionúclidos producidos por éstos, como lo son el  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$  y  $^{129}\text{I}$ , presentes en diferentes compartimentos naturales, como meteoritos, muestras de hielo o sedimentos. Por otra parte, se ha comprobado la anticoincidencia entre las fases de actividad solar y la concentración de

$^{10}\text{Be}$  en muestras de hielo, lo que permitirá reconstruir esta actividad solar más allá de los datos existentes.

- *Arqueología*. Datación de piezas, constituidas por material orgánico, mediante el análisis de  $^{14}\text{C}$  presentes en ellas.

### 2.1.1. $^{10}\text{Be}$

El berilio (Be) es un elemento químico con número atómico  $Z=4$ . Éste tiene un isótopo estable ( $^9\text{Be}$ ) y dos radionúclidos cosmogénicos,  $^7\text{Be}$  y  $^{10}\text{Be}$  [9]. En total, el berilio tiene siete isótopos, siendo los demás  $^6\text{Be}$ ,  $^8\text{Be}$ ,  $^{11}\text{Be}$  y  $^{12}\text{Be}$ , mismos que decaen en una fracción de segundo [11].

El berilio 10 es un isótopo cosmogénico muy raro y de escasa presencia en materiales naturales a no ser que éstos estén expuestos a radiación cósmica, como la atmósfera, agua, tierra o minerales de rocas [11, 13, 14]. Como se mencionó anteriormente, el  $^{10}\text{Be}$  y otros radionúclidos son producidos por reacciones nucleares en la materia terrestre provocadas por rayos cósmicos. La vida media de este isótopo es  $t_{1/2} = 1.386 \pm 0.012 \times 10^6$  años y decae por emisión  $\beta^-$  (emisión de electrones) a  $^{10}\text{B}$  (boro 10) [5, 15].

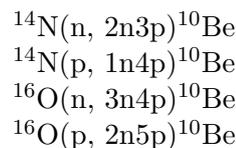
Ciertas características presentes en el  $^{10}\text{Be}$  lo convierten en un interesante y útil objeto de análisis encaminado al estudio y comprensión de las causas y momento del cambio climático.

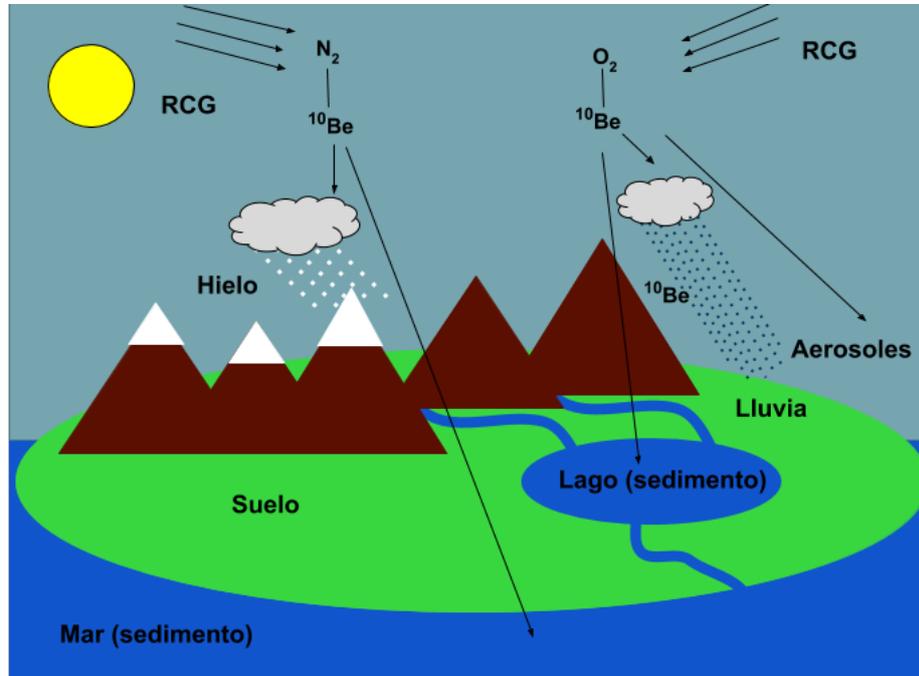
En la Figura 2.1 se muestra una representación gráfica de la producción  $^{10}\text{Be}$ , el camino que describe y sus reservorios de concentración (Tomada de [1]).

#### Producción de $^{10}\text{Be}$ meteórico

La primera detección de  $^{10}\text{Be}$  en una muestra terrestre, sedimentos de aguas profundas del Pacífico oriental que contenían  $^{10}\text{Be}$  atmosférico, fue realizada por J. R. Arnold [16]. El  $^{10}\text{Be}$  es formado en la atmósfera por reacciones de espalación en núcleos de oxígeno y nitrógeno presentes en ella, debidas a colisiones con rayos cósmicos de alta energía [9, 13].

Las reacciones nucleares que intervienen en la formación de  $^{10}\text{Be}$  en la atmósfera son las siguientes [8]:





**Figura 2.1:** Producción del  $^{10}Be$ , deposición seca y húmeda [1].

Esta nomenclatura tiene el siguiente significado. Para la primera reacción, un neutrón interactúa con un núcleo de  $^{14}N$  causando la expulsión de dos neutrones y tres protones para convertirlo en un núcleo de  $^{10}Be$ .

La reacción del neutrón con nitrógeno es la más importante para la producción de  $^{10}Be$  meteórico y el intervalo de energía más eficiente para este tipo de producción es 0.8-5 GeV [8, 17].

La producción atmosférica de  $^{10}Be$  representa el 99.9% de su inventario en la superficie de la Tierra. El 0.01% restante proviene de la producción in situ mediante la interacción de partículas secundarias inducidas por rayos cósmicos con superficies minerales y rocosas [17].

Una vez producido, el  $^{10}Be$  se difunde y permanece en la atmósfera entre dos semanas y varios años, dependiendo de la altitud donde fue producido [4]. El tiempo de residencia varía entre 15 y 35 días, en promedio, cuando es producido en la troposfera, y de 320 a 350 días cuando la producción es en la estratosfera; este tiempo también depende del intercambio estratosfera-troposfera y de la mezcla intertroposférica [11]. Posteriormente, se adhiere a aerosoles atmosféricos y es depositado en la superficie de la Tierra mediante precipitación húmeda y seca. Cuando es transferido a ambientes

acuosos, el  $^{10}\text{Be}$  alcanza a situarse en sedimentos del fondo marino y lacustre; cuando es transportado por nieve, lluvia o por deposición seca, es absorbido por partículas del suelo [13].

### Producción de $^{10}\text{Be}$ in situ

El  $^{10}\text{Be}$  producido in situ representa el 0.01 % de la producción total de este radioisótopo. La producción in situ es debida a reacciones nucleares inducidas por neutrones y muones de alta energía, de los rayos cósmicos secundarios, en materiales de la superficie terrestre, por ejemplo, oxígeno, rocas y cuarzo [16]. Las principales reacciones nucleares para la producción de  $^{10}\text{Be}$ , son efectuadas en núcleos de silicio (Si) y oxígeno (O) [4].

En rocas, el  $^{10}\text{Be}$  es producido principalmente por reacciones de espalación del O, y, en menor grado, a partir de elementos más pesados, como Mg, Al, Si y Ca. En carbonatos, el carbono es el esencial elemento blanco. A nivel del mar y latitudes altas, las interacciones de muón negativo y muón rápido, juntas, representan el 3.6 % de la producción de  $^{10}\text{Be}$  en cuarzo; este valor incrementa rápidamente con la profundidad por debajo de la superficie, ya que los muones penetran mucho más profundamente que los neutrones, por lo tanto, en los sitios que se erosionan lo suficientemente rápido, el material profundamente expuesto puede alcanzar la superficie y aumentar la importancia de la producción de muones en relación con la producción de neutrones (espalación) [9].

Tanto el  $^{10}\text{Be}$  producido in situ como el meteórico, se acumulan en depósitos superficiales. La diferencia radica en que, en la producción in situ, los radionúclidos formados quedan bloqueados en la misma estructura cristalina de los minerales [4]. Esta discrepancia, junto con la diferencia en la cantidad de producción (flujo meteórico=1 millón de átomos/cm·año; producción in situ=2-20 átomos/g·SiO<sub>2</sub>·año), contribuyen a que los radionúclidos de cada tipo de producción puedan ser separados a través de lixiviación con ácidos de la superficie del grano (para meteórico) y con disolución de la estructura cristalina (para in situ), de tal manera que no existan interferentes en la medición de cada variedad [4, 13].

#### 2.1.2. $^{26}\text{Al}$

Por su parte, el aluminio (Al) es un elemento químico con número atómico  $Z = 13$ . Tiene un núcleo estable,  $^{27}\text{Al}$ , y un radionúclido cosmogénico,  $^{26}\text{Al}$  [9].

El  $^{26}\text{Al}$  ha sido utilizado principalmente para la investigación de la historia y edades de exposición de las rocas terrestres y meteoritos; éste se encuentra entre los radioisótopos cosmogénicos de larga vida más abundantes, cuya vida media es de  $t_{1/2} = 7.17 \pm 0.17 \times 10^5$  años [6].

### Producción del $^{26}\text{Al}$ meteórico

El  $^{26}\text{Al}$  es producido en la atmósfera mediante la espalación de átomos de argón por rayos cósmicos de alta energía. Debido a que el argón constituye el 0.93% de la composición volumétrica de la atmósfera, la tasa de producción global de  $^{26}\text{Al}$  meteórico es relativamente baja, reportada entre  $1.6 \times 10^3$  átomos de  $^{26}\text{Al} \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$  y  $4.4 \times 10^3$  átomos de  $^{26}\text{Al} \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ . Las concentraciones troposféricas son del orden de 100 átomos/ $\text{m}^3$  aproximadamente 500 veces más bajas que las del radionúclido cosmogénico  $^{10}\text{Be}$ . Tal como el  $^{10}\text{Be}$ , el  $^{26}\text{Al}$  se adhiere rápidamente a las partículas de aerosol, con las que comparte su ciclo atmosférico, incluida la deposición húmeda y seca [6].

La relación isotópica de  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  en muestras ambientales ha demostrado gran potencial en investigaciones de cambio climático y atmosféricas [7].

## 2.2. Espectrometría de Masas con Aceleradores (AMS)

La *espectrometría de masas con aceleradores* (AMS, por sus siglas en inglés) es una técnica analítica ultra-sensible para el análisis de radioisótopos, especialmente de aquellos con grandes periodos de decaimiento y escasa presencia en el ambiente, la base de la técnica, consiste en la extracción de átomos de la muestra que son ionizados, acelerados a alta energía, separados en función de su impulso, carga y energía, y finalmente, individualmente contados después de ser identificados con un número y masa atómica específica [18].

AMS ofrece una extremada sensibilidad en la medida de radioisótopos, ya que puede determinar en 1 mg de muestra hasta  $1 \times 10^6$  átomos del isótopo de interés dentro de un tiempo de medida de 1 hora, por esto, AMS es reconocida como uno de los avances más significativos en el campo de la investigación en el análisis de radioisótopos [19].

El objetivo de esta técnica es la separación de especies moleculares y atómicas presentes en un material, mediante el uso de campos eléctricos y magnéticos acoplados, así como de un acelerador de partículas que permite eliminar las posibles interferencias moleculares y lograr diferenciar los isótopos de interés de los isóbaros.

Las bases de esta técnica surgen con la aparición de los primeros ciclotrones, los cuales emplean el movimiento de una partícula cargada en presencia de un campo magnético. Una partícula de carga  $q$  que viaja a una velocidad  $\mathbf{v}$ , inmensa en un campo magnético  $\mathbf{B}$ , experimenta una fuerza tipo Lorentz:

$$\mathbf{F} = q\mathbf{v} \times \mathbf{B} \tag{2.1}$$

Además, debido a que esta fuerza es perpendicular a la velocidad, actúa como una fuerza centrípeta que propicia un cambio de dirección de la partícula que la lleva a describir una trayectoria circular de radio  $\rho$ , siendo en magnitud:

$$F = \frac{m\mathbf{v}^2}{\rho} \quad (2.2)$$

donde  $m$  es la masa de la partícula. Suponiendo que en la ecuación (2.1) la velocidad es perpendicular al campo magnético e igualando con la ecuación (2.2), entonces se obtiene:

$$mv = q\rho B \quad (2.3)$$

donde  $mv = p$  es la magnitud del momento lineal de la partícula.

Así, escribiendo en términos de la energía cinética, se tiene que el radio de giro de la partícula está dado por:

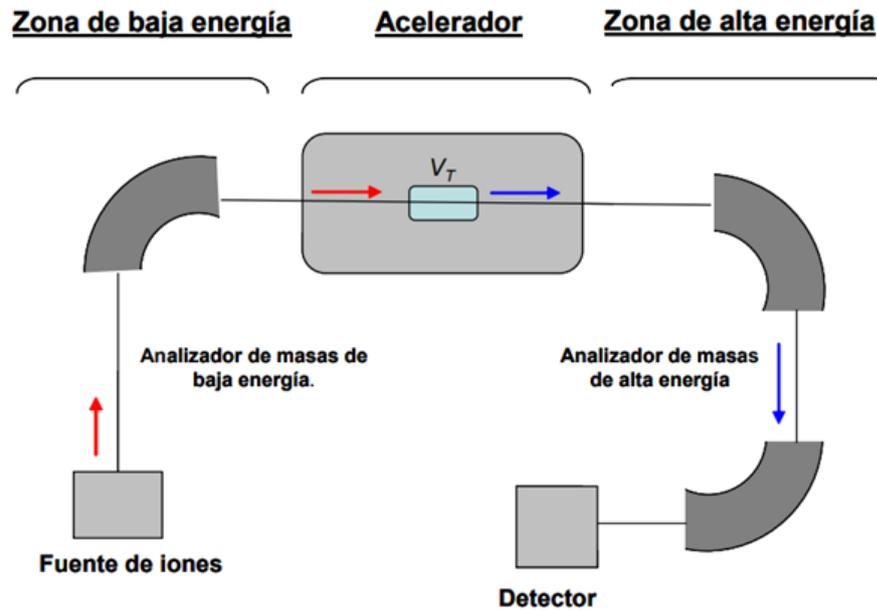
$$\rho = \frac{\sqrt{2mE}}{qB} \quad (2.4)$$

Por tanto, es posible separar partículas con la misma energía  $E$  y carga  $q$  pero con distinta masa  $m$ , ya que seguirán trayectorias circulares diferentes.

Sin embargo, este filtro no es suficiente para seleccionar únicamente la partícula de interés debido a la existencia núcleos isóbaros que lograrán superar el filtro, entre otros interferentes. Por esta razón, la técnica AMS, además de filtros magnéticos, hace uso de filtros electrostáticos y añade un acelerador, generalmente tipo Tándem, que permite reducir los interferentes moleculares dentro del acelerador mediante el proceso de *rompimiento molecular* (*stripping*) y alcanzar energías necesarias para aplicar sistemas de detección propios de la física nuclear que permiten discriminar partículas de su número másico  $A$  y atómico  $Z$ , diferenciando los isótopos de interés de los isóbaros [1, 4].

### 2.2.1. Descripción del sistema

El sistema AMS puede ser dividido en tres partes fundamentales para una mejor descripción: la zona de baja energía, en donde se encuentra el sistema de introducción de muestras, la fuente de iones y un analizador de masas; el acelerador tándem; y la zona de alta energía, con otro analizador de masas y el sistema final de detección. En la Figura 2.2 se describen las componentes principales de un sistema de espectrometría de masas con aceleradores (tomada de [2]).



**Figura 2.2:** Esquema de los elementos principales del sistema de espectrometría de masas con aceleradores (AMS) [2].

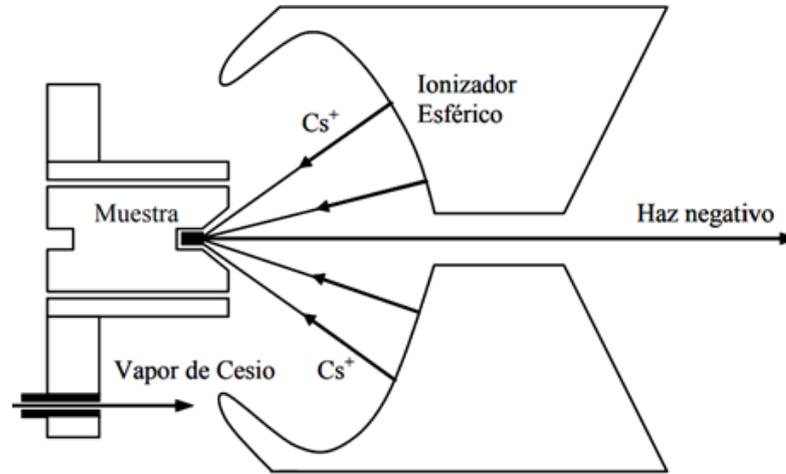
### 2.2.1.1. Zona de baja energía

Está compuesta por la *fente de iones*, en donde se producen los iones que componen el haz, y el *sistema de inyección* que está conformado por una serie de elementos destinados a realizar la primera selección de masas y llevar el haz hasta la entrada del acelerador [20].

#### Fuente de iones

Como primer elemento, se tiene el *sistema de introducción de muestras* compuesto por un carrusel con 50 posiciones, donde se colocan los cátodos sólidos, y una bayoneta encargada de introducir las muestras al inicio de todo el sistema AMS.

La fuente de iones consta de un reservorio de cesio (Cs), un ionizador y un electrodo de extracción (para el caso del LEMA) [20]. Un acelerador tándem requiere de la inyección de iones negativos, los cuales pueden estar compuestos por un átomo o una unión molecular con un electrón adicional [1]. De esta forma, el mecanismo utilizado por la fuente está basado en el fenómeno de erosión catódica (*sputtering*) que será explicado más adelante.



**Figura 2.3:** Esquema del funcionamiento de la fuente de iones. [2].

La Figura 2.3 presenta los componentes que constituyen a la fuente de iones y de qué forma es generado el haz (tomada de [2]). El reservorio de cesio es calentado hasta evaporarse para adherirse a la superficie de una placa metálica esférica (ionizador) a alta temperatura, esto provoca que los átomos de Cs pierdan un electrón y los iones positivos resultantes de  $\text{Cs}^+$  son acelerados hacia el cátodo por una diferencia de potencial  $V_c$ . De esta forma, la muestra del material que está contenida en el cátodo es bombardeada por el haz de iones de  $\text{Cs}^+$ , erosionándola y produciendo a su vez la expulsión de un gran número de átomos y moléculas del cátodo con un electrón en exceso [1, 21].

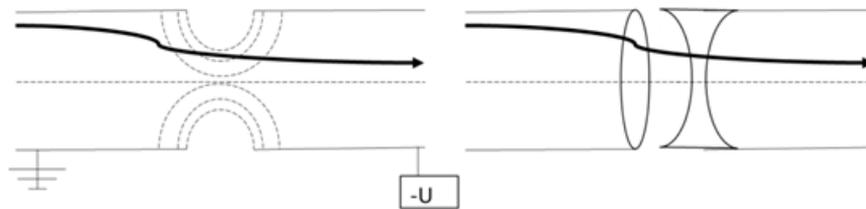
Los iones negativos extraídos de la muestra son acelerados y focalizados por el electrodo de extracción con un potencial  $V$  ( $\sim 28$  kV respecto del ionizador), para formar un haz de salida; de esta forma, los iones negativos que salen de la fuente con una energía inicial  $E_i = e(V_c + V)$  [1, 21].

Es importante señalar que, bajo determinadas condiciones es necesario usar iones moleculares del elemento a analizar dado que, estando en su forma atómica, no es posible la creación de iones negativos o no es eficaz su producción, además, de esta manera es posible obtener suficiente intensidad o ayudar en la eliminación del isóbaro interferente [22]. El caso más conocido es el del  $^{10}\text{Be}$ , donde en este tipo de muestras se extraen hidruros y óxidos de Be, aunque se emplea principalmente  $\text{BeO}^-$  por presentar corrientes más altas y ser más estables [4]. Además, el empleo de iones moleculares evita la formación de las colas de alta energía ya que las moléculas de alta energía se disocian.

### Sistema de inyección

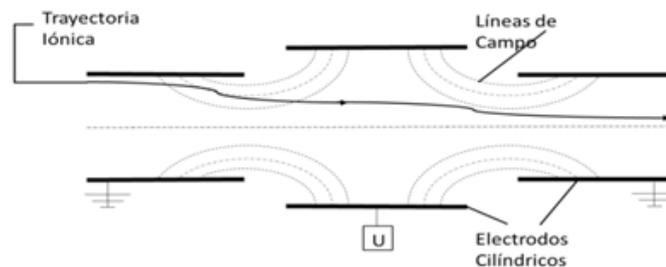
Está constituido por todos los elementos situados entre la fuente y el acelerador.

El objetivo de este sistema es realizar un transporte eficiente del haz y realizar una primera selección de los iones de interés. Al salir de la fuente de iones, el haz atraviesa la primera lente electrostática, la cual tiene un efecto análogo al de una lente óptica, convergente y otra divergente [23]. El efecto de esta lente puede ser acelerar o frenar la partícula. En el caso de la lente aceleradora, los campos producen un acercamiento de la partícula al eje cuando ésta aproxima a la separación entre los cilindros. Una vez entra en el segundo cilindro, los campos tienden a alejarla del eje, pero ya son ligeramente más débiles que al principio, con lo que el efecto neto es focalizante. En la Figura 2.4 se hace una comparación entre los efectos de la lente electrostática con una lente óptica, observando el efecto de una lente convergente (tomada de [3]).



**Figura 2.4:** Lente electrostática y análogo óptico [3].

En sistema instalado en el LEMA, la lente consta de tres cilindros de los cuales, sólo el central recibe un potencial; esta configuración es conocida como lente Einzel, cuya estructura se muestra en la Figura 2.5 (tomada de [3], notando una focalización mayor al agregar un tercer cilindro. Este tipo de lente no altera la energía del haz y mejora su transmisión a lo largo del separador isotópico y, además, ocasiona que exista un efecto de enfoque de haz.



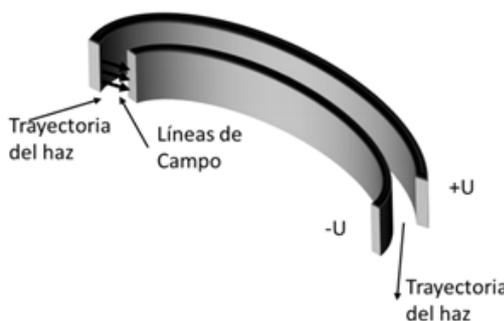
**Figura 2.5:** Esquema de una lente tipo Einzel [3].

Posteriormente, el haz es analizado por un deflector electrostático (ESA) que realiza la primera selección de iones según su carga y energía. Este deflector es de tipo esférico con dos placas paralelas, en cuyo interior se genera un campo eléctrico contenido en el plano de movimiento del haz y normal a la velocidad de las partículas, de forma

que sólo aquellas con una relación concreta entre su energía y su carga ( $E/q$ , rigidez electrostática), dada por la ecuación (2.5), describirán el radio del deflector [2]. Cada placa está conectada a una fuente de tensión, lo que garantiza la focalización tanto en la dirección horizontal como vertical (ver Figura 2.6, tomada de [3]). Un ion que penetre en el campo entre ambas placas deberá tener una energía dada por la ecuación [20]:

$$\frac{E}{q} = \frac{U}{d}(r_1 r_2)^{1/2} \quad (2.5)$$

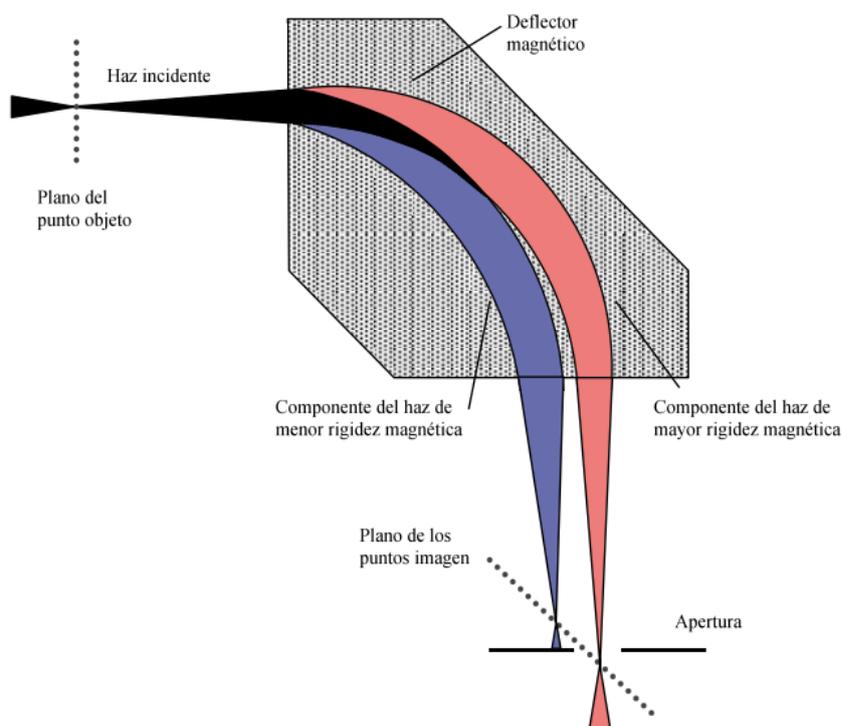
donde  $U$  es el potencial aplicado sobre las placas,  $d = r_1 - r_2$  con  $r_1$   $r_2$  los radios de las mismas.



**Figura 2.6:** Esquema del deflector electrostático (ESA) esférico [3].

Una vez optimizado el haz con los elementos antes mencionados, éste continúa su camino hacia el deflector magnético, cuyas propiedades como analizador de masa se basan en el funcionamiento del ciclotrón descrito anteriormente. En su interior, existe un campo magnético transversal a los polos del imán,  $\mathbf{B}$ , que produce una fuerza tipo Lorentz descrita por la ecuación (2.1), ocasionando que las partículas que ingresen en él describan una trayectoria circular cuyos radios dependen de su energía  $E$  y de su masa  $M$ , dada por la ecuación (2.4) [2]. De esta forma, el deflector magnético selecciona aquellos iones que tengan exactamente el mismo momento que el isótopo deseado, es decir, aquellos que cumplen a condición  $\frac{Em}{q^2} = cte$ , donde  $m$  es la masa del isótopo seleccionado. La Figura 2.7 muestra las trayectorias que describen las partículas en su paso por el deflector magnético, de acuerdo con la energía y masa que las caracterizan.

Considerando que en el proceso de *sputtering* todos los iones del haz se emiten en el mismo estado de carga ( $q = -1$ ) y son extraídos de la fuente con el mismo potencial electrostático, es decir, idealmente todos llegan con la misma energía, es posible eliminar los iones cuya masa no coincida con la del núcleo de interés. Sin embargo, en la práctica,



**Figura 2.7:** . Trayectorias descritas por las componentes del haz en el plano en su paso por el deflector magnético, en función de su rigidez magnética,  $B\rho = \frac{\sqrt{2mE}}{q}$  [Santos, 2004].

este primer filtro no es del todo eficaz debido a que en el proceso de *sputtering* pueden producirse colas de alta energía, lo que permite el paso de iones de masa inferior pero próxima a la del isótopo problema cuya energía entre dentro de esta cola, además, la disociación de moléculas inestables en iones con masas y energías similares a las del isótopo problema también pueden introducir interferentes en el acelerador.

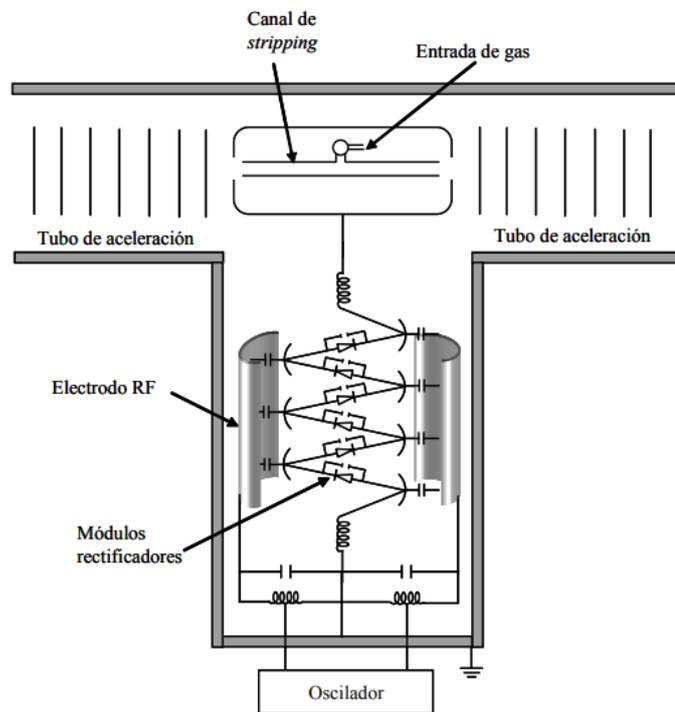
### 2.2.1.2. Zona del acelerador

En esta zona se produce la aceleración de los iones del haz que han superado los filtros cinemáticos de la zona de baja energía y también se lleva a cabo el proceso de *rompimiento molecular* (*stripping*), gracias al cual es posible eliminar los interferentes moleculares.

Los aceleradores *tándem* son los que comúnmente se usan en AMS. Pertenecen a la familia de los aceleradores electrostáticos, donde las partículas son aceleradas por un campo eléctrico estático y consta de tres partes: tubo de aceleración de baja energía, canal de *stripping*, en donde hay una terminal cargada positivamente, y tubo de acele-

ración de alta energía [20].

En la zona de la terminal es donde tiene lugar el proceso de *stripping* por el cual los iones negativos inyectados pierden parte de sus electrones sufriendo un cambio de carga y siendo, de esta forma, acelerados una segunda fase. El diseño del Tandetrón usado en el LEMA es de tipo Cockroft-Walton [24]. En la Figura 2.8, tomada de [3], se presenta el esquema del acelerador tipo tandetrón, ubicando sus elementos.



**Figura 2.8:** Esquema de un acelerador tipo Tandetrón [3].

En este modelo el campo eléctrico permanece constante en el interior de los tubos de aceleración gracias a una serie de resistencias en serie que conectan la entrada y salida de los mismos.

Los iones entran al primer tubo de aceleración teniendo carga negativa, por lo que la terminal situada a la mitad del acelerador los atrae provocando la primera aceleración. Posteriormente, es en la terminal donde se lleva a cabo el proceso de *rompimiento molecular*, que consiste en hacer interaccionar el haz de iones con un gas (normalmente Ar, He, Ne) situado en uno de los conductos de la terminal, provocando reacciones de intercambio de carga por las que los iones pierden electrones, produciendo un cambio de carga negativa a positiva. Debido a este cambio de polaridad, el haz resultante es repelido por el voltaje positivo de la terminal y acelerado hacia la salida de la segunda

sección del tubo. De esta forma, la energía que llevan los iones positivos a la salida del acelerador es:

$$E(eV) = \left(\frac{m}{M} + q\right)V_T + V_0 \quad (2.6)$$

donde  $m$  es la masa del núcleo de interés,  $M$  es la masa de la molécula inicial,  $q$  es el estado de carga,  $V_T$  es el voltaje de la terminal y  $V_0$  es el voltaje de la fuente.

Otro resultado del proceso de *stripping* es la ruptura de moléculas que proporciona este proceso y que es fundamental para la supresión del fondo molecular o para obtener el ion deseado en el caso de inyectar iones moleculares dentro del acelerador [3]. Las moléculas, al perder parte de sus electrones como consecuencia de los choques que sufren con el gas, se rompen en fragmentos más pequeños debido a la inestabilidad producida por las fuerzas coulombianas de la nueva configuración. Estos fragmentos serán eliminados por los siguientes filtros cinemáticos debido a que su masa ya no es igual a la de los iones que se quieren seleccionar [1, 21].

### 2.2.1.3. Zona de alta energía

En esta región se lleva a cabo una nueva selección de la masa de interés, mediante deflectores magnéticos y eléctricos, y su transporte hacia el sistema final de detección en donde tiene lugar una última separación de los interferentes en un detector de partículas. Los deflectores funcionan de forma similar a los utilizados en la zona de baja energía. Además de estos, existen otros elementos destinados al transporte y focalización del haz.

#### Analizador de alta energía

A la salida del acelerador, el haz de cationes con diferentes energías se encuentra formado por el núcleo de interés, iones de este en distinto estado de carga, isóbaros y fragmentos de moléculas que llegaron al acelerador por tener la misma masa del núcleo de interés y que se han fraccionado en el *stripper*. Es por ello que se vuelve necesario hacer nuevamente un análisis usando campos eléctricos y magnéticos, al igual que en la zona de baja energía.

Como primer elemento, en esta parte se halla una lente cuadrupolar cuya función es la de focalizar el haz que ha salido del acelerador con un diámetro y una dispersión angular relativamente grandes. Esta lente consiste de un triplete cuadrupolar con potenciales eléctricos alternos, que permite tener una configuración simétrica que focalice el haz independientemente de la masa de las partículas.

Al igual que en la zona de baja energía, el tipo de análisis esencial en esta zona es

el de la selección de masa del núcleo problema, para lo cual se hace uso de un deflector magnético. Conociendo la energía de los iones positivos que conforman el haz, la cual está dada por la ecuación (2.6), y sustituyéndola en la ecuación (2.4), es posible obtener el radio de deflexión para este caso, el cual depende del estado de carga de cada uno de los iones:

$$\rho = \frac{\sqrt{2ME}}{qB} = \frac{1}{qB} \sqrt{2M(e(\frac{m}{M} + q)V_T + V_0)} \quad (2.7)$$

donde  $e$  es la carga del electrón.

Además, para evitar posibles interferentes en  $\frac{mE}{q^2}$  procedentes de fragmentos moleculares, se dispone de un deflector electrostático inmediatamente del magnético. De esta forma, desaparece gran parte del fondo interferente, exceptuando los isóbaros del núcleo problema ya que, debido a poseen las mismas características cinemáticas de éste, no han podido ser discriminados en los filtros anteriores.

Por otro lado, se debe tomar en cuenta que en el sistema de AMS no tiene sentido dar como resultado final la cantidad de corriente o el número de cuentas del isótopo problema, ya que el sistema está sometido a una serie de parámetros que pueden fluctuar a corto o largo plazo y, por tanto, producir una variación de la misma. Por esta razón, se requiere a una forma alternativa de recuperar información que suministra el sistema. Esto se logra mediante la normalización de la corriente del isótopo de interés de masa  $m'$  con la del isótopo estable de masa  $m$ , medidos ambos en las mismas condiciones. Así, las fluctuaciones a corto plazo afectarán por igual a ambas corrientes.

Para llevar a cabo el análisis de los núcleos estables, se colocan cámaras de Faraday que los detectan según la trayectoria que siguen. Estos dispositivos consisten en un tubo metálico en forma de cilindro dentro del cual el haz es frenado, generando cierta carga que, a su vez, es integrada y detectada.

### Sistema de detección

El objetivo de este último paso es distinguir y detectar los núcleos de interés del resto de los interferentes del haz que han logrado superar todos los filtros descritos anteriormente. Para llevar a cabo esta tarea, se hace uso de detectores capaces de medir distintas propiedades físicas de las partículas, como son la velocidad, la energía total o el poder de frenado.

En este caso, el detector utilizado es una cámara de ionización, la cual consiste de una cámara rellena de un gas que contiene un cátodo y uno o varios ánodos (dos en el sistema AMS del LEMA) entre los que se aplica una diferencia de potencial que gene-

rará un campo eléctrico uniforme. Los átomos o moléculas del gas serán ionizados al interactuar con el haz de iones incidente y se producirá una liberación de carga eléctrica positiva, originada por las moléculas blanco del gas, así como una negativa producida por los electrones liberados. Debido al campo eléctrico generado, ambos tipos de cargas son aceleradas hasta el cátodo y ánodos, según corresponda. De esta forma, los electrones recolectados en las placas anódicas generan una señal, que será amplificada y procesada, cuya altura es proporcional a la energía de las partículas que ionizaron el gas.

Las partículas que componen el haz pierden energía debido a las colisiones elásticas que conllevan a la ionización del gas, por lo que se produce una atenuación continua de su energía conforme viajan a través de todo el volumen del mismo. A la pérdida de energía por unidad de longitud se le conoce como *poder de frenado*, que en estas condiciones puede ser escrita como [25]:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi}{m_e c^2} \frac{nZ^2}{\beta^2} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \left[ \ln \left( \frac{2m_e c^2 \beta^2}{I(1-\beta^2)} \right) - \beta^2 \right] \quad (2.8)$$

donde  $c$  es la velocidad de la luz,  $\epsilon_0$  es la permitividad del vacío,  $\beta = v/c$  con  $v$  la velocidad de la partícula que cede su energía,  $m_e$  la masa del electrón e  $I$  y  $n$  el potencial de ionización medio del material y la densidad electrónica del material, respectivamente, con [20]:

$$n = \frac{N_A Z N}{M_u} \quad (2.9)$$

donde  $N_A$  es el número de Avogadro,  $Z$  es el número atómico de la partícula incidente,  $N$  y  $M_u$  es la densidad atómica del material y la constante de masa molar del material.

De esta manera, la señal producida por los electrones proporciona información con la que es posible determinar el poder de frenado lo que, a su vez, se traduce en la identificación de la naturaleza de las partículas que causan la ionización debido a la dependencia con el número atómico  $Z$  del poder de frenado. Por lo anterior, el posible hacer una separación entre el núcleo de interés y las partículas interferentes que llegan al sistema de detección. Así, la utilidad de disponer de una cámara multianódica es que es posible distinguir el isótopo problema de algún posible interferente debido a que diferirán en su energía depositada en un determinado rango del volumen del detector.

### 2.2.2. Medición

Un análisis habitual en el separador isotópico consta de varias medidas. El carrusel se llena con cátodos que contienen estándares de referencia, blancos de sintonización, muestras y blancos de procesamiento. Cada medida dura cinco minutos, subdividida en 10 ciclos de 30 segundos [20]. Los estándares de referencia son materiales cuyo cociente isotópico es perfectamente conocido, los blancos de sintonización son aquellos que presentan bajo componente del isótopo problema (casi cero) y gran cantidad del isótopo estable. Por su parte, los blancos de procesamiento se diferencian de los de sintonización, en que los primeros son sometidos al mismo procesamiento que las muestras y debido a esto le es añadido cierta cantidad del isótopo problema.

Los blancos de sintonización son elementos muy importantes para realizar una medida eficiente. Como su nombre lo indica, su función radica en la sintonización de todo el sistema de AMS, es decir, permite fijar los parámetros del sistema (corriente de los deflectores magnéticos, potencial del acelerador, potencial de los deflectores electrostáticos, etc.) para que los núcleos estables describan toda la trayectoria hasta llegar al detector y, a partir de éstos, obtener los parámetros para que sean los núcleos problema los que describan dicha trayectoria. Estos blancos también permiten asegurar una buena transmisión del haz, desde la entrada del acelerador hasta la salida del ESA de la zona de alta anergia, y separar la región de interés en el espectro entre el  $^{10}\text{Be}$  y B.

Posterior a la sintonización del sistema con los blancos de sintonización, se utilizan los cátodos que contienen los estándares de referencia para verificar un espectro donde se garantice la separación de Be y B. Además, se realiza un análisis de los estándares para conocer si el valor del cociente isotópico medido corresponde al 10% del valor nominal, este porcentaje se debe a las pérdidas por el paso en la ventana de nitruro de silicio (absorbente pasivo). Una vez verificada la sintonización con el estándar, se comienza la medición de las muestras a estudiar.

Por su parte, los blancos de procesamiento permiten tomar en cuenta los efectos del fondo, el cual se vuelve más importante conforme los cocientes isotópicos se van haciendo muy bajos. El fondo puede catalogarse en intrínseco o de interferencia. El intrínseco es el que se genera debido a la contaminación del material original durante la preparación de la muestra en el laboratorio; la interferencia es causada por los átomos de diferentes isótopos que llegan al detector final, que incluyen iones moleculares, isóbaros e isótopos abundantes [20].

Después de la normalización con los estándares y la sustracción del fondo, la precisión que se alcanza en los análisis de los estándares primarios es del orden de 0.26 a 2%, dependiendo del isótopo de estudio, correspondiendo 1.84% para  $^{10}\text{Be}$  y 1.247% para  $^{26}\text{Al}$  [20].

### 2.2.3. Cálculo de concentraciones de $^{10}\text{Be}$

La determinación de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en una muestra natural se realiza siguiendo el procedimiento planteado en [26], el cual obtiene una expresión matemática para la concentración considerando muestras de cuarzo. Sin embargo, tomando en cuenta que el proceso radioquímico no depende del tipo de fuente de donde es extraída la muestra, no se realizaron modificaciones con respecto al tipo de material muestreado en dicha expresión.

La expresión matemática propuesta, requiere del conocimiento de la medida del cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ , la masa de Be añadida como material portador en el procesamiento químico y la cantidad de átomos de  $^{10}\text{Be}$  que están presentes en el blanco de procesamiento. Esta última con la finalidad de hacer la corrección correspondiente y dar una concentración real, debido a que el cociente isotópico proporcionado por el sistema AMS debe ser corregido por los cambios en las corrientes durante la medida y normalizados con respecto al valor nominal del estándar. Así, la concentración de  $^{10}\text{Be}$  está dada por la ecuación (2.10):

$$N_{^{10}\text{Be}} = \frac{1}{M} \left( \frac{R_{^{10}/9} M_P N_A}{M_{\text{Be}}} - n_{^{10}\text{Be}} \right) \quad (2.10)$$

donde  $N_{^{10}\text{Be}}$  es la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en átomos $\cdot\text{g}^{-1}$ ,  $M$  es la masa de la muestra,  $R_{^{10}/9}$  es el cociente isotópico dado por el AMS (no corregido),  $M_P$  es la cantidad de material portador añadida (en unidades de masa),  $N_A$  es el número de Avogadro ( $6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ),  $M_{\text{Be}}$  es el peso molecular del Be ( $9.012 \text{ kg}\cdot\text{mol}^{-1}$ ) y  $n_{^{10}\text{Be}}$  es la cantidad de átomos de  $^{10}\text{Be}$  presentes en el blanco.

Sin embargo, en este trabajo primero se hizo la corrección del cociente isotópico provista por el sistema AMS y después calcular la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en las muestras. Para la rectificación del cociente isotópico, se debe realizar una normalización con respecto a un estándar. La ecuación (2.11) representa este ajuste:

$$R_r = \frac{R_N}{R_S} (R_M - R_B) \quad (2.11)$$

En esta expresión,  $R_r$  es el cociente isotópico real de la muestra,  $R_N$  es el cociente del estándar nominal utilizado para normalización,  $R_S$  es el cociente del valor nominal medido con la técnica AMS obtenido estadísticamente,  $R_M$  es el cociente de la muestra medida con la técnica AMS y  $R_B$  es el cociente correspondiente al blanco sometido al mismo proceso que las muestras, provisto por la misma técnica [4].

El error asociado al cociente isotópico real, considerando la ecuación (2.11), se

obtiene aplicando la ley de propagación de errores:

$$\sigma_r = \sqrt{\sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 \sigma^2(x_i)} \quad (2.12)$$

En este caso, la función  $f$  corresponde al cociente isotópico real  $R_r$ ,  $x_i$  son las variables (de las que depende la función  $f$ ) que tienen un error asociado y  $\sigma$  es el error asociado a cada una de estas variables. De esta forma, el error correspondiente al cociente isotópico real está dado por la expresión (2.13):

$$\sigma_r = \sqrt{\left( \frac{\partial R_r}{\partial R_N} \right)^2 \sigma_N^2 + \left( \frac{\partial R_r}{\partial R_S} \right)^2 \sigma_S^2 + \left( \frac{\partial R_r}{\partial R_M} \right)^2 \sigma_M^2 + \left( \frac{\partial R_r}{\partial R_B} \right)^2 \sigma_B^2} \quad (2.13)$$

Calculando explícitamente las derivadas parciales, a partir de (2.11), indicadas en la expresión (2.13), se obtiene:

$$\frac{\partial R_r}{\partial R_N} = \frac{1}{R_S} (R_M - R_B) \quad (2.14)$$

$$\frac{\partial R_r}{\partial R_S} = -\frac{R_N}{R_S^2} (R_M - R_B) \quad (2.15)$$

$$\frac{\partial R_r}{\partial R_M} = \frac{R_N}{R_S} \quad (2.16)$$

$$\frac{\partial R_r}{\partial R_B} = -\frac{R_N}{R_S} \quad (2.17)$$

Sustituyendo las expresiones anteriores en la ecuación (2.13), se tiene que el error real asociado al coeficiente isotópico real  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  es:

$$\sigma_r = \frac{1}{R_S} \sqrt{(R_N - R_B)^2 \left( \sigma_N^2 + \left( \frac{R_N}{R_S} \sigma_S \right)^2 \right) + R_N^2 (\sigma_M^2 - \sigma_B^2)} \quad (2.18)$$

Teniendo el cociente isotópico corregido, considerando el blanco correspondiente, podemos simplificar la expresión (2.10) omitiendo el término que representa la cantidad de átomos de  $^{10}\text{Be}$  en el blanco, puesto que ya se hizo esta corrección. Así, la expresión que se considera para calcular las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  está dada en (2.19):

$$N_{^{10}\text{Be}} = \frac{1}{M} \left( \frac{R_r M_P N_A}{M_{\text{Be}}} \right) \quad (2.19)$$

El error asociado a la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en las muestras naturales, se obtiene aplicando nuevamente la ley de propagación de errores dada en la ecuación (2.12) a la expresión (2.19), obteniendo la expresión (2.20). Es este caso, las variables que tienen asociado una incertidumbre son el coeficiente isotópico real,  $R_r$ , cuya incertidumbre está dada por la ecuación (2.18), y el material portador de  $^9\text{Be}$  agregado a la muestra en el proceso radioquímico,  $M_P$ , siendo su incertidumbre proporcionada por el proveedor.

$$\sigma_{N_{10\text{Be}}} = \sqrt{\left(\frac{\partial N_{10\text{Be}}}{\partial R_r}\right)^2 \sigma_r^2 + \left(\frac{\partial N_{10\text{Be}}}{\partial M_P}\right)^2 \sigma_{M_P}^2} \quad (2.20)$$

Obteniendo las derivadas parciales señaladas en (2.20), a partir de (2.19), se obtiene:

$$\frac{\partial N_{10\text{Be}}}{\partial R_r} = \frac{1}{M} \frac{M_P N_A}{M_{\text{Be}}} \quad (2.21)$$

$$\frac{\partial N_{10\text{Be}}}{\partial M_P} = \frac{1}{M} \frac{R_r N_A}{M_{\text{Be}}} \quad (2.22)$$

Reemplazando (2.21) y (2.22) en la expresión (2.20), se tiene que el error asociado a la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en muestras naturales es:

$$\sigma_{N_{10\text{Be}}} = \sqrt{\left(\frac{1}{M} \frac{M_P N_A}{M_{\text{Be}}}\right)^2 \sigma_r^2 + \left(\frac{1}{M} \frac{R_r N_A}{M_{\text{Be}}}\right)^2 \sigma_{M_P}^2} \quad (2.23)$$

---

## Capítulo 3

# Objetivos y alcances

---

Los radioisótopos cosmogénicos de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  de origen meteórico presente en muestras pequeñas de material particulado  $\text{PM}_{10}$  pueden ser medidos en el sistema de espectrometría de masas con aceleradores del LEMA.

### 3.1. Objetivo general

Determinar la concentración de los isótopos cosmogénicos de Be y Al ( $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$ ), de origen meteórico, en muestras pequeñas de material particulado atmosférico.

#### 3.1.1. Objetivos específicos

- Analizar la influencia de la cantidad del portador  $^9\text{Be}$  en muestras pequeñas para la determinación de  $^{10}\text{Be}$  en material particulado.
- Analizar la dependencia de la corriente del haz de  $^{26}\text{Al}$  con el metal de mezcla a proporciones iguales de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  obtenido de blancos.
- Determinar la concentración del isótopo cosmogénico  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia estándar NIST 1648a (material particulado urbano) con el empleo de dos técnicas de extracción.
- Cuantificar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en material particulado atmosférico proveniente de Iztapalapa.

### 3.2. Alcances

Los resultados obtenidos de la cuantificación del  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  de origen meteórico presentes en muestras pequeñas en el sistema de espectrometría de masas con aceleradores

del LEMA, permitirá extender el análisis de éstos a muestras de características similares. Con esto se logrará ampliar las múltiples aplicaciones que tiene el conocimiento de la producción de  $^{10}\text{Be}$  en los diversos campos de la ciencia.

### 3.3. Hipótesis

El escaso contenido de los radioisótopos cosmogénicos de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en muestras pequeñas de material particulado, derivado de la producción meteórica, puede ser cuantificado en el sistema de espectrometría de masas con aceleradores del LEMA.

---

## Capítulo 4

# Materiales y Métodos

---

En este capítulo se detallan las características de los materiales utilizados para la obtención de las muestras que se desean medir, así como la descripción del proceso radioquímico para la extracción de Be y Al de las mismas, y posteriormente ser medidas por el sistema AMS.

### 4.1. Materiales

Para realizar el estudio de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  con la técnica de espectrometría de masas con aceleradores, se han utilizados muestras de dos materiales:

- *Estándar de referencia NIST 1648a* (material particulado urbano), el cual se empleará para caracterizar la producción atmosférica de  $^{10}\text{Be}$  utilizando dos técnicas de extracción.
- *Material particulado atmosférico  $\text{PM}_{10}$  colectado en Iztapalapa*, con el que se analizará la influencia de la cantidad del portador  $^9\text{Be}$  en muestras pequeñas para la determinación de  $^{10}\text{Be}$  en material particulado, así como cuantificar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{26}\text{Al}$  en material particulado proveniente de esta zona.

Además, se han usado blancos de óxido de aluminio o alúmina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) con la finalidad de analizar la dependencia de la corriente del haz de  $^{26}\text{Al}$  con el metal de mezcla a proporciones iguales del ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) obtenido.

#### 4.1.1. Estándar de Referencia NIST 1648a

El material de referencia estándar (MRE) 1648a, caracterizado por el Instituto Nacional de Estándares y Tecnología (NIST, por sus siglas en inglés), es un material particulado atmosférico de origen urbano. De acuerdo con la documentación provista por la institución antes mencionada, el material fue recolectado en el área urbana de la ciudad de San Luis, Misuri, EUA, en una *baghouse* diseñada especialmente para este

propósito, durante un periodo de tiempo superior a 12 meses durante 1976 y 1977. Después de este tiempo, el material fue retirado de los filtros, concentrado en un solo lote, filtrado a través de un tamiz para eliminar materiales ajenos y, finalmente, mezclado de forma homogénea.

El tamaño de partícula, determinada a partir del método de dispersión de luz láser, calculado en percentiles 10, 50 y 90 (porcentaje de volumen de partículas más pequeño que el valor) para el MRE 1648a es:  $d_{0.1} = 1.35 \mu\text{m}$ ,  $d_{0.5} = 5.85 \mu\text{m}$  y  $d_{0.9} = 30.1 \mu\text{m}$ . Las incertidumbres de estos valores se estiman en  $\pm 10\%$  relativo (2s).

En la composición del MRE 1648a se encuentran diversos elementos, cuyas fracciones de masa han sido medidas tanto por el NIST como por laboratorios colaboradores a éste, usando diversos métodos. Para el caso del aluminio, específicamente  $^{27}\text{Al}$ , la fracción de masa certificada que constituye al material es de  $3.43 \pm 0.13\%$ .

Puesto que la cantidad de  $^{27}\text{Al}$  en este material está perfectamente determinada, es posible conocer la concentración de  $^{26}\text{Al}$  al hacer su medición por AMS, sin la necesidad de recurrir de un método destinado para la medición de  $^{27}\text{Al}$  presente (como se hace habitualmente).

Es importante mencionar que ningún isótopo del Be está caracterizado en este material, de manera que su estudio servirá para determinar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y ser empleado en un futuro como referencia para las medidas efectuadas por AMS.

#### 4.1.2. Material particulado $\text{PM}_{10}$ colectado en Iztapalapa

La Ciudad de México, es la capital y la ciudad más poblada de nuestro país con alrededor de 8.9 millones de habitantes. Está localizada en el Valle de México, una zona en las mesetas altas del centro de México, a una altitud de 2,240 m sobre el nivel del mar. La atmósfera de esta región es considerada como una de las más contaminadas en el mundo debido al rápido incremento de las fuentes de emisiones móviles y estacionarias en las últimas tres décadas. El área urbana incluye aproximadamente 30,000 industrias (por ejemplo, metalmecánica, molienda de maíz, fabricación electrónica y química) y alrededor de 3 millones de vehículos diesel y gasolina. La alcaldía de Iztapalapa se localiza en la zona oriente de la Ciudad de México, cuenta con una alta densidad de población y una gran afluencia de transportes públicos [27] (ver Figura 4.1).

De acuerdo con la metodología descrita en [27], el material particulado atmosférico fue colectado en filtros de cuarzo (Pallflex 2500 de 20 X 25cm, QAT-UP; Pall Sciences, Ann Arbor, MI, USA) utilizando un muestreador de alto volumen de  $\text{PM}_{10}$  con un flujo de  $1.9 \text{ m}^3/\text{min}$  (Grase by Andersen SA-2000H). Al término del muestreo, los filtros se envolvieron en papel aluminio y fueron almacenados a  $4^\circ\text{C}$ . En la Tabla 4.1 se presentan las características de muestreo de los filtros con los que se colectó el material



**Figura 4.1:** Localización geográfica de la alcaldía de Iztapalapa, Ciudad de México (Google Earth. Recuperada el 2 de junio de 2019)

particulado atmosférico utilizado en este trabajo.

Muestra (ID)	Inicio de muestreo	Término de muestreo	Tiempo de muestreo (h)
I-01	19/nov/2012 10:30	21/nov/2012 10:30	48
I-02	21/nov/2012 19:00	23/nov/2012 19:00	48
I-03	23/nov/2012 19:00	26/nov/2012 19:00	72
I-04	26/nov/2012 19:10	28/nov/2012 19:10	48
I-05	28/nov/2012 19:20	30/nov/2012 19:20	48
I-06	30/nov/2012 19:30	02/dic/2012 19:30	48

**Tabla 4.1:** Características de muestreo del material particulado  $PM_{10}$  colectados en Iztapalapa.

## 4.2. Preparación de muestras

La preparación de las muestras a medir mediante la técnica de AMS tiene como propósito la extracción del elemento de interés a analizar en forma de óxido,  $BeO$  o  $Al_2O_3$ . Esta preparación también tiene la finalidad de aislar y purificar los elementos de interés que permita eliminar parte de los elementos interferentes propios de cada elemento. Debido a la gran sensibilidad de la técnica AMS, este procedimiento debe llevarse a cabo con meticulosidad ya que es necesario tener especial cuidado en no contaminar la muestra con el radioisótopo que se desea medir (proveniente de agentes externos). Por lo expuesto anteriormente, la preparación de las muestras es una parte esencial del proceso de medición y de ésta puede depender el éxito o la falla del mismo.

En la mayoría de las muestras que son sometidas al procesamiento radioquímico, la concentración de  $^9\text{Be}$  es baja para poder recolectar la cantidad de  $\text{BeO}$  que se necesita colocar en los cátodos [16]. Es por esta razón que, en muchos casos, la extracción química de  $\text{Be}$  no es posible de forma eficiente sin el añadido de una solución portadora de  $^9\text{Be}$  de concentración conocida al inicio del procesamiento radioquímico, donde el contenido de  $^{10}\text{Be}$  (radionúclido que se desea extraer) es significativamente menor ( $\sim 100$  veces) [28]. La adición del portador también es importante durante el proceso de medición debido a que en éste se determina el cociente entre el isotopo inestable ( $^{10}\text{Be}$ ) y el isotopo estable ( $^9\text{Be}$ ) como una manera de normalizar la concentración final de  $^{10}\text{Be}$  que se espera obtener en la muestra. Esto permite determinar la concentración adecuada de  $^{10}\text{Be}$  sin verse afectado por las pérdidas en la preparación radioquímica debido a la normalización realizada [1].

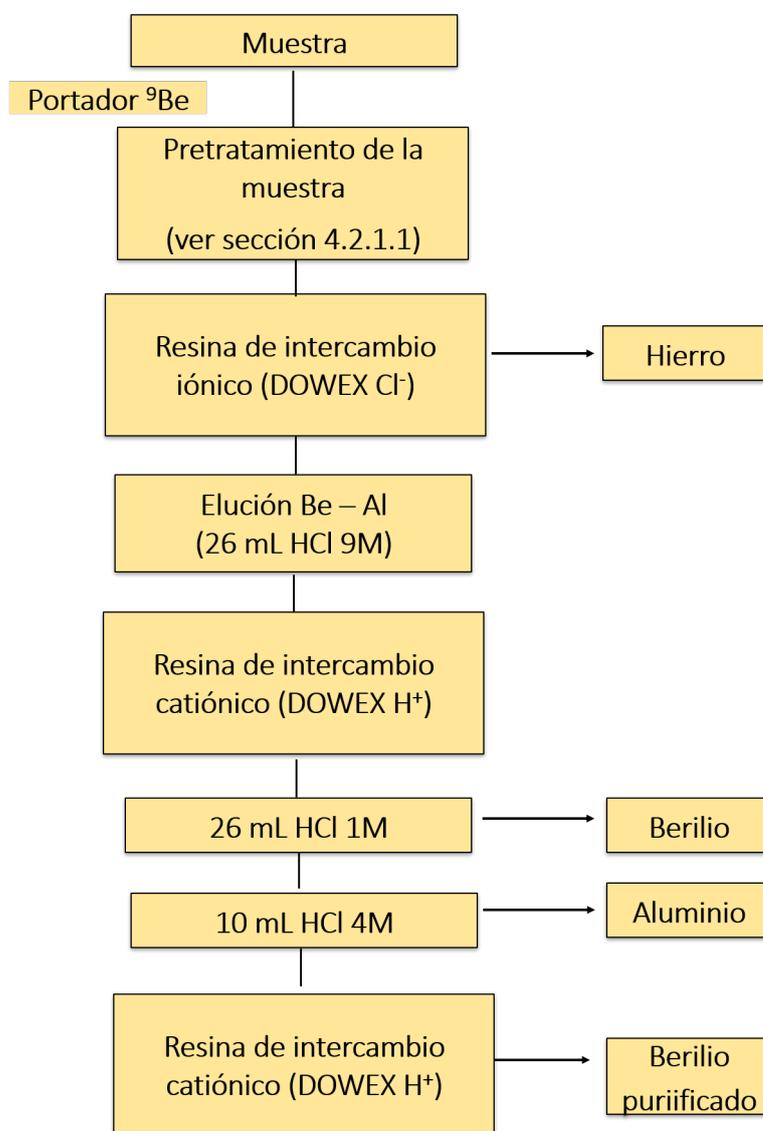
La preparación de la muestra cumple la función de la minimizar significativamente la concentración (en un factor de  $\sim 10^{-5} - 10^{-4}$ ) del elemento interferente en la medición con el acelerador, es decir, el isóbaro estable del radionúclido a analizar ( $^{10}\text{B}$  para el caso de  $^{10}\text{Be}$ ). De esta manera, se permite que los métodos de detección propios de la física nuclear sean capaces de identificar el núcleo de interés [1, 28].

La técnica de extracción radioquímica se sustenta en la premisa que no ocurre fraccionamiento isotópico durante la extracción del elemento que se desea analizar, esencialmente por considerar que todos los aspectos químicos de los isótopos son los mismos, es decir, que no se distingue el número de electrones del elemento de estudio [28].

#### 4.2.1. Método 1 de extracción radioquímica (uso de tres columnas)

El proceso utilizado para la extracción de las especies de  $\text{BeO}$  y  $\text{Al}_2\text{O}_3$  es el descrito por Gaitán en [1] que, a su vez, está basado en el proceso reportado por Padilla en [4] pero con adaptaciones realizadas de acuerdo con las condiciones y necesidades que se presentaron dada la naturaleza del filtro de cuarzo que se empleó para coleccionar el material particulado. En la Figura 4.2 se describe este método de extracción, que consiste básicamente en una digestión ácida que permita poner la muestra en solución, para después pasar las muestras por columnas de resinas cromatográficas que son las que se encargarán de separar  $\text{Be}$  y  $\text{Al}$  (en forma de óxidos), minimizando la concentración de los interferentes que puedan existir; para el caso del  $\text{Be}$ , estas resinas permiten retener los cationes de  $\text{Be}^{2+}$  existentes en la disolución acuosa y separarlos del  $^{10}\text{B}^{2+}$ . En este trabajo se realiza un análisis similar al reportado por Gaitán (2018), con la diferencia en que se aplicarán los procedimientos de extracción tanto de  $\text{Be}$  como  $\text{Al}$ .

La cromatografía es un método que permite la separación de los componentes de una mezcla de acuerdo a su diferente movilidad en un medio poroso (fase estacionaria), que en este caso son las resinas, cuando son arrastrados por un fluido (fase móvil o



**Figura 4.2:** Descripción del método 1 de extracción radioquímica de Be y Al.

eluyente). El funcionamiento de las resinas cromatográficas se basa en el método de cromatografía por intercambio iónico, el cual consiste en la retención selectiva de iones que circulan en la fase móvil, de signo contrario al de los grupos de iones que presenta en su superficie la fase estacionaria [29].

Las resinas de intercambio iónico usualmente son sustancias granuladas insolubles que tienen en su estructura molecular radicales ácidos o básicos que pueden ser intercambiados. Los iones positivos o negativos fijados en estos radicales serán reemplazados por iones del mismo signo en solución en el líquido en contacto con ellos [30].

Las resinas de intercambio catiónico fuertemente ácidas están compuestas de grupos funcionales de ácidos sulfónicos ( $\text{RSO}_3^+\text{H}^+$ ) unidos a una red copolimérica [30]. Cuando se hace pasar la muestra, las moléculas neutras y aniones no interaccionan, pero los cationes se quedan retenidos en ellas al desplazar al  $\text{H}^+$  en el extremo del grupo sulfónico. Para poder ser eluidos de la columna será necesario introducir un ión con afinidad más alta por la resina o por otro que, si bien tenga afinidad similar o más baja, conste de una concentración más alta [30].

Sin embargo, ocurre que no sólo los cationes de berilio serán retenidos, sino también todos aquellos existentes en la disolución acuosa para esos valores del pH. Entre éstos se encuentran los de  $\text{B}^{3+}$ , que será el principal interferente del  $^{10}\text{Be}$  en las medidas posteriores con el sistema AMS.

Antes de extraer Be y Al, es necesario preparar tanto las muestras como las resinas para lograr la elución de dichos elementos de manera eficaz.

A continuación, se describe el procedimiento seguido para la extracción de Be y Al de las muestras.

#### 4.2.1.1. Pre-tratamiento de las muestras

Para el caso del material de referencia estándar 1648a del NIST, se toman alícuotas de masas deseadas, en este caso de 200, 250 y 300 mg, y son depositadas en crisoles de cerámica; en el caso de los filtros, éstos son cortados en porciones pequeñas y colocadas también en un crisol. Posteriormente, a las muestras se le añaden 250  $\mu\text{l}$  del material portador de  $^9\text{Be}$  ( $\text{Be}_4\text{O}(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)$ ) en  $\text{HNO}_3$  2-3 %, Merck 170305) y se homogeneiza colocando  $\text{HCl}$  9M hasta cubrir la muestra en su totalidad. Se deja reposar durante una hora y posteriormente es puesta en una placa calefactora en donde permanece hasta llevar a sequedad para luego calcinar a 600 °C durante 4 horas haciendo uso de una mufla, esto último permite la eliminación de la materia orgánica presente.

La muestra calcinada es recuperada con ácido nítrico ( $\text{HNO}_3$ ) ultra puro en un vaso de teflón hasta que el crisol quede completamente limpio (se coloca una pequeña porción de ácido en el crisol, por vez, y se traspasa al vaso de teflón) y se evapora a sequedad (en la placa calefactora). Luego, se añaden 5 ml de ácido fluorhídrico (HF) ultra puro y de nuevo es evaporado a sequedad. Seguidamente, se adiciona ácido nítrico ultra puro para eliminar los residuos de HF evaporando a sequedad. Finalmente, se agregan 2 ml de  $\text{HCl}$  9M, con lo que queda preparada la muestra para la extracción de Be y Al por medio de las resinas cromatográficas.

#### 4.2.1.2. Acondicionamiento de las resinas cromatográficas

La separación de Be y Al consiste en un procedimiento secuencial, que emplea tres columnas con dos diferentes resinas de intercambio iónico, las cuales son acondicionadas para luego hacer pasar por ellas la muestra, tratadas mediante el proceso descrito en el apartado anterior, con el objetivo de conseguir el precipitado de interés. En la Figura 4.2 se muestra el diagrama que describe el proceso de extracción.

La primera resina cromatográfica por la que pasarán las muestras tiene como objetivo la eliminación del hierro contenido en ellas, ya que éste es un interferente durante el proceso de extracción radioquímica. Para prepararla, se añaden 4 ml de resina aniónica DOWEX AG1x8 Cl<sup>-</sup> en la columna. Con el fin de limpiarla, se agregan 20 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y 20 ml de HCl 1M. Luego, para acondicionarla se adicionan 20 ml de HCl 4.5M y 20 ml de HCl 9M y por último se elimina el desecho. Un punto importante a tomar en consideración es que en cada paso en donde se añaden elementos a la resina (H<sub>2</sub>O, HCl, etc.) se debe esperar hasta que el contenido agregado pase por completo a través de ésta hasta que el goteo en la parte inferior de la columna cese.

La segunda resina se encarga de separar el Be o precipitar Be y Al, según se requiera, a través de la misma columna. En este caso, se describe la manera de obtener ambos elementos. De manera similar a la primera columna, se añaden 2 ml de resina catiónica DOWEX AG 50W-x8 H<sup>+</sup> en la columna, la cual se limpia agregando 10 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ, 10 ml de HCl 4.5M, 10 ml de HCl 9M y 3 ml de HCl 4.5M, y se acondiciona con 10 ml de HCl 1M, posteriormente se elimina el residuo. También es necesario dejar pasar todo el contenido agregado hasta que cese el goteo para poder añadir el siguiente elemento del proceso.

La tercera columna que se emplea es la misma utilizada en el paso anterior, con la cual se lleva a cabo el proceso de purificación del Be. Esta columna debe ser limpiada y acondicionada para cumplir con este proceso. Para ello, después de haber hecho pasar la muestra por la segunda columna (procedimiento que se describirá más adelante), se toma la resina utilizada y se le añaden 10 ml de HCl 9M, 3 ml de HCl 4.5M, 10 ml de HCl 1M, 10 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y 10 ml de HNO<sub>3</sub> 5M para limpiarla, posteriormente, se adicionan 2 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y 8 ml de ácido oxálico 0.4M para acondicionarla. Todos los residuos son desechados, como en las columnas anteriores.

#### 4.2.1.3. Paso de las muestras por las resinas

Una vez preparadas las muestras y habiendo acondicionado las resinas, es posible llevar a cabo la extracción de los elementos deseados: Be y Al.

El proceso comienza haciendo pasar el contenido del vaso de teflón (la muestra acon-

dicionada con 2 ml de HCl 9M) por la primera columna, con el objetivo de eliminar el hierro que esté presente en la muestra. Luego, se lava el vaso de teflón con 2 ml de HCl 9M y se agrega dicho contenido a la columna; el paso anterior se repite una vez más. Por último, la muestra es eluida con 20 ml de HCl 1M recolectando los 26 ml en un vaso de teflón (ver Figura 4.2). El eluido obtenido es evaporado a sequedad y recuperado con 2 ml de HCl 1M, con lo que queda acondicionado para ser llevado a través de la siguiente columna.

A continuación, para la extracción de Be, el contenido del vaso de teflón se hace pasar a través de la segunda columna y seguidamente se añaden otros 2 ml de HCl 1M para lavar el vaso, los cuales también se hacen pasar a través de la columna; se repite el paso anterior una vez más para asegurar que se ha realizado la captura completa de la muestra. Posteriormente, se adicionan 20 ml de HCl 1M para disolver el Be, el cual es recuperado en un vaso de teflón (ver Figura 4.2); lo obtenido ya contiene el elemento de interés. Finalmente, el eluido es evaporado a sequedad.

Luego, para extraer Al, se añaden 10 ml de HCl 4.5M por la misma resina del paso anterior y el material es recuperado en un vaso de teflón (ver Figura 4.2), para posteriormente ser evaporado a sequedad. Seguidamente, la muestra es recuperada con HNO<sub>3</sub> ultra puro y la disolución es traspasada a un tubo de centrifuga en donde se añade agua hasta integrar un volumen de 10 ml. Posteriormente se añade amoníaco hasta obtener un pH 7. Finalmente, se centrifuga y el precipitado es liofilizado con el fin de eliminar el agua presente en la muestra.

Posteriormente, la muestra evaporada que contiene el Be es disuelta con 3 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y se añaden unas gotas de HCl concentrado. Luego, la disolución es colocada en un envase de centrifuga, adicionando 10 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y unas gotas de amoníaco hasta obtener una disolución con pH 9; se agita y se deja reposar unos minutos para luego llevarlo a centrifugar con una frecuencia entre 4000 y 4200 rpm por 10 minutos. Pasado este tiempo, el envase es retirado de la centrifuga, el sobrenadante es desechado y el precipitado es recuperado con 2 ml de ácido oxálico 0.4M, para posteriormente hacerlo pasar por la tercera columna. El precipitado obtenido en este paso es casi traslúcido.

Una vez acondicionada la tercera columna con ácido oxálico, el material recuperado en el proceso anterior se pasa a través de la resina y se realizan 2 lavados más con 2 ml de ácido oxálico de la misma concentración. Posteriormente, con la finalidad de diluir el desecho o contaminantes presentes en la muestra, se adicionan 24 ml de ácido oxálico 0.4M, 6 ml de H<sub>2</sub>O MilliQ y 12 ml de HNO<sub>3</sub> 0.5M y se elimina. Finalmente, el Be es eluido en un vaso de teflón añadiendo 24 ml de HNO<sub>3</sub> 1M a la columna (ver Figura 4.2); este eluido es evaporado a sequedad para ser precipitado.

Como último paso, la muestra es recuperada con unas gotas de ácido nítrico y

agua. Luego, se lleva al vial de centrifuga hasta completar un volumen de 10 ml y se precipita el  $\text{Be}(\text{OH})_2$  con amoníaco (pH 9) y 1 mg de Fe. Por último, es centrifugado y el precipitado es liofilizado, tal como se hizo para el precipitado de Al.

#### 4.2.1.4. Obtención de las moléculas BeO y AlO

Habiendo finalizado el proceso de liofilización, la muestra (Be o Al) se traslada del tubo de centrifuga a un crisol de porcelana y se calcina a una temperatura de 1000 °C durante una hora para oxidar la molécula, para el caso de Be, obteniendo así el BeO deseado; para el Al, la muestra calcinada a 650 °C durante tres horas para obtener la molécula  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Concluido el proceso de calcinación, la muestra que contiene el BeO se mezcla con 4 mg de Nb (niobio), es homogeneizada en un mortero y finalmente es prensada en un cátodo de Al; mientras que la muestra de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  es mezclada con Cu (cobre) 1:1, para luego ser prensada en un cátodo de Cu. El cátodo finalmente se lleva al carrusel para ser introducido en la fuente de iones del espectrómetro de masas con aceleradores.

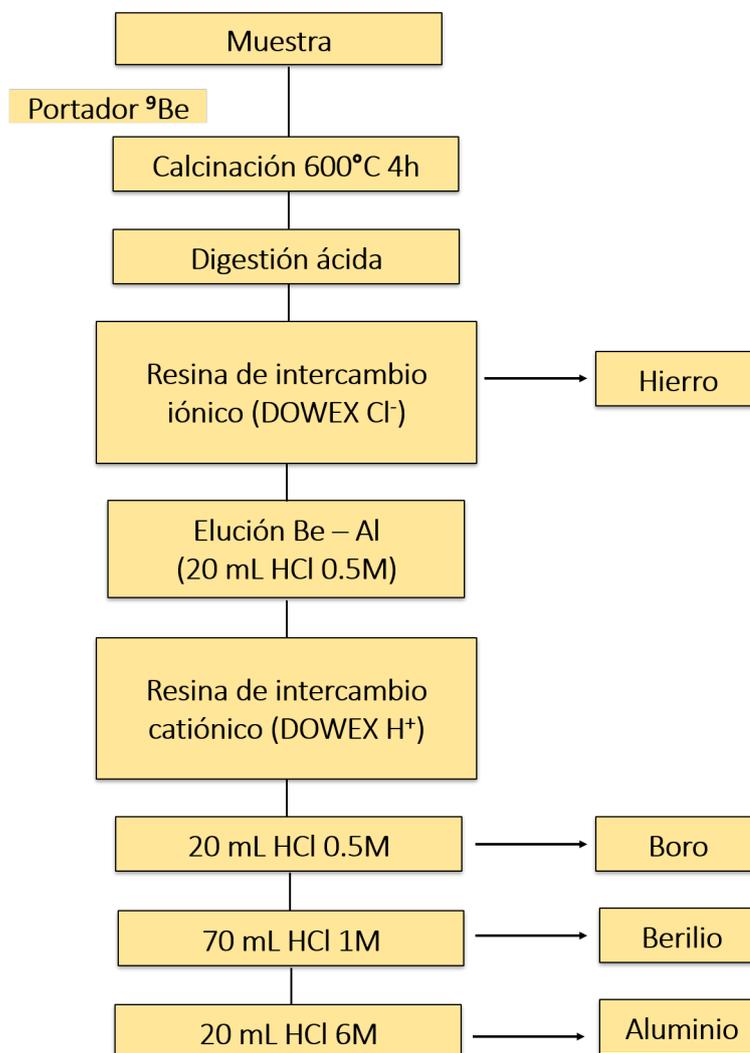
Es importante que en cada etapa del proceso de medición se realice una clasificación y nombramiento de los cátodos que serán analizados, de tal forma que sea posible reconocer en qué parte del carrusel fueron colocados, según el orden de interés para la medición. Además, las etiquetas son importantes ya que es la única forma de identificar las muestra que contienen y así poder llevar a cabo el análisis estadístico de los resultados.

Cabe resaltar que el procedimiento de extracción radioquímica debe aplicarse simultáneamente a un ejemplar que no contiene la muestra a analizar (blanco), por cada 8 muestras. De esta forma, se entiende que el número de átomos de  $^{10}\text{Be}$  que finalmente se encuentran en él pueden venir del portador de  $^9\text{Be}$  o de algún tipo de contaminación durante el procesamiento. Este procedimiento se realiza con el fin de encontrar el fondo contaminante durante el procedimiento de preparación de muestras.

#### 4.2.2. Método 2 de extracción radioquímica (uso de dos columnas)

El método descrito anteriormente se comparará con el establecido en el trabajo de Auer, publicado en el año 2007 [7]. En este último se lleva a cabo el pre-tatamiento de las muestras, la limpieza de las resinas y la eliminación de Fe de la misma forma como se detalló en las secciones 4.2.1.1, 4.2.1.2 y 4.2.1.3. La diferencia radica en la manera de eluir Be y Al en su paso por las resinas donde sólo se hará uso de dos columnas (se omite la columna 3 de purificación de Be, ver Figura 4.2).

Posteriormente, para eluir Be y Al, se añaden 20 ml de HCl 6M a la columna; esta elución es evaporada hasta sequedad y recuperada con 5 ml de HCl 0.5M.



**Figura 4.3:** Descripción del método 2 de extracción radioquímica de Be y Al.

La disolución obtenida en el paso anterior es colocada en la columna que contiene la resina de intercambio catiónico (DOWEX AG 50W-x8 H<sup>+</sup>), previamente acondicionada con HCl 0.5M. Para eliminar el B, la muestra es eluida con 40 ml de HCl 0.5M, lo que se obtiene es una disolución que contiene dicho elemento.

Luego, para la elución de Be, se añaden 70 ml de HCl 1M. Los primeros 20 ml son desechados y los restantes se continúan procesando como se describió en la sección anterior.

Finalmente, para la elución, se colocan 20 ml de HCl 6M. De igual forma, la elución

continúa el proceso de la sección previa.

### 4.2.3. Preparación de blancos de sintonización

Los blancos de sintonización no se someten al mismo procesamiento radioquímico que las muestras y los blancos de procesamiento. De hecho, en la preparación de estos blancos se pretende minimizar los procesos utilizados en ésta, con la finalidad de reducir al máximo la contaminación.

#### Blancos de sintonización Be

Para preparar los blancos de sintonización de Be, como se muestra en la Figura 4.4, se toma el mismo material portador de  $^9\text{Be}$  usado en el procesamiento radioquímico y se añaden agua y amoníaco, de tal forma que el pH de la disolución sea 9 (con el cual sabemos que se logra la formación de la molécula de hidróxido de Be). El material es calcinado para obtener BeO y liofilizado para eliminar el agua. Finalmente es mezclado con Nb y prensado en un cátodo de Al.

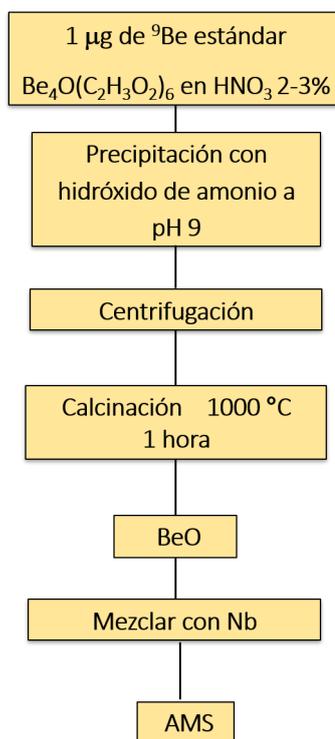
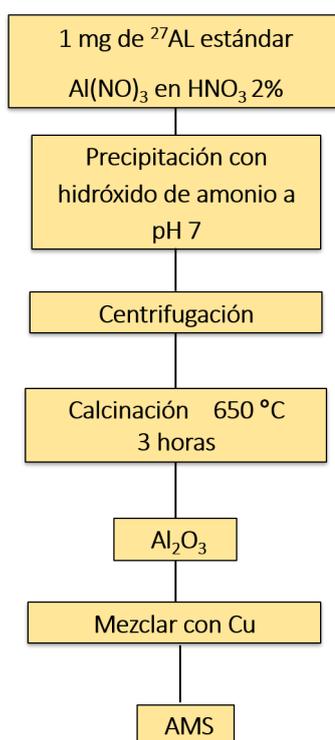


Figura 4.4: Preparación de blancos de sintonización de Be.

#### Blancos de sintonización Al

La preparación de los blancos de sintonización de Al, mostrada en la Figura 4.5, se lleva a cabo utilizando un material ICP estándar que contiene dicho elemento. Este material es acondicionado con 10 ml de agua y gotas de amoniaco, de forma tal que se obtiene una disolución con pH 7. Posteriormente, se centrifuga y el precipitado es liofilizado, mezclado con Cu en proporción 1:1 (proporción atómica) y prensado en cátodos de Cu.



**Figura 4.5:** Preparación de blancos de sintonización de Al.

Además, se prepararon blancos cuyo material conductor (o acarreador), además de Cu, es Fe, Ag y Nb, también mezclado en proporciones atómicas 1:1. Estas mezclas se prepararon con la finalidad de conocer en cuál de ellas se presenta mayor corriente durante la medición.

### 4.3. Sintonización del sistema AMS

Como se describió en la sección 2.2, los isótopos que se desean medir con el sistema AMS, deben hacer un recorrido desde la fuente de iones hasta el detector final, superando todos los filtros electromagnéticos y el acelerador. Para lograr este objetivo,

los filtros, los elementos de transporte y el acelerador deben estar adaptados a la masa de interés. De esta forma, es necesario introducir en el sistema de control una serie de parámetros que ajusten todos estos elementos para la medición del isótopo problema.

#### 4.3.1. Zona de baja energía

Para comenzar con la sintonización del sistema, primeramente se enciende la fuente de iones (cuyos parámetros son los mismos para todos los isótopos) con una corriente de ionización de aproximadamente 17.9 A, el reservorio de Cs se somete a una temperatura de 80 °C y posteriormente se incrementa a 100 °C, para el correcto funcionamiento del sistema. Además, el voltaje de ionización se fija en 7 kV y el voltaje de extracción a 28 kV. De esta manera, el haz de iones se dirige al inyector con una energía inicial de 35 kV y en un estado de carga -1.

Habiendo asegurado el funcionamiento óptimo de la fuente de iones, lo que sigue es efectuar el acondicionamiento del inyector correspondiente a la zona de baja energía, recordando que el inyector está constituido por dos lentes electrostáticas (lentes Einzel), el deflector electrostático de baja energía (ESA), el voltaje de desplazamiento vertical (Y-steerer) y el deflector magnético de baja energía. En la Tabla se presentan los parámetros establecidos para el funcionamiento del inyector, especificando el isótopo de interés:  $^{10}\text{Be}$  o  $^{26}\text{Al}$ .

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

**Tabla 4.2:** Parámetros fijados para el sistema de inyección en la medición de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{10}\text{Al}$  (valores aproximados).

Es importante mencionar que, con el objetivo de poder medir tanto el isótopo inestable ( $^{10}\text{Be}$  o  $^{26}\text{Al}$ ) como el estable ( $^9\text{Be}$  o  $^{27}\text{Al}$ ), un voltaje adicional justo antes de

la entrada del imán cambia rápidamente la velocidad (rigidez magnética) de los iones incidentes. Si el voltaje es negativo los frena ligeramente y si es positivo los acelera [20]. De esta manera, es posible cambiar ágilmente de una rigidez magnética correspondiente a una masa (10 ó 26) a otra (9 ó 27), de tal forma que se fijan intervalos de tiempo en los que el imán permite el paso de uno de los núcleos y es omite el otro. Puesto que la cantidad de isótopos inestables es mucho menor que los estables, el intervalo para éstos es mayor.

### 4.3.2. Zona del acelerador

El acelerador Tándem del LEMA tiene un potencial máximo de terminal de 1 MV. Lo componen dos tubos de aceleración, uno de baja energía y otro de alta energía (2.2) con una longitud de 80 cm. Para Be y Al se utiliza el potencial máximo de la terminal. Además, el gas empleado para el proceso de rompimiento molecular (*stripping*) es argón (Ar) a una presión de  $1.0 \times 10^{-2}$  mbar en el caso de Be y  $2.2 \times 10^{-2}$  mbar para el Al.

Por otro lado, el cuadrupolo ubicado a la salida del acelerador es fijado a un valor de 69.4% para Be y 61.2 para Al, su función es focalizar el haz de salida. Finalmente, antes del deflector magnético de alta energía, se coloca un Y-steerer con una diferencia de potencial de -86.4 V, aproximadamente.

### 4.3.3. Zona de alta energía

Como recordatorio, esta zona se encarga de llevar a cabo la selección final del radioisótopo de interés. Está compuesta por el imán de alta energía, cuatro copas de Faraday y el deflector electrostático de alta energía (ESA). En la Tabla 4.3 se presentan los parámetros que fueron fijados para cada componente de esta zona.

Componente	$^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$
<b>Imán de alta energía</b>	176 A	160.2 A
<b>Y-steerer</b>	4.98 kV	4.98 kV
<b>ESA de alta energía</b>	51.7 kV	52.11 kV

**Tabla 4.3:** Parámetros establecidos en la zona de alta energía para la medición de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{10}\text{Al}$  (valores aproximados).

Otro componente esencial en esta zona, que es el que permitirá la separación entre del  $^{10}\text{Be}$  de su principal interferente  $^{10}\text{B}$ , es el *absorbente pasivo*, que consiste en una ventana de  $\text{Si}_3\text{N}_{3,2}$  de 150 nm de espesor. Se coloca justo antes del ESA de alta energía. Este elemento es fundamental para eliminar gran parte del  $^{10}\text{B}^+$ , evitando que llegue al detector final; de otra manera, se saturaría el detector de cuentas, siendo además

prácticamente imposible distinguir las cuentas de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{10}\text{B}$ .

El funcionamiento de esta ventana se basa en la dependencia de la pérdida de energía de los iones, en su paso por la materia, del número atómico  $Z$ . Esta pérdida es descrita por la ecuación 2.8. Debido a que el  $^{10}\text{B}$  posee un protón más que el  $^{10}\text{Be}$ , el primero perderá mayor energía que el segundo al atravesar la ventana. Luego, ajustando la rigidez electrostática el ESA de alta energía a la del  $^{10}\text{Be}$ , éste se 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.

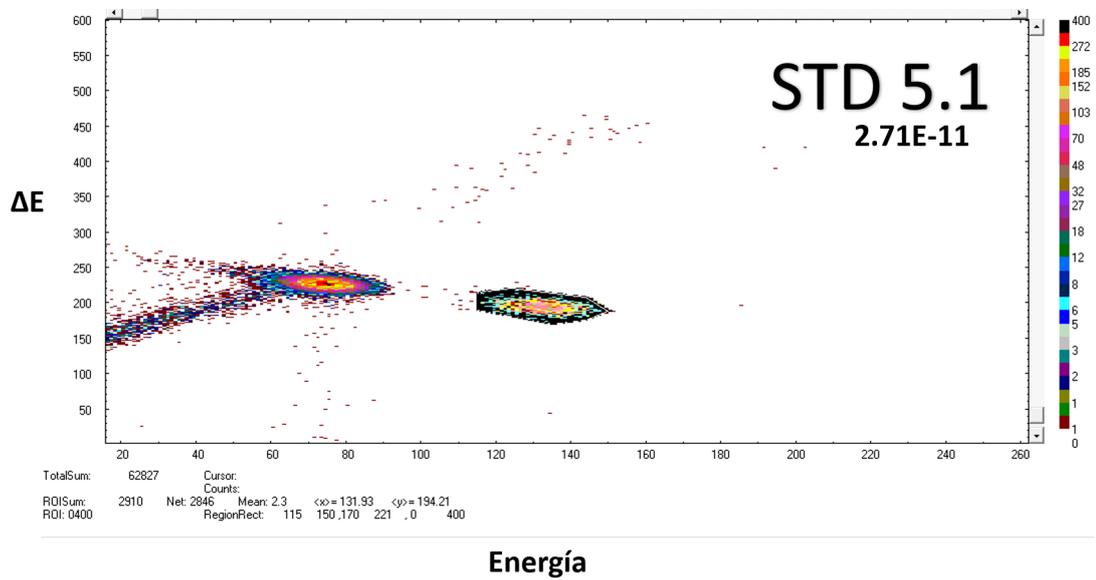
Como consecuencia de la interacción de los iones de  $^{10}\text{Be}$  con las partículas que componen al absorbente pasivo, éstos describirán trayectorias aleatorias en el interior del absorbente ocasionando que sólo una parte de los iones salgan de la ventana para continuar con su camino a través del sistema. Por esta razón, la transmisión total de  $^{10}\text{Be}$  será del 10 % o menos.

#### 4.3.4. Medición de $^{10}\text{Be}$ y $^{26}\text{Al}$

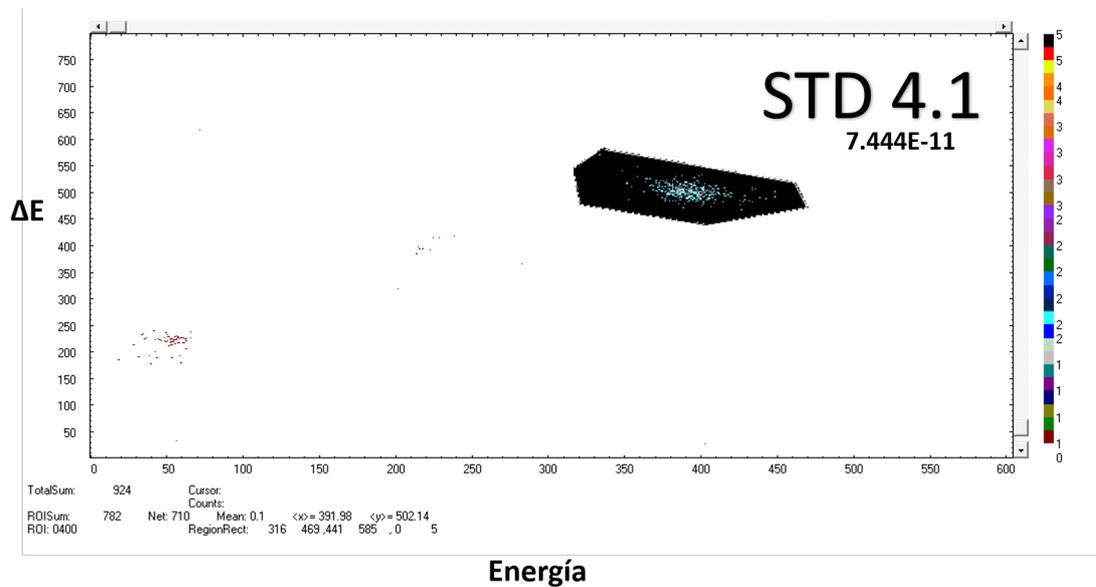
Los parámetros descritos en las secciones previas son ajustados con base en la información que se tiene de éstos en la última medición del isótopo de interés, o bien, por los parámetros aproximados proporcionados por la empresa proveedora del sistema AMS, y haciendo uso de los blancos de sintonización, para cada elemento, como se describió en la sección 2.2.2

Una vez sintonizado el sistema, se introduce un cátodo que contenga el estándar de referencia con un valor nominal conocido del cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  (STD 5.1) o  $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$  (STD 4.1), según sea el caso. Para el caso del Be, este material permite verificar la separación de  $^{10}\text{Be}$  y su isóbaro  $^{10}\text{B}$ . En la Figura 4.6 se presenta un espectro donde son observadas dos regiones principales, la de la izquierda corresponde a las detecciones de  $^{10}\text{B}$  y la de la derecha a las de  $^{10}\text{Be}$ ; un espectro como el mostrado en esta figura, con las regiones muy bien determinadas y separadas, indica una correcta separación de estos isótopos. En general, el material estándar proporciona información sobre el correcto proceso de medida al comparar el valor del cociente isotópico provista por el sistema y el valor nominal (ver sección 2.2.2).

Por su parte, el espectro de un estándar de referencia de Al tiene una apariencia como la mostrada en la Figura 4.7, el polígono negro representa la zona donde deberán localizarse los eventos de  $^{26}\text{Al}$  y los puntos azules representan las detecciones. Como se puede observar, éste difiere del espectro del Be ya que sólo se aprecia una zona muy bien determinada, esto se debe a que el principal interferente del  $^{26}\text{Al}$  es su isóbaro, el  $^{26}\text{Mg}$ , pero este núcleo es eliminado desde la fuente de iones ya que no produce iones negativos y, por lo tanto, no alcanza el sistema de detección.



**Figura 4.6:** Espectro de detección de  $^{10}\text{Be}$  (derecha) y  $^{10}\text{B}$  (izquierda) para el estándar de referencia STD 5.1.



**Figura 4.7:** Espectro de detección de  $^{26}\text{Al}$  para el estándar de referencia STD 4.1.

Por otro lado, los blancos de sintonización también contribuyen para asegurar que la medición se lleva a cabo de buena forma, ya que las detecciones en ellos deben ser mínimas. En las Figuras 4.8 y 4.9 se muestran los espectros para blancos de Be y Al, respectivamente.

Cuando los espectros de los estándares de referencia, sus cocientes isotópicos y los espectros de los blancos cumplen con los criterios descritos, se procede a la medición de las muestras de interés.

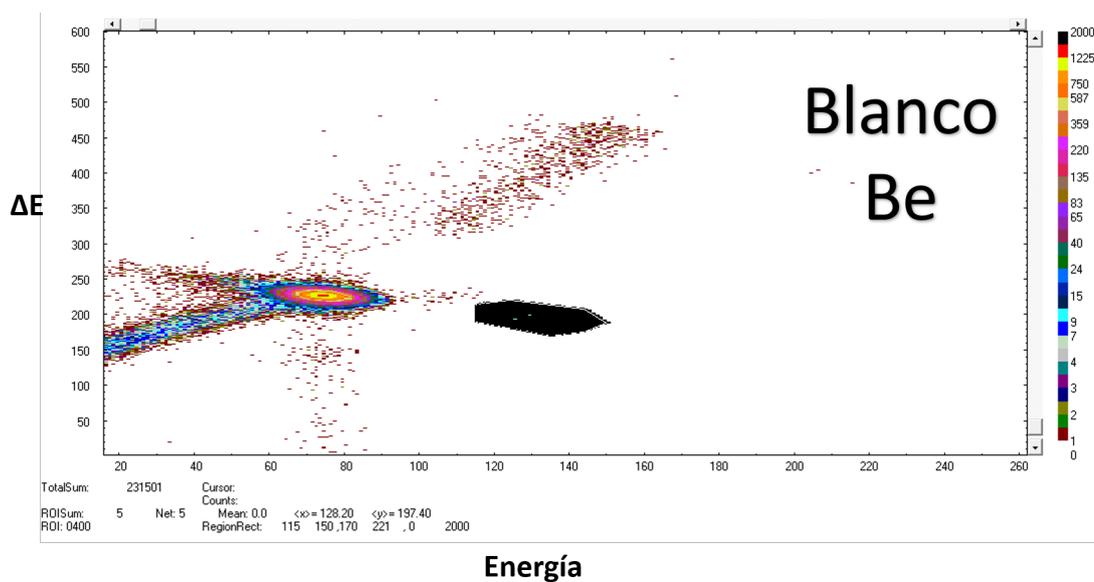


Figura 4.8: Espectro de detección de  $^{10}\text{Be}$  para un blanco de este elemento.

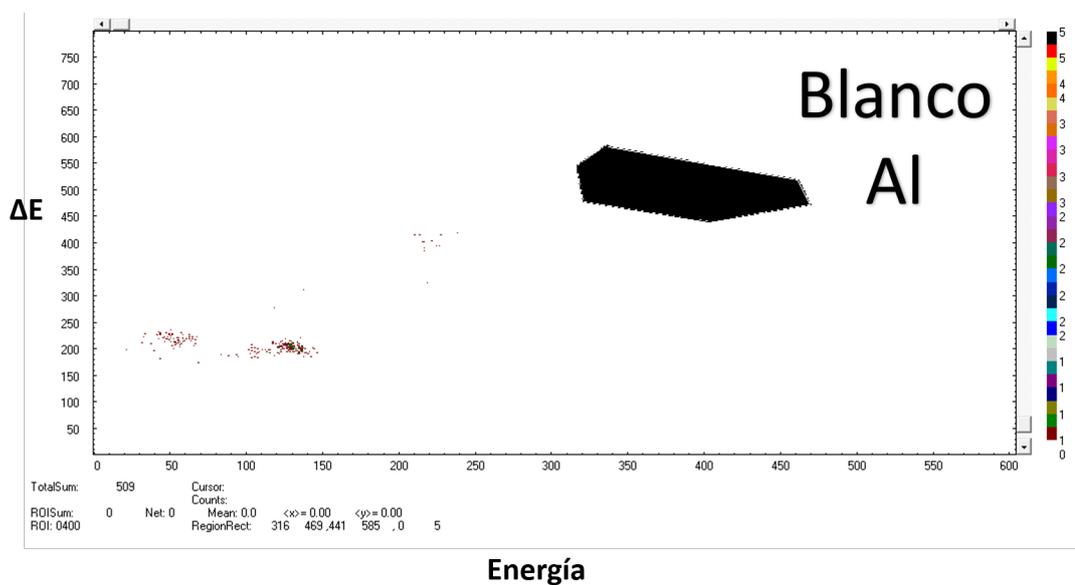


Figura 4.9: Espectro de detección de  $^{26}\text{Al}$  para un blanco de este elemento.

## Resultados y discusión

---

### 5.1. Blancos de Al mezclados con diferentes metales

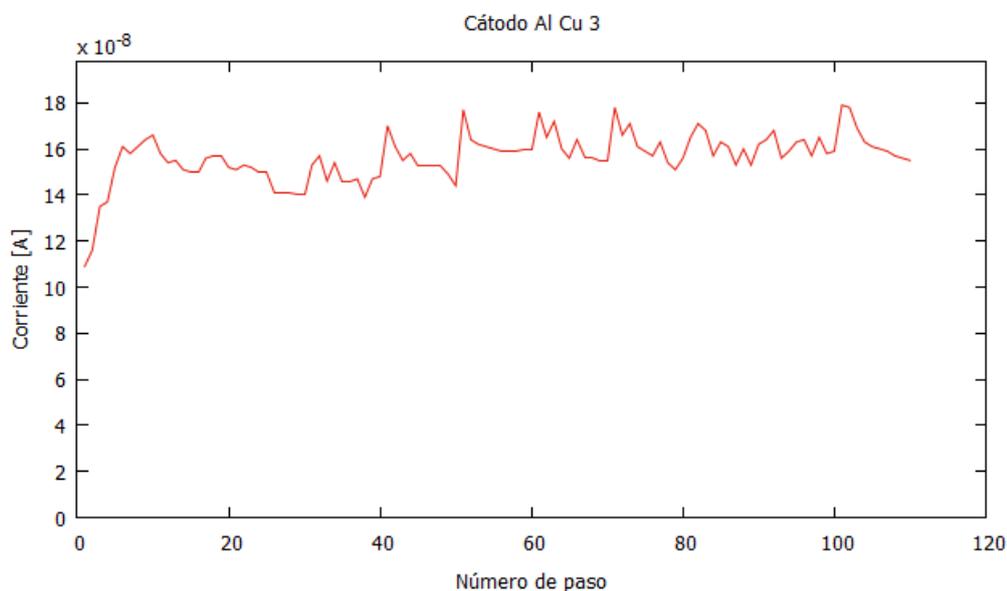
En esta parte del análisis, la atención es puesta en el comportamiento de la corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos de 30 segundos). Para cada metal (Cu, Fe, Ag y Nb) se prensaron tres cátodos con la mezcla, para su posterior medición en el sistema AMS. En las Figuras 5.1, 5.2, 5.3, 5.4 se presenta una gráfica representativa para cada caso. El comportamiento esperado en estas gráficas es que la corriente vaya en aumento en los primeros pasos de la medición y posteriormente llegue a una zona de estabilidad que se verá reflejada con una corriente que no presente cambios (aumentos o caídas abruptas).

Para cada mezcla se obtuvieron tres gráficas, correspondientes a cada cátodo. Con respecto a las obtenidas para el caso del Cu, se tuvo un comportamiento anómalo en dos de ellas, en el sentido que la corriente aumenta en los primeros pasos pero luego ocurre una disminución significativa y se mantiene abajo en la mayor parte de la medición; por ello, sólo se ha tomado en cuenta los datos de la gráfica presentada, para llevar a cabo el análisis. Por su parte las gráficas con la mezcla de Fe, presentan un comportamiento similar entre ellas, por lo que se tomarán en cuenta las tres series de datos. En el caso de la mezcla con Ag, los datos de corriente arrojados para uno de los cátodos son constantes y con un valor cuatro órdenes de magnitud menor a lo esperado ( $\sim 10^{-11}$  A), esto podría deberse a que el cátodo utilizado no era apto para realizar la medición; por esta razón también se ha descartado para este análisis. Finalmente, en las tres gráficas correspondientes a la mezcla con Nb se observa un comportamiento más repetitivo y también se considerarán las tres.

En un primer momento, considerando las gráficas presentadas, es posible observar que las mezclas con Fe y Nb son las que presentan cambios más significativos en la corriente durante la medida, además que los valores que alcanzan son menores que los obtenidos para Cu o Ag. Esto quiere decir que el proceso de ionización en la fuente de

iones es más eficiente al mezclar Al con Cu y Ag, que con Fe y Nb.

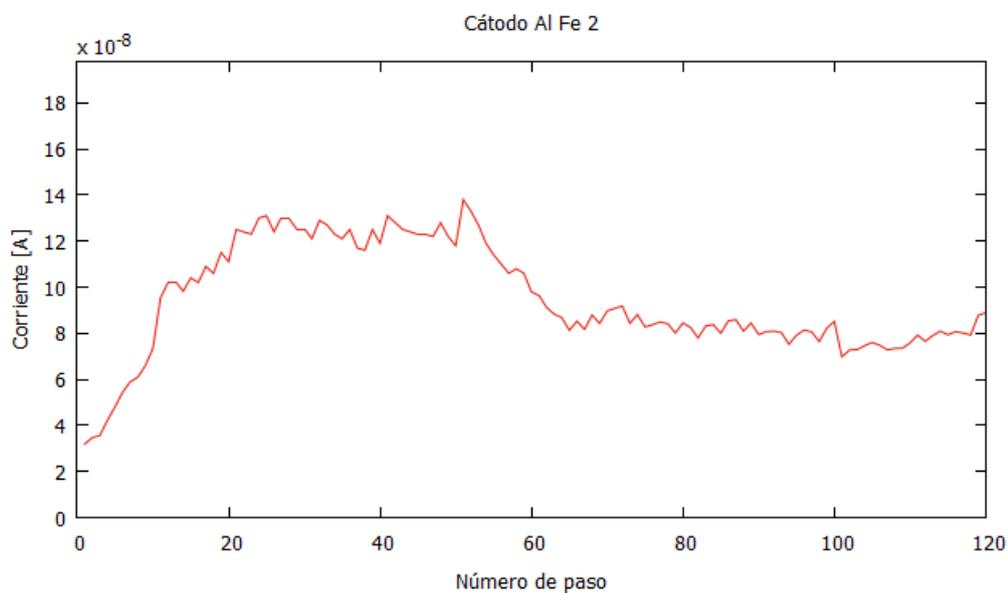
A partir de los datos arrojados por el sistema AMS, para el único cátodo de la mezcla Al-Cu que se tomará en cuenta, se tiene una corriente promedio,  $\bar{i}=1.58\times 10^{-7}$  A con una desviación estándar correspondiente,  $\sigma_i=8.42\times 10^{-9}$ . Por otro lado, en el caso de la mezcla Al-Ag, son dos cátodos los que se toman en consideración, por lo que se obtiene el promedio de cada serie de datos y, posteriormente, se tomará el promedio de los dos valores obtenidos; de esta manera, la corriente promedio es  $\bar{i}=1.63\times 10^{-7}$  A, con desviación estándar  $\sigma_i=8.76\times 10^{-9}$ .



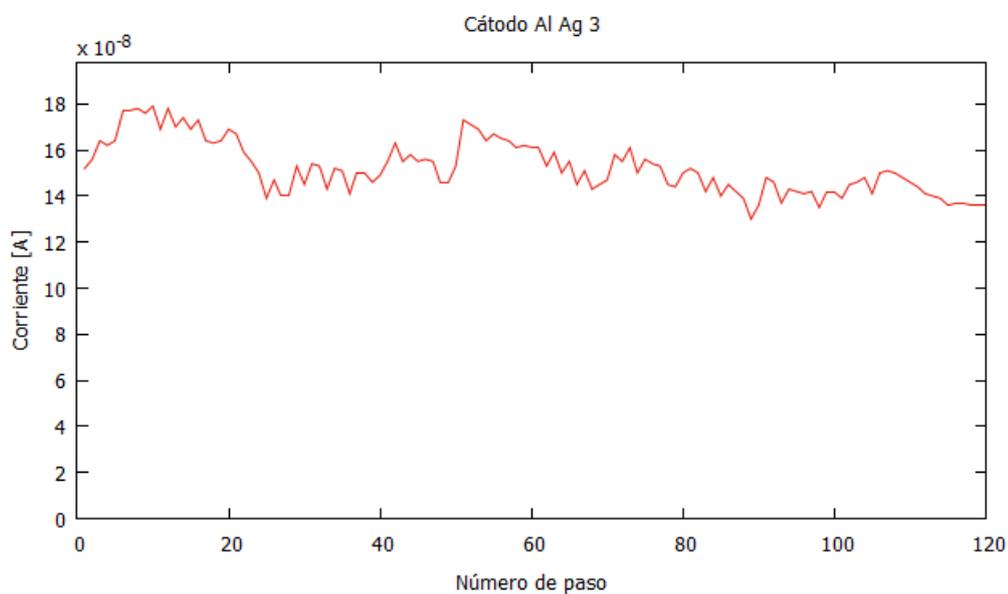
**Figura 5.1:** Corriente del haz de Al a lo largo de la medida (110 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Cu.

De acuerdo con estos promedios, notamos que la diferencia es muy pequeña por lo que, para precisar si existe una diferencia importante entre el uso de ambos metales, se llevó a cabo un análisis de varianza (ANOVA) entre los datos de las corrientes a lo largo de la medida de cada metal; el programa utilizado para hacer este análisis fue OriginPro 8. Este análisis dio como resultado que el valor del estadístico  $F$  es 1.04675 que el programa traduce en que no existe diferencia significativa entre ambas series de datos, en un nivel de significancia de 0.05.

Con los resultados previamente obtenidos, es posible decir que, si bien la corriente promedio que se presenta con la mezcla Al-Ag es ligeramente mayor que con la mezcla Al-Cu, no se presenta una diferencia significativa en los resultados al usar alguno de estos metales como material conductor. Además, considerando las desviaciones estándar

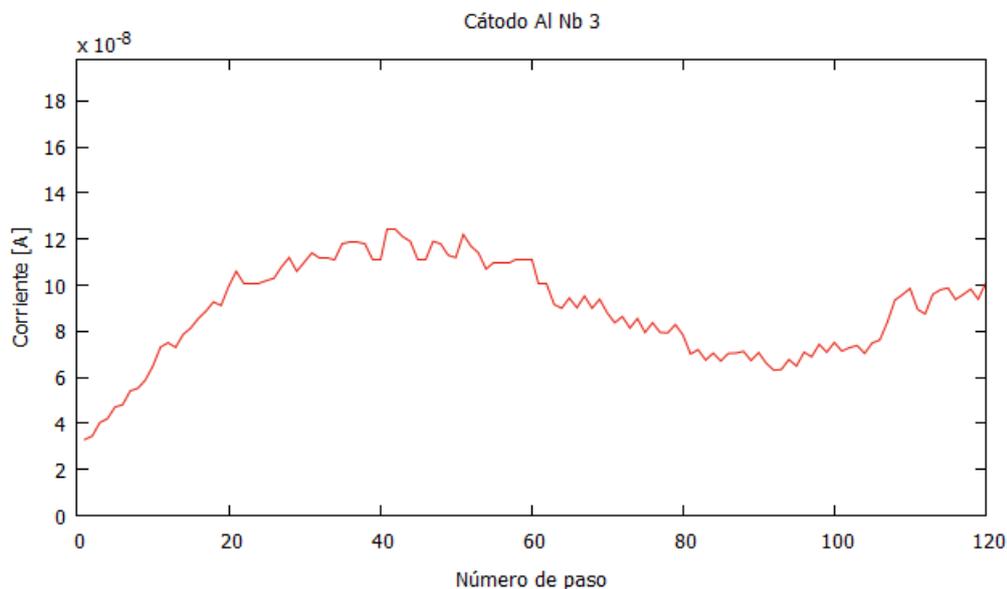


**Figura 5.2:** Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Fe.



**Figura 5.3:** Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Ag.

obtenidas, se determina que la corriente del haz de Al es más estable al mezclarlo con Cu. Sin embargo, para tener la seguridad que este es el comportamiento, es necesario



**Figura 5.4:** Corriente del haz de Al a lo largo de toda la medida (120 pasos) en el sistema AMS, para la mezcla Al-Nb.

hacer más repeticiones de este estudio debido a que dos cátodos con la mezcla Al-Cu y uno con Al-Ag no pudieron ser tomados en cuenta en este análisis.

Las mediciones de Al en el LEMA, incluyendo otras mediciones de este estudio, se han hecho utilizando Cu, por lo que se concluye que estas mediciones se han realizado con la mejor eficiencia de ionización en la fuente de iones (comparado con Fe y Nb), que implica una mayor corriente y, además, presenta más estabilidad comparándola con la presentada en la mezcla Al-Ag. Por esta razón, se recomienda seguir usando este metal en futuras mediciones.

Además, este análisis puede ser comparado con el estudio de Roy Middleton [31], donde caracteriza la producción de iones negativos de varios elementos (entre ellos Al), para la inyección en un acelerador tándem. En este trabajo, se utiliza aluminio metálico y óxido de aluminio ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Los cátodos son preparados a partir de alambres de alta pureza (disponibles comercialmente), sin añadir material acarreador. Se encuentra que, para el aluminio metálico, se alcanza una meseta de corriente entre 6 y 8  $\mu\text{A}$  y para el óxido de aluminio de 1 a 2  $\mu\text{A}$ . Los cátodos contienen alrededor de 6 mg de material.

Las corrientes alcanzadas en el estudio de Middleton son mayores que las obtenidas en este trabajo. Sin embargo, es importante notar las diferencias de ambos análisis: las especies son distintas, la cantidad de Al contenido en los cátodos es menor en este caso, y en el primero se utiliza un material altamente puro mientras que aquí no se presenta

esa pureza. Se debe poner principal atención en esta última diferencia, ya que, para el caso de muestras naturales, éstas que llevan consigo una gran variedad de elementos.

Por lo anterior, se pueden sugerir las siguientes modificaciones en el procesamiento de las muestras:

- Realizar las medidas en el AMS sin mezclar el  $\text{Al}_2\text{O}_3$  con un material acarreador.
- Extraer el Al en forma de  $\text{Al}_2\text{O}_2$  y realizar el estudio mezclando con los diferentes acarreadores y sin mezclar. La extracción de Al metálico resulta más compleja cuando se trata de muestras naturales, ya que este elemento siempre se encuentra presente formando moléculas con otros elementos (Si, H, entre otros) o en redes metálicas de óxidos, por lo que se tendría que llevar a cabo una caracterización de las especies que forma y, posteriormente, evaluar si es posible su extracción en su forma metálica.
- Aumentar la cantidad de Al colocada en el cátodo.

## 5.2. Material de referencia estándar 1648a

Para analizar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia estándar 1648a, fueron empleadas las dos técnicas de extracción descritas en las secciones 4.2.1 y 4.2.2, con el objetivo de poder determinar si existe alguna diferencia en la concentración obtenida por cada método. Como se mencionó anteriormente, la diferencia principal entre estos métodos es el uso de la tercera columna encargada de purificar el Be, que en el método de Auer [7] no se aplica.

Las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  obtenidas para este material se muestran en la Tabla 5.1. Como se puede apreciar, todos los valores y desviaciones estándar coinciden en el mismo orden de magnitud.

ID	Concentración [átomo/g]	Incertidumbre	Método
NT1	$6.45 \times 10^8$	$3.76 \times 10^5$	1
NT2	$6.73 \times 10^8$	$3.88 \times 10^5$	1
NT3	$6.44 \times 10^8$	$3.67 \times 10^5$	1
NT4	$6.28 \times 10^8$	$3.57 \times 10^5$	1
NT5	$7.05 \times 10^8$	$4.00 \times 10^5$	1
ABS1	$9.64 \times 10^8$	$4.25 \times 10^5$	2
ABS2	$7.93 \times 10^8$	$3.51 \times 10^5$	2
ABS3	$7.38 \times 10^8$	$3.25 \times 10^5$	2
ABS4	$7.37 \times 10^8$	$3.25 \times 10^5$	2
ABS5	$6.29 \times 10^8$	$2.77 \times 10^5$	2
ABS6	$7.69 \times 10^8$	$3.40 \times 10^5$	2

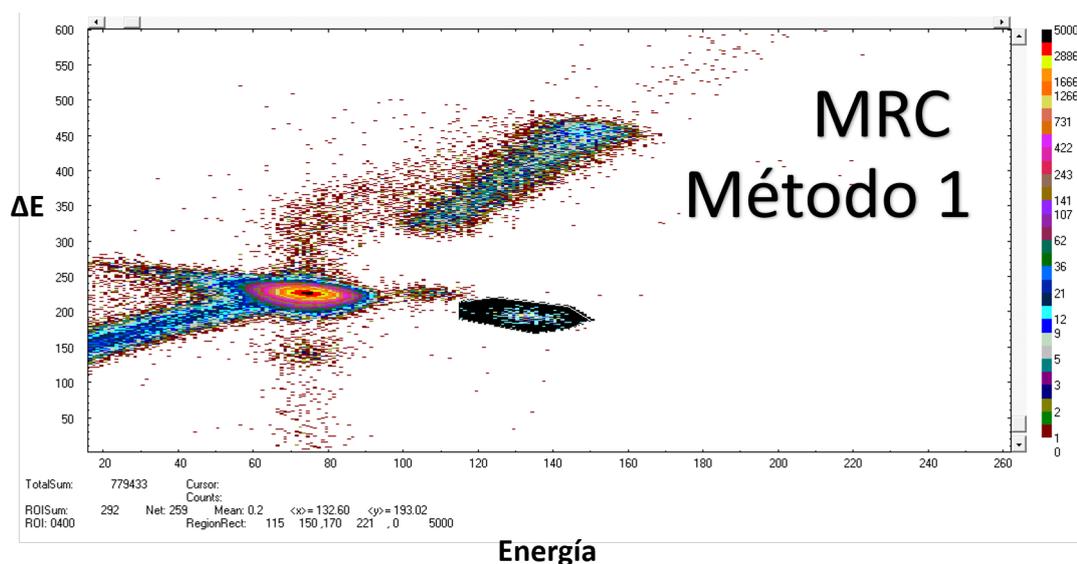
**Tabla 5.1:** Concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia estándar NIST 1648a, obtenidas por dos métodos de extracción diferentes

El método 1 da como resultado una concentración promedio de  $^{10}\text{Be}$  de  $(6.58 \pm 0.30) \times 10^8$  átomos/g. Por su parte, el método 2 nos arroja una concentración de  $(7.72 \pm 1.10) \times 10^8$  átomos/g.

Para poder establecer si existe alguna diferencia significativa entre ambos métodos, también se realizó un análisis de varianza (ANOVA) en OriginPro 8, con las concentraciones calculadas. El valor del estadístico  $F$ , para este caso, fue de 4.88076, lo que significa que los valores obtenidos con ambos métodos no presentan diferencias significativas, en un nivel de significancia de 0.05.

También es posible hacer una comparación de estos métodos considerando los espectros de las muestras. En las Figuras 5.5 y 5.6 se presentan los espectros de  $^{10}\text{Be}$  correspondientes a muestras de material de referencia estándar procesadas con ambos métodos, en ellas podemos observar que el espectro de la muestra procesada con el método 2 es más limpio que el de la procesada con el método 1. Lo anterior puede significar que la extracción radioquímica usando el método 2 elimina interferentes de manera más eficiente que el método 1, considerando que el método 2 contiene un paso para la eliminación del B, previo a la elución de Be y Al (ver Figura 4.3). Para corroborar este hecho, en la Figura 5.7 se muestra el espectro de una muestra con la elución del B eliminado con el método 2, se puede observar que la zona del B tiene una mayor afluencia de cuentas que en los espectros previos y las cuentas de Be en la zona de interés son mínimas (ROISum=11). Con lo anterior, se asegura que el paso de

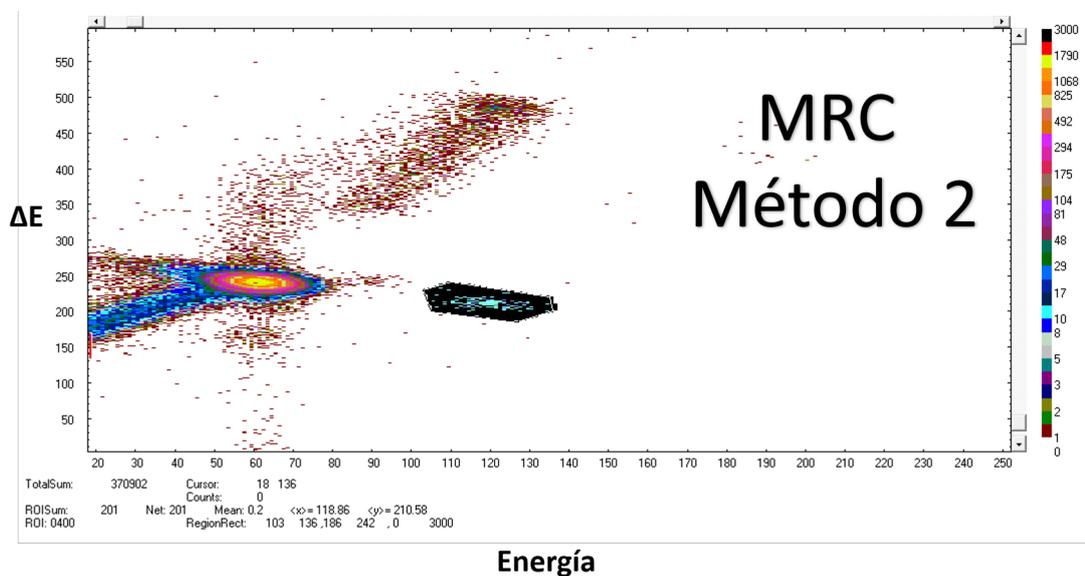
eliminación de B, en el método 2, funciona de forma correcta sin pérdidas de Be. El espectro menos limpio del método 1 podría deberse a que su proceso no se llevó a cabo con los debidos cuidados, para asegurar esto, se tendrían que llevar a cabo más repeticiones.



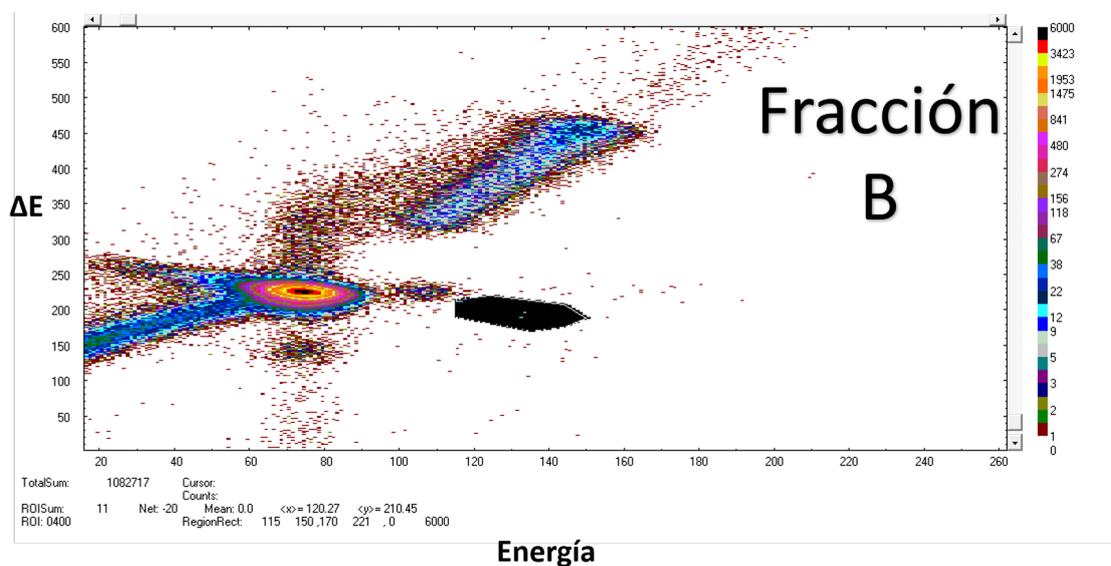
**Figura 5.5:** Espectro de  $^{10}\text{Be}$  correspondiente a una muestra de material de referencia estándar procesada con el método 1.

Considerando los resultados previos, al no existir diferencia significativa en los cálculos de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  entre ambos métodos empleados y en vista que el método 2 elimina una fracción importante de B sin pérdidas de Be, es posible tomar la decisión de extraer el Be, de las muestras que se deseen analizar en un futuro, mediante este método, lo que implica, a su vez, el ahorro de reactivos, minimizando los tiempos de preparación y la generación de residuos. Más aún, este estudio contribuye con el desarrollo de la estandarización del proceso radioquímico para la extracción de Be para su medición en el LEMA, ya que aún se están sentando las bases para obtener un protocolo que garantice la extracción eficaz del Be en muestras de diferentes matrices.

Considerando la desviación estándar del valor promedio de la concentración, obtenido en cada método, se puede concluir que no hay una diferencia importante entre ellas. De esta forma, es posible decir que se ha podido determinar por primera vez la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia estándar NIST 1648a. Recordemos que este elemento aún no se encuentra referenciado en este material. La repetición del cálculo de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en este material empleando un mayor número de muestras, proporcionará un valor más certero de ésta. A su vez, implicará contar con un material con un valor conocido de  $^{10}\text{Be}$ , lo que resulta importante en la determinación de  $^{10}\text{Be}$  en aerosoles atmosféricos ya que no se cuenta con materiales de referencia.



**Figura 5.6:** Espectro de  $^{10}\text{Be}$  correspondiente a una muestra de material de referencia estándar procesada con el método 2.



**Figura 5.7:** Espectro de la elución correspondiente al paso de la eliminación de B en el método 2.

### 5.3. Material particulado PM<sub>10</sub> colectado en Iztapalapa

Los objetivos de analizar el material particulado PM<sub>10</sub> son proporcionar información acerca del efecto que tiene el portador de <sup>9</sup>Be en el estudio de muestras pequeñas, y conocer la concentración de los radioisótopos cosmogénicos de Be y Al presentes en este material. En la Tabla 5.2 se presentan las muestras utilizadas en este análisis, incluyendo la masa de la alícuota tomada y la cantidad de material portador añadida.

ID	Tipo de muestra	Masa de la alícuota (g)	Cantidad de material portador de <sup>9</sup> Be ( $\mu$ l)
M1	Aerosol I01	1.00	250
M2	Aerosol I01	0.75	250
M3	Aerosol I01	0.50	250
M5	Aerosol I01	0.25	150
M6	Aerosol I01	0.25	100
1a	Aerosol I03	1.00	150
2a	Aerosol I03	0.75	150
3a	Aerosol I03	0.50	150
1b	Aerosol I06	0.75	150
2b	Aerosol I06	0.25	100

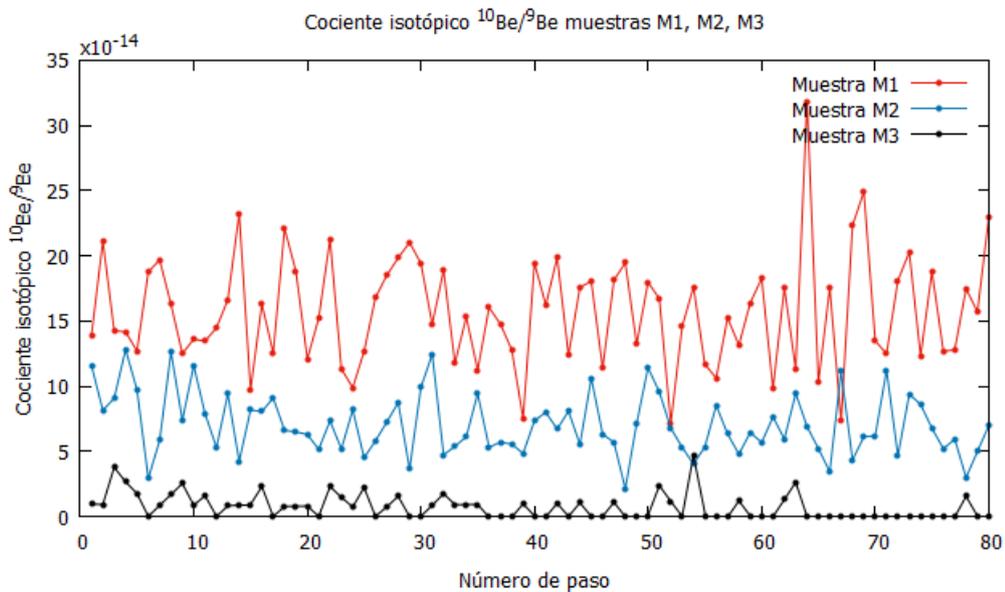
**Tabla 5.2:** Masa de las alícuotas, tomadas del material particulado colectado en Iztapalapa, y la cantidad de material portador de <sup>9</sup>Be añadido.

Para realizar una comparación de lo que ocurre con muestras de distintas masas pero con la misma cantidad de carrier adicionado, se analizaron las muestras M1, M2, M3, 1a, 2a y 3a donde las primeras tres son tomadas del filtro I01 y las demás corresponden al I03 (ver sección 4.1.2). Y para comparar lo que sucede al tener la misma masa pero variar la cantidad de portador añadido, se estudiaron las muestras M5, M6, 1a y 1b. La normalización de los cocientes isotópicos <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be, arrojados por el sistema AMS, se realizó utilizando el material estándar STD 5.1, cuyo valor de cociente isotópico nominal es <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be=2.71×10<sup>-11</sup>, con un valor promedio medido de (1.52±0.01)×10<sup>-12</sup> (5.6 % del valor nominal).

En la Figura 5.8 se presentan los cocientes isotópicos <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be obtenidos durante la medición (80 pasos de 30 s) de las muestras M1, M2 y M3 con masas de 1.00 g, 0.75 g y 0.50 g, respectivamente. A partir de la gráfica, se observa que el valor cociente isotópico decrece conforme disminuye la masa de la muestra. Este comportamiento es de esperarse considerando que, conforme la masa disminuye, también lo hace la cantidad de <sup>10</sup>Be contenida en la muestra, mientras que la cantidad de portador de <sup>9</sup>Be se mantiene constante (250  $\mu$ g). Además, es posible notar que para la muestra con masa más pequeña (M3), se presentan varios pasos donde el valor del cociente isotópico es cero.

Para las muestras 1a, 2a y 3a, el comportamiento del cociente isotópico es similar al mencionado previamente. Se encuentra que, para la muestra con menor masa (3a), existen más pasos con cociente cero (pues la muestra se consume más rápido) y, además, presenta una mayor inestabilidad comparado con los resultados para las muestras 1a y 2a.

Recordando que la concentración de  $^{10}\text{Be}$  se calcula a partir del cociente isotópico (sección 2.2.3), es importante notar que el cálculo de esta concentración, en este caso, puede variar a pesar de tratarse del mismo filtro.



**Figura 5.8:** Cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  durante el proceso de medida con el sistema AMS, para las muestras M1, M2 y M3.

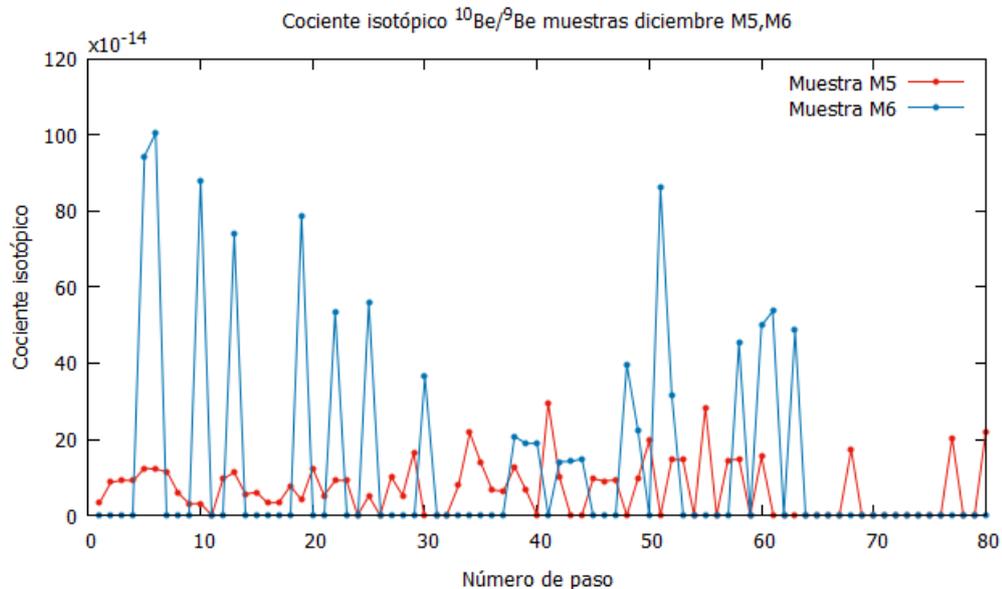
El cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  obtenidos para las muestras M1, M2, M3, 1a, 2a y 3a se muestran en la Tabla 5.3. Se observa que tanto el cociente isotópico normalizado como la concentración de  $^{10}\text{Be}$  decrecen conforme la masa disminuye, resultados consistentes con lo observado anteriormente en la Figura 5.8 para los cocientes isotópicos sin normalizar. Como se muestra en la Tabla 5.2, las muestras M1, M2 y M3 corresponden al filtro I01 y las muestras 1a, 2a, 3a al I03, de esta forma, se tiene que las muestras tomadas de la misma fuente presentan valores de cociente isotópico y concentración de  $^{10}\text{Be}$  distintos.

Por otro lado, en la Figura 5.9 se presenta el cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  a lo largo de toda la medida de las muestras M5 y M6. Es posible notar que el cociente isotópico

de la muestra con menor cantidad de material portador añadido (M6) es más inestable y presenta una mayor cantidad de valores nulos que la muestra M5, durante la medición. Además, al analizar la corriente del haz, se encuentra que el de la muestra M5 es mayor.

Muestra	Masa [g]	Cociente isotópico <sup>10</sup> Be/ <sup>9</sup> Be normalizado (10 <sup>-14</sup> )	Concentración <sup>10</sup> Be [10 <sup>5</sup> átomo/g]	Concentración <sup>10</sup> Be [10 <sup>3</sup> átomos/m <sup>3</sup> ]
M1	1.00	279.4±45.4	6556.7±3.8	36.2±2.4
M2	0.75	125.0±20.5	3779.8±2.2	20.9±1.3
M3	0.50	14.34±2.89	3355.3±0.4	1.85±0.02
1a	1.00	869.1±81.7	8468.4±3.7	50.0±6.79
2a	0.75	84.57±11.97	1067.5±0.5	6.30±0.01
3a	0.50	35.48±7.99	641.73±0.30	3.790±0.004

**Tabla 5.3:** Cociente isotópico <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be (normalizado) y concentración de <sup>10</sup>Be de las muestras M1, M2, M3, 1a, 2a y 3a de los filtros I01 e I03, a las cuales se les ha añadido la cantidad de material portador pero variando la masa de las mismas.



**Figura 5.9:** Cociente isotópico <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be durante el proceso de medida con el sistema AMS, para las muestras M5,y M6.

En la Tabla 5.4, se presentan el cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  normalizado y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  para las muestras M5, M6, 1b y 2b. En ella se observa que el cociente isotópico y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  aumentan cuando la cantidad de portador disminuye. Este comportamiento se debe a que se conserva la masa de la muestra (para los casos M5 y M6), lo que implica conservar la cantidad de  $^{10}\text{Be}$ , y se disminuye la cantidad de  $^9\text{Be}$ , puesto que esta última es inversamente proporcional al cociente isotópico y éste, a su vez, es directamente proporcional a la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Para el caso de las muestras 1b y 2b, la masa también varía (ver Tabla 5.2), sin embargo, se observa que el efecto debido al cambio en la cantidad de portador añadido es predominante sobre el comportamiento descrito en las muestras con masas diferentes y misma porción de portador.

Muestra	Portador $^9\text{Be}$ [ $\mu\text{g}$ ]	Cociente isotópico $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ normalizado ( $10^{-14}$ )	Concentración $^{10}\text{Be}$ [ $10^5$ átomo/g]	Concentración $^{10}\text{Be}$ [ $10^3$ átomos/ $\text{m}^3$ ]
M5	150	$126.2 \pm 23.2$	$5522.4 \pm 3.6$	$31.85 \pm 0.01$
M6	100	$222.2 \pm 56.5$	$8049.4 \pm 4.7$	$42.14 \pm 0.07$
1b	150	$298.7 \pm 28.9$	$3231.0 \pm 1.5$	$31.24 \pm 2.70$
2b	100	$641.1 \pm 78.4$	$15614 \pm 7$	$145.1 \pm 10.4$

**Tabla 5.4:** Cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  (normalizado) y concentración de  $^{10}\text{Be}$  de las muestras M5, M6, 1b, 2b, las cuales tienen una variación en la cantidad de portador de  $^9\text{Be}$  añadida.

Por lo encontrado en este análisis sobre muestras de material particulado, se observa que la cantidad de portador sí afecta en el cálculo de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  cuando el tamaño de las muestras de estudio es pequeño. Por esta razón, es necesario ser cuidadoso y habría que encontrar la cantidad idónea de portador cuando se trata del estudio de muestras con estas características.

Respecto al segundo objetivo con el análisis de las muestras de Iztapalapa, la Figura 5.10 muestra las concentraciones de  $^{10}\text{Be}$  (en átomos/ $\text{m}^3$ ) en el periodo analizado. Se observa que los valores no presentan una variación significativa, considerando las barras de error, este comportamiento se podía esperar ya que la diferencia entre cada resultado es de unos pocos días. El valor promedio de estos datos es  $(2.85 \pm 1.03) \times 10^4$ , valor que representa la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en Iztapalapa durante el tiempo de muestreo.

La Tabla 5.5 muestra una comparación entre los resultados obtenidos para la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en Iztapalapa y los encontrados en un estudio similar en Sevilla, España, durante el mes de noviembre. El valor mostrado para México corresponde al

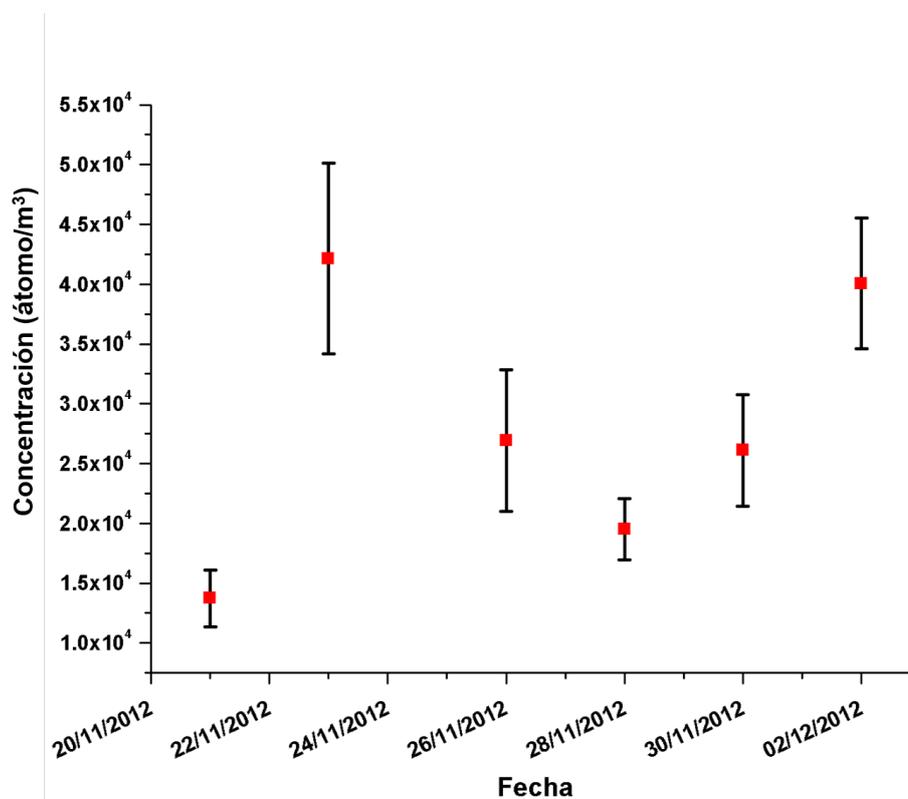


Figura 5.10: Concentración de  $^{10}\text{Be}$  durante el tiempo de muestreo, en la zona de recolección.

promedio de las concentraciones obtenidas durante el periodo de muestreo, encontrando que el valor de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  (átomos/m<sup>3</sup>) es consistente entre ambos estudios, del orden de  $10^4$ .

Fecha	Lugar	Concentración [10 <sup>3</sup> átomos/m <sup>3</sup> ]
Noviembre 2015	España	16.6±1.0
Noviembre 2012	México	25.7±0.2

Tabla 5.5: Comparación del cociente isotópico  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  entre el estudio de Padilla [4] y las muestras analizadas en este trabajo.

Es fundamental destacar que la medición de  $^{26}\text{Al}$  en muestras de aerosoles, no ha podido llevarse a cabo con éxito en el separador isotópico del LEMA, hasta ahora. Esto último debido a que aún se encuentra en desarrollo la estandarización del proceso

de extracción radiquímica de Al de las muestras y no se ha logrado extraer de forma eficiente. Sin embargo, en este trabajo, se incrementó el tamaño de las alícuotas tomadas del estándar de referencia y el avance que se alcanzó fue haber detectado cuentas durante el proceso de medida, como se muestra en la Figura 5.11 donde la suma de cuentas en la región de interés (*ROI*Sum) contiene 5 cuentas. Este hecho no se había logrado desde los primeros intentos realizados. De esta forma, se ha progresado en el desarrollo del método para conseguir la extracción de <sup>26</sup>Al, en material particulado, para su posterior medición en el sistema AMS de este laboratorio. Se espera que al incrementar aún más el tamaño de las alícuotas y con más experimentos de optimización de corriente, se logre esta medición.

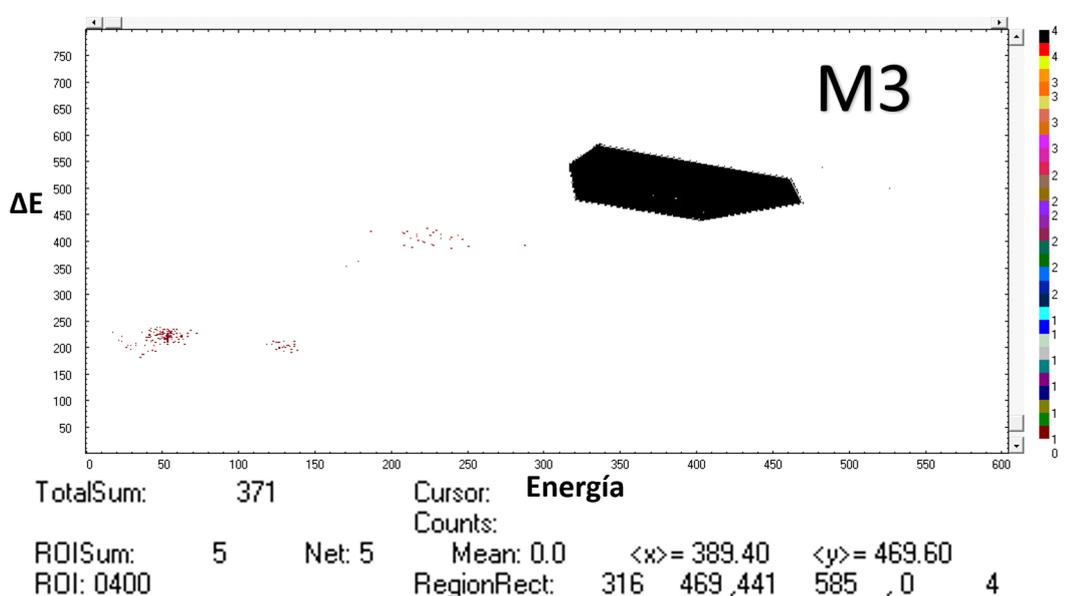


Figura 5.11: Espectro de la muestra M3 donde se registran 5 cuentas de <sup>26</sup>Al

---

## Capítulo 6

# Conclusiones y recomendaciones

---

La calibración del separador isotópico del LEMA fue realizada de manera exitosa para la medición de  $^{10}\text{Be}$  en muestras de material de referencia estándar NIST 1648a, blancos de Al y de material particulado  $\text{PM}_{10}$ , analizadas en este trabajo.

Se cuantificó con éxito, por primera vez, la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en el material de referencia estándar NIST 1648a, mediante dos métodos de extracción radioquímica, obteniendo una concentración promedio de  $^{10}\text{Be}$  de  $(6.58 \pm 0.30) \times 10^8$  átomos/g con el método 1 y de  $(7.72 \pm 1.10) \times 10^8$  átomos /g con el método 2. Además, se concluye que no existe diferencia significativa entre el uso de estos dos métodos para el cálculo de la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Con el método 2 se logró eliminar los interferentes de forma más eficiente, sin embargo, es recomendable que se hagan más mediciones utilizando el método 1 para poder dar una aseveración más fuerte. De esta forma, la extracción de Be, para su posterior medición en el separador isotópico, podría realizarse utilizando menos reactivos y ahorrando tiempos de procesamiento, eliminando interferentes eficientemente sin pérdidas de  $^{10}\text{Be}$ . Se recomienda llevar a cabo más mediciones de este material para tener un material con un contenido de  $^{10}\text{Be}$  perfectamente caracterizado y usarlo como un estándar en futuras mediciones para tomar en cuenta el fraccionamiento isotópico.

Con el análisis sobre el efecto que tiene el material portador de  $^9\text{Be}$  en el estudio de muestras pequeñas se concluye que la cantidad de portador en muestras pequeñas sí influye en los resultados de concentración de  $^{10}\text{Be}$  de éstas. La concentración de  $^{10}\text{Be}$  disminuye cuando la masa también decrece (conservando la cantidad de portador) y aumenta conforme la cantidad de portador es menor, para alícuotas del mismo filtro. Además, el cociente isotópico presenta mayor inestabilidad conforme el tamaño de la muestra disminuye, principalmente cuando es de 0.25 g.

Se determinó con éxito la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en material particulado  $\text{PM}_{10}$  proveniente de Iztapalapa, al oriente de la Ciudad de México, con un valor promedio de  $(2.85 \pm 1.03) \times 10^4$  átomos/ $\text{m}^3$ . El promedio obtenido durante el mes de noviembre

---

$(2.57 \pm 0.02) \times 10^4$  átomos/m<sup>3</sup> es consistente en orden de magnitud en un estudio similar, en una zona urbana, dando más fuerza a los resultados obtenidos.

Se concluye que con la adición de cobre y plata al Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se obtienen mayores corrientes de haz de Al, sin diferencia significativa entre ambos metales, implicando una mayor eficiencia en el proceso de ionización del Al en la fuente de iones con estos metales (en comparación con Nb y Fe). Además, la corriente presenta mayor estabilidad con la mezcla Al-Cu. Por esta razón, se recomienda continuar utilizando Cu en las mediciones de <sup>26</sup>Al. Se sugiere realizar las mediciones sin añadir material acarreador al Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, extraer Al en la especie Al<sub>2</sub>O<sub>2</sub> para realizar mediciones con y sin materiales acarreadores, e incrementar en la medida de lo posible la cantidad de Al en el cátodo.

La concentración de <sup>26</sup>Al, presente en material particulado, no pudo ser cuantificada debido a que no fue posible extraerlo con éxito de las muestras, para posteriormente, medir el cociente isotópico <sup>26</sup>Al/<sup>27</sup>Al en el separador isotópico del LEMA. Sin embargo, se obtuvieron las primeras cuentas de Al, indicadas en los espectros. Se concluye que es necesario incrementar el tamaño de las alícuotas para llevar a cabo la extracción de <sup>26</sup>Al en muestras de aerosoles y, de esta forma, realizar su medición con éxito.

# Bibliografía

---

- [1] K. P. G. de los Ríos. Caracterización de un sistema AMS para la obtención de concentraciones de radioisótopos cosmogénicos en aerosoles. Master's thesis, Universidad Nacional Autónoma de México, 2018. x, 1, 5, 6, 7, 10, 11, 12, 17, 29
- [2] E. C. Calvo. *Medida de isótopos de plutonio,  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{240}\text{Pu}$ , mediante espectrometría de masas con aceleradores de baja energía*. PhD thesis, Universidad de Sevilla, 2009. x, x, 10, 11, 12, 14
- [3] J. A. Navarro. Determinación de la medida de  $^{14}\text{C}$  por Espectrometría de Masas con Aceleradores, 2014. x, x, x, x, 13, 14, 16, 17
- [4] S. P. Domínguez. *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. xii, 1, 7, 8, 10, 12, 21, 29, 55
- [5] G. Korschinek, A. Bergmaier, T. Faestrermann, U. C. Gerstmann, K. Knie, G. Rugel, A. Wallner, I. Dillmann, G. Dollinger, C. L. von Gostomski, K. Kossert, M. Maiti, M. Poutivtsev, and A. Remmert. A new value for the half-life of  $^{10}\text{Be}$  by Heavy-Ion Elastic Recoil Detection and liquid scintillation counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:187–191, 2010. 1, 6
- [6] M. Auer, D. Wagenbach, E. M. Wild, A. Wallner, A. Priller, H. Miller, C. Schlosser, and W. Kutschera. 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*, 287:453–462, 2009. 1, 8, 9
- [7] M. Auer, W. Kutschera, A. Priller, D. Wagenbach, A. Wallner, and E. Wild. 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 B*, 259:595–599, 2007. 1, 9, 34, 47
- [8] J. Beer, K. McCracken, and R. von Steiger. *Cosmogenic Radionuclides. Theory and Applications in the Terrestrial and Space Environment*. Springer, 2012. 3, 4, 5, 6, 7

- 
- [9] T. J. Dunai. *Cosmogenic Nuclides. Principles, Concepts and Applications in the Earth Surface Sciences*. Cambridge University Press, 2010. 3, 5, 6, 8
- [10] B. R. Martin. *Nuclear and Particle Physics*. John Wiley & Sons, Ltd, 2006. 4
- [11] L. R. McHargue and P. E. Damon. The Global Beryllium Cycle. *Reviews of Geophysics*, 29:141–158, 1991. 5, 6, 7
- [12] S. D. L. Dueñas. Aceleradores, Técnicas de Análisis, Laboratorios del CNA y sus Aplicaciones. 5
- [13] J. K. Willenbring and F. von Blanckenburg. Meteoric cosmogenic Beryllium-10 adsorbed to river sediment and soil: Applications for Earth-surface dynamics. *Earth-Science Reviews*, 98:105–122, 2010. 6, 8
- [14] S. Padilla, J. M. López-Gutiérrez, J. Manjón, R. García-Tenorio, J. A. Galván, and M. G. León. Meteoric  $^{10}\text{Be}$  in aerosol filters in the city of Seville. *Journal of Environmental Radioactivity*, 196:15–21, 2019. 6
- [15] C. Tiessen, D. Bermmerer, G. Rugel, R. Querfeld, A. Scharf, G. Steinhauser, and S. Merchel. Accelerator mass spectrometry (AMS) for beryllium-7 measurements in smallest rainwater samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 319:965–973, 2019. 6
- [16] S. Merchel, W. Bremser, D. L. Bourles, U. Czeslik, J. Erzinger, N.-A. Kummer, L. Leanni, B. Merkel, S. Recknagel, and U. Schaefer. Accuracy of  $^9\text{Be}$ -data and its influence on  $^{10}\text{Be}$  cosmogenic nuclide data. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 298:1871–1878, 2013. 6, 8, 29
- [17] A.-M. Berggren. *Influence of Solar Activity and Environment on  $^{10}\text{Be}$  in Recent Natural Archives*. Uppsala University, 2009. 7
- [18] H. H. Mendoza. *Desarrollo de nuevas técnicas para determinar actínidos en excretas por espectrometría de masas y técnicas radiométricas*. PhD thesis, Universidad Complutense de Madrid, 2011. 9
- [19] D. Fink. AMS-11 in Rome, 2008: Past achievements, current and future trends. *Nucl. Instr. and Meth. B*, 268:1334–1342, 2010. 9
- [20] M. E. O. y Salazar, C. S. Rosales, and E. C. Lomelí. *Espectrometría de Masas con Aceleradores. Laboratorio Nacional*. Universidad Nacional Autónoma de México, 2018. 11, 14, 16, 19, 20, 39
- [21] G. P. Andrade. Estudio de los indicadores del estado de preservación de colágeno de huesos para el análisis de radiocarbono por EMA, 2016. 12, 17
- [22] J. A. Navarro. Corrección numérica de los datos de  $^{14}\text{C}$  por Espectrometría de Masas con Aceleradores: estudio de aerosoles atmosféricos. Master's thesis, Universidad Nacional Autónoma de México, 2018. 12
-

- 
- [23] H. Wollnik. A review on ion optics for mass spectrometers. *Journals of mass spectrometry*, 34:991–1006, 1999. 13
- [24] J. D. Cockcroft and E. T. S. Walton. Experiments with high velocity positive ions.(i) further developments in the method of obtaining high velocity positive ions. *Proceedings of the Royal Society A*, 136:619–630, 1932. 16
- [25] H. Staub, H. Bethe, J. Ashkin, N. F. Ramsey, and K. T. Bainbridge. *Experimental Nuclear Physics*. John Willey & Sons, Inc, 1953. 19
- [26] G. Balco. Converting al and be isotope ratio measurements to nuclide concentrations in quartz. *Documentation-Be-10/26-Al exposure year calculator*, 2006. 21
- [27] C. Solís, V. Gómez, E. Ortíz, E. Chávez, J. Miranda1, J. Aragón, M. A. Martínez, T. Castro, and O. Peralta. AMS  $^{14}\text{C}$  and chemical composition of atmospheric aerosols from Mexico City. *Radiocarbon*, 59:321–332, 2017. 27
- [28] D. P. R. F. Maltez. *Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores*. PhD thesis, Universidad de Buenos Aires, 2016. 29
- [29] M. Ángel Sogorb Sánchez and E. V. Gisbert. *Técnicas analíticas de contaminantes químicos. Aplicaciones toxicológicas, medioambientales y alimentarias*. Díaz de Santos, 2015. 30
- [30] A. R. Gómez. Determinación de  $^{10}\text{Be}$  mediante Espectrometría de Masas con Aceleradores de Baja Energía. Technical report, Universidad de Sevilla. 30, 31
- [31] R. Middleton. *A Negative-Ion Cookbook*. University of Pennsylvania Philadelphia, 1990. 46