

Calibración del ^{125}Sb en
situaciones de equilibrio y
no equilibrio con el $^{125\text{m}}\text{Te}$

L. Rodríguez Barquero

A. Jiménez de Mingo

A. Grau Carles

Toda correspondencia en relación con este trabajo debe dirigirse al Servicio de Información y Documentación, Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas, Ciudad Universitaria, 28040-MADRID, ESPAÑA.

Las solicitudes de ejemplares deben dirigirse a este mismo Servicio.

Los descriptores se han seleccionado del Thesaurus del DOE para describir las materias que contiene este informe con vistas a su recuperación. La catalogación se ha hecho utilizando el documento DOE/TIC-4602 (Rev. 1) Descriptive Cataloguing On-Line, y la clasificación de acuerdo con el documento DOE/TIC.4584-R7 Subject Categories and Scope publicados por el Office of Scientific and Technical Information del Departamento de Energía de los Estados Unidos.

Se autoriza la reproducción de los resúmenes analíticos que aparecen en esta publicación.

Depósito Legal: M-14226-1995

NIPO: 238-97-001-5

ISSN: 1135-9420

Editorial CIEMAT

CLASIFICACIÓN DOE Y DESCRIPTORES

440102

LIQUID SCINTILLATION DETECTORS; RADIOCHEMICAL ANALYSIS;
SCINTILLATION COUNTING; STANDARDIZATION; STABILITY; TELLURIUM 125;
ION EXCHANGE; ANTIMONY 125.

Calibración del ^{125}Sb en situaciones de equilibrio y no equilibrio con el $^{125\text{m}}\text{Te}$

Rodríguez Barquero, L.; Jiménez de Mingo, A.; Grau Carles, A.

34 pp. 12 figs. 7 refs.

Resumen:

Se estudia la estabilidad del ^{125}Sb en los siguientes centelleadores: HiSafe IIITM, Insta-Gel® Plus y Ultima-GoldTM. Puesto que el tiempo necesario para alcanzar el equilibrio con el $^{125\text{m}}\text{Te}$ es relativamente largo (mayor que un año) es difícil garantizar que este efectivamente se ha producido en una muestra dada. En el presente informe se indican las pautas a seguir para la calibración por centelleo líquido de mezclas de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$, así como su separación radioquímica. También se estudia la evolución de la tasa de recuento en el caso de que el rendimiento de la columna no sea del 100%.

Standardization of ^{125}Sb in equilibrium and non-equilibrium situations with $^{125\text{m}}\text{Te}$

Rodríguez Barquero, L.; Jiménez de Mingo, A.; Grau Carles, A.

34 pp. 12 figs. 7 refs.

Abstract:

We study the stability of ^{125}Sb in the following scintillators: HiSafe IIITM, Insta-Gel® Plus and Ultima-GoldTM. Since $^{125\text{m}}\text{Te}$ requires more than one year to reach the secular equilibrium with ^{125}Sb , we cannot be sure, for a given sample, whether equilibrium is reached or not. In this report we present a new procedure that permits one to calibrate mixtures of $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ out of the equilibrium. The steps required for the radiochemical separation of the components are indicated. Finally, we study the evolution of counting rate when column yields are less than 100%.

ÍNDICE

	<u>Página</u>
1. INTRODUCCIÓN	1
2. DESINTEGRACION DEL ^{125}Sb	2
3. METODOS	3
3.1 Estudio del no equilibrio	3
3.1.1 Caso ideal. Rendimiento 100% para la columna	3
3.1.2 Rendimiento de la columna inferior al 100%	5
3.2 Separación de la mezcla $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ mediante el programa MLOG	6
4. PARTE EXPERIMENTAL	7
4.1 Aparatos y reactivos	7
4.2 Separación radioquímica mediante columna de cambio iónico	7
4.3 Preparación de muestras	8
5. RESULTADOS	9
5.1 Estabilidad de las muestras de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ en equilibrio radiactivo y $^{125\text{m}}\text{Te}$	9
5.2 Calibración del $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ por el método CIEMAT/NIST	10
5.3 Estabilidad de las muestras fuera del equilibrio radiactivo	11
6. CONCLUSIONES	12
7. REFERENCIAS	12
TABLAS	14
FIGURAS	21

CALIBRACION DEL ^{125}Sb EN SITUACIONES DE EQUILIBRIO Y NO EQUILIBRIO CON EL $^{125\text{m}}\text{Te}$.

L. Rodríguez Barquero, A. Jiménez de Mingo, A. Grau Carles

Metrología de Radiaciones Ionizantes

1. INTRODUCCION

El antimonio se encuentra en la naturaleza en forma de dos isótopos estables, ^{121}Sb y ^{123}Sb , y de varios radioisótopos como producto de fisión, siendo entre ellos el más abundante el ^{125}Sb . La caracterización y distribución del ^{125}Sb en la vegetación y suelos de zonas cercanas a una planta nuclear de reprocesamiento de combustible se ha efectuado recientemente, determinando su actividad mediante espectrometría gamma (1). Otras investigaciones realizadas en las proximidades de la central nuclear de Chernobyl, han confirmado la contaminación de varios radionucleídos en las cenizas del combustible dispersado, encontrándose entre ellos el ^{125}Sb (2).

Por lo general, la calibración de muestras de ^{125}Sb suele llevarse a cabo por espectrometría gamma, aprovechando la emisión gamma de 428 keV (intensidad 30%). Sin embargo, la coincidencia en el esquema de desintegración de dicha transición con la emisión de 35,49 keV del $^{125\text{m}}\text{Te}$ plantea, en ocasiones, dificultades que contribuyen a aumentar las incertidumbres de la calibración. De esta forma, las incertidumbres de soluciones calibradas pueden situarse en torno al 3%.

La calibración mediante la técnica de centelleo líquido ofrece ventajas indudables. Por un lado, a la eficiencia de recuento, además del ^{125}Sb propiamente dicho, contribuye el estado metaestable $^{125\text{m}}\text{Te}$; de la cual resulta una eficiencia superior al 115% para extinciones moderadas. Por otro lado,

una vez resuelto el problema de la estabilidad de las muestras, la preparación de estas es sencilla y rápida.

La determinación del ^{125}Sb en muestras ambientales hace imprescindible la separación química mediante columna de cambio iónico. Pocas referencias se han encontrado en las que la separación del Sb y Te mediante resina de cambio iónico conduzca a buenos resultados (3-4). Utilizando el ácido oxálico como eluyente y por métodos radioquímicos se obtuvieron datos que confirmaron la complejación de ambos elementos con el oxalato, este resultado unido a los diferentes grados de adsorción de la resina mediante el cambio de pH de la disolución de ácido oxálico determinan una buena separación entre el ^{124}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ (5). Este método fue aplicado en nuestro laboratorio para la separación del $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ y como resultado de dicha separación se indujo el desequilibrio radiactivo entre el ^{125}Sb y el $^{125\text{m}}\text{Te}$, haciéndose imprescindible el estudio de la evolución temporal de la relación de actividades entre el ^{125}Sb y el $^{125\text{m}}\text{Te}$.

La primera dificultad que se plantea cuando se desean conocer las actividades de ^{125}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ en muestras fuera del equilibrio es establecer las cantidades de ácido y portador más adecuadas, que permitan asegurar la estabilidad de la muestra. Debido al crecimiento radiactivo del $^{125\text{m}}\text{Te}$, no resulta fácil afirmar cuando una muestra es estable. Por ello, se pretende estudiar la evolución temporal de muestras de ^{125}Sb y establecer en que casos se produce una desviación de la predicción teórica.

Garantizada la estabilidad de las muestras, nuestro objetivo final fue la calibración simultánea de mezclas de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$. Una vez más, se empleó el método de interpolación-descomposición espectral.

2. DESINTEGRACION DEL ^{125}Sb .

El ^{125}Sb se desintegra emitiendo radiación β^- en múltiples ramas cuyas intensidades relativas más importantes, una vez simplificado el esquema de desintegración, son: 13,5%(95 keV), 5,6%(124,7 keV), 18,1%(130,8 keV), 41,9%(303,4 keV), 7,2%(445,7 keV) y 13,6%(622 keV). De todas estas transiciones (Fig.1) únicamente dos terminan en el estado metaestable $^{125\text{m}}\text{Te}$, una de forma directa (β_6), la otra (β_5) parcialmente, a través de una transición γ . Como consecuencia, únicamente un 23,1% (6) de las desintegraciones del ^{125}Sb terminan en el estado metaestable $^{125\text{m}}\text{Te}$. El estado metaestable $^{125\text{m}}\text{Te}$, por otra parte, se desintegra en una transición gamma doble muy convertida (96% para la transición gamma de 35,49 keV y 100% para la de 109,3 keV). Por tanto el $^{125\text{m}}\text{Te}$, una vez separado,

se puede detectar por centelleo líquido con una eficiencia total de 100%.

3. METODOS

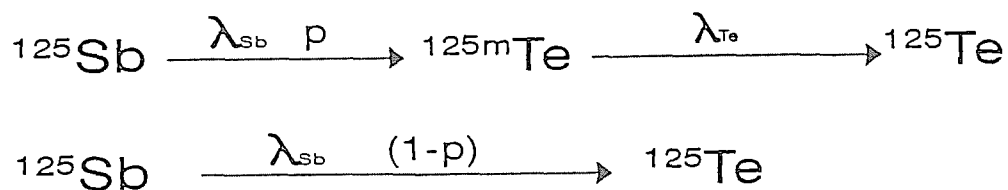
3.1 Estudio del no equilibrio

La estabilidad de las muestras radiactivas cuando los nucleídeos ^{125}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ se encuentran en equilibrio y de las muestras de $^{125\text{m}}\text{Te}$, al seguir un decrecimiento exponencial simple, puede realizarse mediante el cociente $N(t)/\langle N(t) \rangle$. Sin embargo, en el estudio de la evolución temporal de las muestras de ^{125}Sb preparadas inmediatamente después de su elución en la columna de intercambio iónico, la tasa de recuento total, al no seguir la tasa de recuento total un decrecimiento exponencial simple, el análisis de la estabilidad no es tan inmediato. A continuación, se expone el tratamiento detallado del método empleado para estas muestras considerando dos casos diferentes. En el primero, el único radioisótopo presente en la disolución radiactiva utilizada para la preparación de muestras es el ^{125}Sb . En el segundo, la disolución radiactiva contiene una pequeña proporción de $^{125\text{m}}\text{Te}$ mezclado con el ^{125}Sb , como consecuencia de una contaminación en el proceso de elución.

3.1.1 Caso ideal. Rendimiento 100% para la columna.

Resulta preciso tener en cuenta, que aunque la proporción de átomos de ^{125}Sb que se desintegran pasando al estado isomérico $^{125\text{m}}\text{Te}$ sigue siendo, como en el caso de las muestras en equilibrio, de aproximadamente un 25%, el número de desintegraciones del $^{125\text{m}}\text{Te}$ por unidad de tiempo varia hasta alcanzar el equilibrio. Es, por tanto, necesario considerar que el sistema ^{125}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ se comporta como una cadena radiactiva y basar los cálculos en las ecuaciones genéticas que rigen su desintegración.

Para deducir la evolución temporal de las actividades del ^{125}Sb y del $^{125\text{m}}\text{Te}$ nos basaremos en el siguiente esquema:



en el que λ_{Sb} y λ_{Te} son la constante desintegración radioactiva del ^{125}Sb y la probabilidad media de desexcitación por unidad de tiempo para el estado isómero ^{125m}Te respectivamente; p es, en este caso, la fracción de átomos de ^{125}Sb que se desintegran al ^{125}Te .

De esta forma, las ecuaciones que rigen el esquema anterior se pueden expresar como sigue:

$$A_{Sb}(t) = A_{Sb}(0) p e^{-\lambda_{Sb} t} + (1-p) A_{Sb}(0) e^{-\lambda_{Sb} t} = A_{Sb}(0) e^{-\lambda_{Sb} t} = A_{Sb}(0) f(t) \quad (1)$$

$$A_{Te}(t) = A_{Sb}(0) p \frac{\lambda_{Te}}{\lambda_{Te} - \lambda_{Sb}} [e^{-\lambda_{Sb} t} - e^{-\lambda_{Te} t}] = A_{Sb}(0) g(t) \quad (2)$$

Teniendo en cuenta que en centelleo líquido la eficiencia de recuento para ^{125m}Te es 100% se deduce que la tasa de recuento debe variar según:

$$N^{calc}(t) = A_{Sb}(0) [\varepsilon_{Sb} f(t) + g(t)] = A_{Sb}(0) F(t) \quad (3)$$

en la cual ε_{Sb} es la eficiencia de recuento del ^{125}Sb puro para la extinción química de la muestra en la que se desea estudiar la estabilidad. Definimos el tiempo inicial ($t_0=0$), como aquel para el que A_{Te} es cero, correspondiente al instante de la separación química. Se han realizado distintas medidas de la tasa de recuento a diferentes intervalos de tiempo (t_1, t_2, \dots, t_m).

Para comprobar la estabilidad de las muestras se propone para cada medida $N_i(t)$ calcular la tasa de recuento correspondiente a tiempo en que se realizó la primera medida t_1 .

$$N_i(t_1) = \frac{N_i(t)}{F(t)} F(t_1) \quad (4)$$

A continuación, se halla la media:

$$\bar{N}(t_1) = \sum_{i=1}^m \frac{N_i(t_1)}{m} \quad (5)$$

para posteriormente calcular el rendimiento normalizado al valor medio respecto a la media δ_i para cada medida. Es decir:

$$\delta_i = \frac{N_i(t_1)}{\bar{N}(t_1)} \quad (6)$$

El cálculo de las actividades de ^{125}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ para cualquier tiempo t precisa conocer la actividad inicial del ^{125}Sb . se tomará el siguiente criterio de minimización para calcular $A_{\text{Sb}}(0)$:

$$\min \left\{ \sum_{i=1}^j \frac{|N_i^{\text{calc}} - N_i^{\text{exp}}|}{N_i^{\text{calc}}} \right\} \quad (7)$$

en la que se han utilizado los superíndices calc. y exp. para expresar que las tasas de recuento son calculadas y experimentales respectivamente.

3.1.2. Rendimiento de la columna inferior al 100%.

En el caso de que la separación radioquímica no hubiera sido cuantitativa y se eluya cierta proporción de $^{125\text{m}}\text{Te}$ en la fracción del ^{125}Sb , las ecuaciones expuestas ya no serían válidas. En este caso, se tiene que tener en cuenta la aportación de esta actividad inicial de telurio, $A_{\text{Te}}(0)$, a la tasa de recuento total, con lo que la ecuación (2) queda:

$$A_{\text{Te}}(t) = A_{\text{Sb}}(0) P \frac{\lambda_{\text{Te}}}{\lambda_{\text{Te}} - \lambda_{\text{Sb}}} [e^{-\lambda_{\text{Sb}} t} - e^{-\lambda_{\text{Te}} t}] + A_{\text{Te}}(0) e^{-\lambda_{\text{Te}} t} = A_{\text{Sb}}(0) g(t) + A_{\text{Te}}(0) h(t) \quad (8)$$

donde $A_{\text{Te}}(0)$ es la actividad de $^{125\text{m}}\text{Te}$ a tiempo $t=0$. En consecuencia, la tasa de recuento total se rige por la ecuación:

$$N^{\text{calc}}(t) = A_{\text{Sb}}(0) [\varepsilon_{\text{Sb}} f(t) + g(t)] + A_{\text{Te}}(0) h(t) = A_{\text{Sb}}(0) F(t) + A_{\text{Te}}(0) h(t) \quad (9)$$

Para la determinación de las actividades iniciales de antimonio y telurio se recurre a la minimización de la función de dos variables Σ , mediante el siguiente criterio:

$$\min\{ \psi[A_{Sb}(0), A_{Te}(0)] \} = \min\left\{ \sum_{i=1}^m \frac{|N_i^{exp} - N_i^{calc}|}{N_i^{exp}} \times 100 \right\} \quad (10)$$

Finalmente, para ver la bondad de la ecuación (9) con respecto a las actividades iniciales el $A_{Sb}(0)$ y $A_{Te}(0)$, se comparan la tasa de recuento experimental y teórica mediante la ecuación:

$$E = \frac{N^{exp} - N^{calc}}{N^{calc}} \times 100 \quad (11)$$

3.2 Separación de la mezcla $^{125}\text{Sb} + ^{125m}\text{Te}$ mediante el programa MLOG.

El programa MLOG (7) está basado en el denominado método de interpolación-descomposición espectral, ya descrito de forma extensa en publicaciones anteriores. La correcta aplicación del programa al caso de la mezcla $^{125}\text{Sb} + ^{125m}\text{Te}$ hace imprescindible disponer de al menos dos muestras puras para cada uno de los radionucleidos ^{125}Sb y ^{125m}Te . Los valores de extinción química deben ser tales que se encuentren acotando el valor de extinción de la mezcla. De esta forma, el programa es capaz de interpolar las formas espectrales correspondientes al ^{125}Sb y ^{125m}Te , para posteriormente, mediante mínimos cuadrados, obtener la proporción, en tasa de recuento, para cada uno de estos radionucleidos.

Por otro lado, el programa precisa de los valores ajustados de las denominadas curvas eficiencia-eficiencia. Estas curvas permiten obtener de forma inmediata, a partir de la curva eficiencia del tritio en función del parámetro de extinción, el valor de la eficiencia para cualquier radionucleido. El cálculo de la curva correspondiente al ^{125m}Te es inmediata, puesto que la eficiencia es siempre 100% para cualquier valor de la extinción, dentro de un rango de extinciones moderadas. Sin embargo, este no es el caso del ^{125}Sb para cuya obtención resulta preciso tener en cuenta la contribución de cada una de las ramas en el esquema de desintegración. La curva eficiencia-eficiencia obtenida para el ^{125}Sb puede ajustarse mediante el siguiente polinomio de tercer grado en escala log-log:

$$\varepsilon_{sb} = \exp(-0.01023 + 0.08699\alpha - 0.00009565\alpha^2 + 0.003924\alpha^3) \quad (12)$$

siendo

$$\alpha = \ln (\varepsilon_H) \quad (13)$$

en las que se ha empleado la notación ε_{Sb} y ε_H presentado designar las eficiencias correspondientes al ^{125}Sb y al ^3H , respectivamente. En la Fig.2, se ha representado las componentes de la mezcla $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$ 13 días después de la elución.

4. PARTE EXPERIMENTAL

4.1 Aparatos y reactivos

En el proceso de medidas de las muestras se ha empleado un espectrómetro de centelleo en fase líquida LKB Rakkbeta, dotado de una fuente de ^{226}Ra para la caracterización de la extinción. Los centelleadores empleados han sido los cocteles comerciales Insta-Gel[®] Plus, HiSafeTMIII y Ultima-GoldTM, y la determinación de los 15 ml volumen empleados en todas las medidas, se ha efectuado mediante dispensadores Brand[®], previamente contrastados, de incertidumbre inferior al 1%. Las micropipetas empleadas, de la marca Gilson[®], también fueron previamente contrastadas, comprobándose una incertidumbre inferior a 2%.

En todas las medidas de comprobación del rendimiento de separación radioquímica, estabilidad y calibración de las muestras se han utilizado viales de vidrio de bajo contenido en potasio. Las determinaciones gravimétricas se han realizado mediante una balanza electrónica Mettler AT201, de 0,01 mg de sensibilidad. En las medidas para ajustar los pH se ha empleado un pHmetro de la marca Crison modelo micropH 2000. Los reactivos empleados fueron SbCl_3 , HCl , resina Dowex-1 en forma de Cl^- , ácido oxálico, amoníaco, CH_3NO_2 , y una disolución de $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$ en HCl 2M.

4.2 Separación radioquímica mediante columna de cambio iónico.

Una única disolución de $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$ fue utilizada para proporcionar el ^{125}Sb y ^{125m}Te . La separación de los isótopos fue realizada mediante el procedimiento descrito por G.W. Smith and S.A. Reynolds (5). La disolución de $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$ fue adicionada a una columna de 0,8 x 16 cm que contenía una resina Dowex-1 (200-400 mallas) en forma de Cl^- , previamente activada mediante una disolución de ácido oxálico 0,1 M.

El ^{125m}Te no es retenido por la resina en las condiciones arriba mencionadas por lo que su elución es inmediata, mientras que la obtención del ^{125}Sb requiere la utilización de una disolución de ácido oxálico neutralizado mediante amoníaco hasta obtener un $\text{pH}=4,8$. De los eluyentes se tomaron alícuotas de 10 μl a diferentes intervalos, adicionándolas a 15 ml de centelleador Insta-Gel[®] Plus, determinando a continuación el recuento de cada alícuota e identificando cada uno de los dos radionucleidos. Aunque la separación de los dos isótopos fue satisfactoria la disolución radioactiva en la que se obtiene el ^{125}Sb , ácido oxálico $\text{pH}=4,8$ no es la adecuada para la estabilidad de este isótopo que requiere una acidez más elevada. La separación radioquímica se repitió manteniendo las condiciones en el caso del ^{125m}Te y sustituyendo el eluyente del ^{125}Sb por H_2SO_4 1M, determinando como en la experiencia anterior el buen funcionamiento de la separación mediante los recuentos de alícuotas e identificación del ^{125m}Te y ^{125}Sb , obteniendo también una buena separación.

4.3 Preparación de muestras

Se preparó una dilución gravimétricamente y en idénticas condiciones, con las mismas cantidades de ácido y portador, a partir de la disolución calibrada de $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$. Dicha dilución fue utilizada para la preparación de muestras de $^{125}\text{Sb}+^{125m}\text{Te}$, adicionándola directamente sobre los 15 ml de las diferentes disoluciones centelleadoras empleadas.

Las muestras de ^{125m}Te se prepararon a partir de la disolución eluida de la columna de cambio iónico, adicionándola directamente sobre los 15 ml de Insta-Gel[®] Plus.

Tres tipos de muestras diferentes se prepararon con la disolución radiactiva de ^{125}Sb eluida de la columna con ácido oxálico $\text{pH}=4,8$. Las primeras adicionando directamente la disolución radiactiva de ^{125}Sb sobre los 15 ml de Insta-Gel[®] Plus. El otro conjunto de muestras se prepararon agregando 100 μl , 200 μl , 300 μl y 400 μl de HCl 2M a los 15 ml de Insta-Gel[®] Plus y , a continuación , la disolución radiactiva de ^{125}Sb . Por último, el tercer grupo de muestras, se preparó añadiendo, previamente a la disolución radiactiva de ^{125}Sb , 100 μl , 200 μl , 300 μl , 400 μl y 500 μl de una disolución con 10 $\mu\text{g/ml}$ de Sb^{3+} de portador en HCl 2M a los viales que contenían los 15 ml de Insta-Gel[®] Plus. Las denominamos muestras A para su identificación en posteriores análisis.

Cuando se utilizó como eluyente del ^{125}Sb el H_2SO_4 , se prepararon dos conjuntos de muestras. En el primero se adicionó directamente la disolución radiactiva sobre los 15 ml de Insta-Gel[®] Plus. En el segundo se añadieron en los viales que contenían 15 ml de Insta-Gel[®] Plus, 100 μl , 200 μl , 300

μl, 400 μl y 500 μl de una disolución con 10 μg/ml de Sb³⁺ en HCl 2M, y a continuación , la disolución de ¹²⁵Sb. Estas muestras las identificamos como muestras B.

5. RESULTADOS

5.1 Estabilidad de las muestras de ¹²⁵Sb+^{125m}Te en equilibrio radiactivo y ^{125m}Te.

La estabilidad de las muestras se ha verificado periódicamente a lo largo de varias semanas, manteniéndolas a temperatura constante 16°C y realizando recuentos totales superiores a 4x10⁵cpm, por lo que la influencia del fondo resultó ser inferior a 0,16%.

El grado de estabilidad de las muestras se estimó cuantitativamente registrando la evolución temporal del cociente $N(t)/\langle N(t) \rangle$, donde $N(t)$ es la tasa de recuento total y $\langle N(t) \rangle$ es el valor medio del período considerado.

La Tabla 1 muestra la evolución temporal de las tasas de recuento normalizadas para muestras de ¹²⁵Sb+^{125m}Te en los tres centelleadores empleados. Las muestras en Insta-Gel[®] Plus y HiSafe[™] III no presentan pérdidas de recuento apreciables, solamente fluctuaciones estadísticas, mientras que, para las muestras en Ultima-Gold[™], se aprecia una ligera pérdida de recuento, aproximadamente 1%, en los 30 días de medida.

Para analizar con más detalle la estabilidad de las muestras, se ha estudiado también la evolución temporal de los espectros a lo largo del tiempo. En la Fig.3 aparecen los espectros de ¹²⁵Sb+^{125m}Te en los centelleadores Insta-Gel[®] Plus, HiSafe[™] III y Ultima-Gold[™]. Como puede apreciarse los dos primeros centelleadores no muestran signos de degradación. En el caso del centelleador Ultima-Gold[™] las pérdidas de recuento observadas son confirmadas por una pequeña inestabilidad espectral.

En la Tabla 2 se presentan las evoluciones temporales de cuatro muestras de ^{125m}Te con diferentes grados de extinciones en Insta-Gel[®] Plus. La estabilidad es buena en todas las muestras, como puede observarse en la Fig.4, donde se ha representado la evolución espectral de estas muestras en los 30 días de medida.

5.2 Calibración del $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ por el método CIEMAT/NIST.

La concentración de actividad de la disolución se ha calculado mediante la ecuación

$$A = \frac{N}{\epsilon(^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te})m} \quad (14)$$

donde N es la tasa de recuento, ϵ es la eficiencia calculada y m la masa de la muestra que se mide. Los recuentos totales obtenidos fueron superiores a 4×10^5 cuentas, mientras que la tasa de fondo fue de 80 cpm, por lo que la influencia del fondo es despreciable.

Para la determinación de la eficiencia de recuento correspondiente a la mezcla $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ en equilibrio fue necesario obtener la curva de calibración, eficiencia de recuento en función del parámetro de extinción SQP(E), para el ^3H en 15 ml de Insta-Gel[®] Plus (Tabla 3). Los pasos seguidos se detallan a continuación:

(I) Se determinó el grado de extinción SQP(E) para las muestras problema de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$.

(II) Una vez conocido el valor SQP(E) se obtuvo, a partir de la curva de calibración del ^3H (Tabla 3), la eficiencia de recuento del ^3H , correspondiente a cada valor de SQP(E).

(III) Empleando la Tabla 4, se determinó el parámetro libre para las eficiencias del ^3H obtenidas en el punto (II).

(IV) Obteniendo el parámetro libre, y empleando la Tabla 5, se interpoló finalmente la eficiencia de recuento.

En la Fig.5 están representadas las eficiencias experimentales y calculadas para la disolución de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$.

5.3 Estabilidad de las muestras fuera del equilibrio radiactivo.

Para el estudio de la estabilidad de las muestras de ^{125}Sb , preparadas inmediatamente después de su elución en la columna de cambio iónico, y como en este caso la tasa de recuento de estas muestras no sigue un decrecimiento exponencial simple, se aplicó el método descrito en el apartado 3.1 para realizar dicha estabilidad. Se analizaron dos tipos de muestras, las primeras, muestras A, corresponden a la elución con ácido oxálico, y las llamadas muestras B, eluidas con ácido sulfúrico, la preparación detallada de ambos tipos de muestras está descrita en la parte experimental.

La evolución temporal de la muestra A, está representada en la Fig.6. Dicha evolución fue realizada comparando la tasa recuento normalizada determinada mediante la ecuación 6 durante el período de medidas. Como puede observarse existe una ligera caída de la tasa de recuento normalizada. Esta caída puede deberse a inestabilidades propias de la muestra o bien a la existencia de una pequeña cantidad de $^{125\text{m}}\text{Te}$ en la disolución radiactiva de ^{125}Sb utilizada en la preparación de las muestras. Para confirmar esta hipótesis debemos determinar las actividades iniciales de antimonio y telurio, $A_{\text{Sb}}(0)$ y $A_{\text{Te}}(0)$, que mejor se adapten a la tasa recuento experimental. Ello se consigue optimizando la función 10 tal como puede apreciarse en la Fig.7, donde se presentan las curvas para un mismo valor de la función, que acotan adecuadamente un valor mínimo que corresponde con los parámetros buscados. En la Fig.8, se representa la curva de las tasas de recuentos calculadas mediante la ecuación 9, con $A_{\text{Sb}}(0)$ y $A_{\text{Te}}(0)$ así determinados, junto con las tasas de recuento experimental. La Fig.9 muestra las discrepancias existentes entre ambas tasas de recuento (experimental y calculada) que como puede apreciarse es inferior al 0.5%.

En la Fig.10 se presenta, la evolución temporal de las tasas de recuento normalizadas a la primera medida de la muestras B calculadas mediante la ecuación 5, no existiendo signos de inestabilidad en los 132 días en que se han realizado. A continuación se efectuó un análisis temporal de los espectros de dicha muestra en el mismo período de tiempo. Una vez asegurada la estabilidad de la muestra se calculó la actividad inicial de ^{125}Sb mediante optimización de la función 7, presentándose los resultados en la Fig.11. Por último, en la Fig. 12 se muestra la curva teórica para el $A_{\text{Sb},125}(0)$ calculado junto con los valores experimentales de las tasas de recuento. Como puede observarse existe un buen ajuste entre ambas curvas puesto que solamente se aprecian fluctuaciones estadísticas.

6. CONCLUSIONES

Se describe un método para la separación radioquímica del ^{125}Sb y $^{125\text{m}}\text{Te}$ mediante columna de cambio iónico y se expone un tratamiento detallado del procedimiento empleado para cuantificar la estabilidad de las muestras de ^{125}Sb preparadas inmediatamente después de la elución de la columna de intercambio iónico, obteniendo así el rendimiento de la separación radioquímica mediante la evaluación de las tasas de recuento en el periodo de medidas.

Se estudia la estabilidad de las muestras de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ en los centelleadores: HiSafe III™, Insta-Gel® Plus y Ultima-Gold™, no detectándose variaciones apreciables ni en la tasa de recuento ni en la altura de los impulsos de los espectros en los dos primeros centelleadores mencionados, mientras que en el Ultima-Gold™ se aprecia una ligera pérdida de recuento de aproximadamente un 1% en los 30 días de medida. Se han calibrado por centelleo líquido muestras de $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$ en el centelleador Insta-Gel® Plus, mediante el método CIEMAT/NIST obteniendo discrepancias inferiores al 3% .

7. REFERENCIAS

- (1) G.S. Ghuman et al.; *J. Environ.Radactivity*; 21, 161 (1993).
- (2) A.S. Savanenkov et al.; *Radiakhhimiya*; ISSN 0033-8311. RADKU; 36.76 (1994).
- (3) Y.Y. Luré and N.A. Fillippova; *C.A.*; 42, 8696 (1948).
- (4) K. Kimura et al.; *J. Chem. Soc. Japan, Pure Chem. Sect.*; 74, 305 (1953).
- (5) G.W. Smith and S.A. Reynolds; *Anal. Chimica Acta*; 12,151 (1954).
- (6) L. Legrand, J.P. Perdat, F. Lagautine and Le Gallic Yves. *Table de Radionucléides* (LPRI, CEA, 1982).
- (7) A. Grau Carles; *Comp. Phys. Commun.*; 93; 48 (1996).

TABLAS

Tabla 1. Estabilidad del $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$, en diferentes centelleadores.

Días	Insta-Gel® Plus	HiSafe™ III	Ultima-Gold™
0	0,9998	1,0032	1,0049
1	0,9982	0,9997	1,0043
2	1,0011	0,9994	1,0021
3	1,0011	1,0014	1,0026
4	1,0008	1,0003	1,0031
7	1,0020	1,0014	1,0019
9	0,9969	1,0006	1,0023
10	1,0014	0,9996	1,0023
11	0,9988	1,0004	1,0038
14	1,0030	0,9999	1,0034
15	1,0017	1,0016	1,0000
16	0,9973	0,9993	1,0001
17	0,9983	0,9988	1,0011
18	0,9987	1,0014	0,9979
21	0,9983	0,9990	0,9982
22	0,9996	0,9985	0,9975
23	1,0009	0,9977	1,0013
24	0,9999	0,9974	0,9989
25	1,0014	1,0005	0,9984
26	1,0012	1,0003	0,9966
28	0,9989	1,0007	0,9979
29	1,0012	0,9983	0,9974
30	1,0012	1,0034	0,9951

Tabla 2. Estabilidad del ^{125m}Te , con muestras de diferentes extinciones, en Insta-Gel® Plus.

Días	Muestra 1	Muestra 2	Muestra 3	Muestra 4
0	0,9999	1,0011	0,9989	1,0018
1	0,9985	0,9991	0,9979	1,0011
2	0,9999	1,0012	0,9998	1,0014
3	0,9998	0,9991	1,0002	1,0003
6	0,9983	0,9992	1,0016	1,0002
7	0,9986	1,0026	0,9993	0,9991
8	1,0013	1,0000	1,0002	0,9988
9	1,0009	1,0020	0,9994	1,0022
10	1,0030	0,9989	1,0001	1,0021
13	0,9985	0,9982	1,0016	0,9992
14	1,0017	0,9984	0,9992	0,9982
15	1,0014	1,0001	1,0020	0,9992
16	1,0001	0,9969	1,0013	1,0004
17	1,0022	1,0011	0,9996	0,9998
18	0,9975	1,0005	1,0039	0,9988
20	1,0027	1,0007	0,9991	0,9973
21	0,9983	0,9987	0,9995	0,9984
22	1,0020	0,9995	0,9995	0,9996
23	1,0007	0,9993	1,0008	1,0016
24	0,9996	1,0012	1,0008	1,0000
27	1,0019	0,9996	1,0004	1,0006
28	0,9975	1,0024	0,9993	0,0083
29	0,9988	0,9993	1,0011	0,9998
30	0,9980	1,0009	0,9992	1,0012

Tabla 3. Eficiencia de recuento del ^3H en función del parámetro de extinción SQP(E).

SQP(E)	Eficiencia (%)
472.43	48.13
460.56	46.44
446.49	43.79
430.30	39.88
418.82	37.48
403.70	33.76
387.25	30.24
369.25	26.35
354.24	23.12
335.39	19.27
322.33	17.09

Tabla 4 .Eficiencia de recuento para el ³H

PARAM.L	EFICIENCIA	PARAM.L	EFICIENCIA	PARAM.L	EFICIENCIA
1.00	0.5858 **	3.50	0.2024 **	6.00	0.0982 **
1.05	0.5711 **	3.55	0.1990 **	6.05	0.0970 **
1.10	0.5568 **	3.60	0.1956 **	6.10	0.0958 **
1.15	0.5429 **	3.65	0.1924 **	6.15	0.0947 **
1.20	0.5295 **	3.70	0.1892 **	6.20	0.0936 **
1.25	0.5165 **	3.75	0.1860 **	6.25	0.0925 **
1.30	0.5039 **	3.80	0.1830 **	6.30	0.0914 **
1.35	0.4916 **	3.85	0.1800 **	6.35	0.0903 **
1.40	0.4798 **	3.90	0.1771 **	6.40	0.0892 **
1.45	0.4683 **	3.95	0.1743 **	6.45	0.0882 **
1.50	0.4572 **	4.00	0.1715 **	6.50	0.0872 **
1.55	0.4465 **	4.05	0.1688 **	6.55	0.0862 **
1.60	0.4360 **	4.10	0.1662 **	6.60	0.0852 **
1.65	0.4259 **	4.15	0.1636 **	6.65	0.0842 **
1.70	0.4161 **	4.20	0.1611 **	6.70	0.0833 **
1.75	0.4066 **	4.25	0.1586 **	6.75	0.0824 **
1.80	0.3974 **	4.30	0.1562 **	6.80	0.0814 **
1.85	0.3885 **	4.35	0.1538 **	6.85	0.0805 **
1.90	0.3798 **	4.40	0.1515 **	6.90	0.0797 **
1.95	0.3714 **	4.45	0.1493 **	6.95	0.0788 **
2.00	0.3633 **	4.50	0.1471 **	7.00	0.0779 **
2.05	0.3554 **	4.55	0.1449 **	7.05	0.0771 **
2.10	0.3478 **	4.60	0.1428 **	7.10	0.0762 **
2.15	0.3403 **	4.65	0.1407 **	7.15	0.0754 **
2.20	0.3331 **	4.70	0.1387 **	7.20	0.0746 **
2.25	0.3261 **	4.75	0.1367 **	7.25	0.0738 **
2.30	0.3193 **	4.80	0.1348 **	7.30	0.0730 **
2.35	0.3127 **	4.85	0.1329 **	7.35	0.0723 **
2.40	0.3063 **	4.90	0.1310 **	7.40	0.0715 **
2.45	0.3001 **	4.95	0.1292 **	7.45	0.0708 **
2.50	0.2941 **	5.00	0.1274 **	7.50	0.0700 **
2.55	0.2882 **	5.05	0.1257 **	7.55	0.0693 **
2.60	0.2825 **	5.10	0.1240 **	7.60	0.0686 **
2.65	0.2769 **	5.15	0.1223 **	7.65	0.0679 **
2.70	0.2715 **	5.20	0.1206 **	7.70	0.0672 **
2.75	0.2663 **	5.25	0.1190 **	7.75	0.0665 **
2.80	0.2612 **	5.30	0.1174 **	7.80	0.0659 **
2.85	0.2562 **	5.35	0.1159 **	7.85	0.0652 **
2.90	0.2514 **	5.40	0.1144 **	7.90	0.0646 **
2.95	0.2467 **	5.45	0.1129 **	7.95	0.0639 **
3.00	0.2421 **	5.50	0.1114 **	8.00	0.0633 **
3.05	0.2377 **	5.55	0.1100 **	8.05	0.0627 **
3.10	0.2333 **	5.60	0.1086 **	8.10	0.0621 **
3.15	0.2291 **	5.65	0.1072 **	8.15	0.0615 **
3.20	0.2250 **	5.70	0.1058 **	8.20	0.0609 **
3.25	0.2210 **	5.75	0.1045 **	8.25	0.0603 **
3.30	0.2171 **	5.80	0.1032 **	8.30	0.0597 **
3.35	0.2133 **	5.85	0.1019 **	8.35	0.0591 **
3.40	0.2096 **	5.90	0.1007 **	8.40	0.0586 **
3.45	0.2060 **	5.95	0.0994 **	8.45	0.0580 **

Tabla 5. Eficiencia de recuento para el $^{125}\text{Sb}+^{125\text{m}}\text{Te}$

PARAM.L	EFICIENCIA		PARAM.L	EFICIENCIA		PARAM.L	EFICIENCIA	
1.00	118.4437	**	3.50	108.7656	**	6.00	100.9654	**
1.05	118.2184	**	3.55	108.5948	**	6.05	100.8232	**
1.10	117.9951	**	3.60	108.4247	**	6.10	100.6814	**
1.15	117.7737	**	3.65	108.2553	**	6.15	100.5401	**
1.20	117.5543	**	3.70	108.0865	**	6.20	100.3993	**
1.25	117.3366	**	3.75	107.9185	**	6.25	100.2590	**
1.30	117.1208	**	3.80	107.7510	**	6.30	100.1192	**
1.35	116.9066	**	3.85	107.5842	**	6.35	99.9798	**
1.40	116.6939	**	3.90	107.4181	**	6.40	99.8409	**
1.45	116.4828	**	3.95	107.2526	**	6.45	99.7024	**
1.50	116.2733	**	4.00	107.0877	**	6.50	99.5645	**
1.55	116.0651	**	4.05	106.9235	**	6.55	99.4270	**
1.60	115.8584	**	4.10	106.7598	**	6.60	99.2900	**
1.65	115.6530	**	4.15	106.5969	**	6.65	99.1533	**
1.70	115.4490	**	4.20	106.4346	**	6.70	99.0172	**
1.75	115.2462	**	4.25	106.2728	**	6.75	98.8815	**
1.80	115.0445	**	4.30	106.1116	**	6.80	98.7463	**
1.85	114.8441	**	4.35	105.9511	**	6.85	98.6116	**
1.90	114.6450	**	4.40	105.7911	**	6.90	98.4772	**
1.95	114.4468	**	4.45	105.6318	**	6.95	98.3434	**
2.00	114.2499	**	4.50	105.4730	**	7.00	98.2099	**
2.05	114.0541	**	4.55	105.3148	**	7.05	98.0769	**
2.10	113.8593	**	4.60	105.1572	**	7.10	97.9444	**
2.15	113.6655	**	4.65	105.0001	**	7.15	97.8122	**
2.20	113.4727	**	4.70	104.8436	**	7.20	97.6806	**
2.25	113.2810	**	4.75	104.6878	**	7.25	97.5493	**
2.30	113.0901	**	4.80	104.5324	**	7.30	97.4184	**
2.35	112.9003	**	4.85	104.3776	**	7.35	97.2880	**
2.40	112.7114	**	4.90	104.2235	**	7.40	97.1581	**
2.45	112.5234	**	4.95	104.0698	**	7.45	97.0285	**
2.50	112.3364	**	5.00	103.9167	**	7.50	96.8994	**
2.55	112.1502	**	5.05	103.7641	**	7.55	96.7707	**
2.60	111.9649	**	5.10	103.6122	**	7.60	96.6424	**
2.65	111.7804	**	5.15	103.4607	**	7.65	96.5145	**
2.70	111.5968	**	5.20	103.3097	**	7.70	96.3871	**
2.75	111.4141	**	5.25	103.1593	**	7.75	96.2600	**
2.80	111.2321	**	5.30	103.0095	**	7.80	96.1334	**
2.85	111.0510	**	5.35	102.8601	**	7.85	96.0072	**
2.90	110.8707	**	5.40	102.7113	**	7.90	95.8813	**
2.95	110.6911	**	5.45	102.5630	**	7.95	95.7559	**
3.00	110.5124	**	5.50	102.4152	**	8.00	95.6309	**
3.05	110.3344	**	5.55	102.2680	**	8.05	95.5062	**
3.10	110.1571	**	5.60	102.1212	**	8.10	95.3821	**
3.15	109.9806	**	5.65	101.9750	**	8.15	95.2582	**
3.20	109.8049	**	5.70	101.8293	**	8.20	95.1348	**
3.25	109.6299	**	5.75	101.6841	**	8.25	95.0117	**
3.30	109.4556	**	5.80	101.5393	**	8.30	94.8891	**
3.35	109.2820	**	5.85	101.3951	**	8.35	94.7669	**
3.40	109.1092	**	5.90	101.2514	**	8.40	94.6450	**
3.45	108.9370	**	5.95	101.1082	**	8.45	94.5235	**

FIGURAS

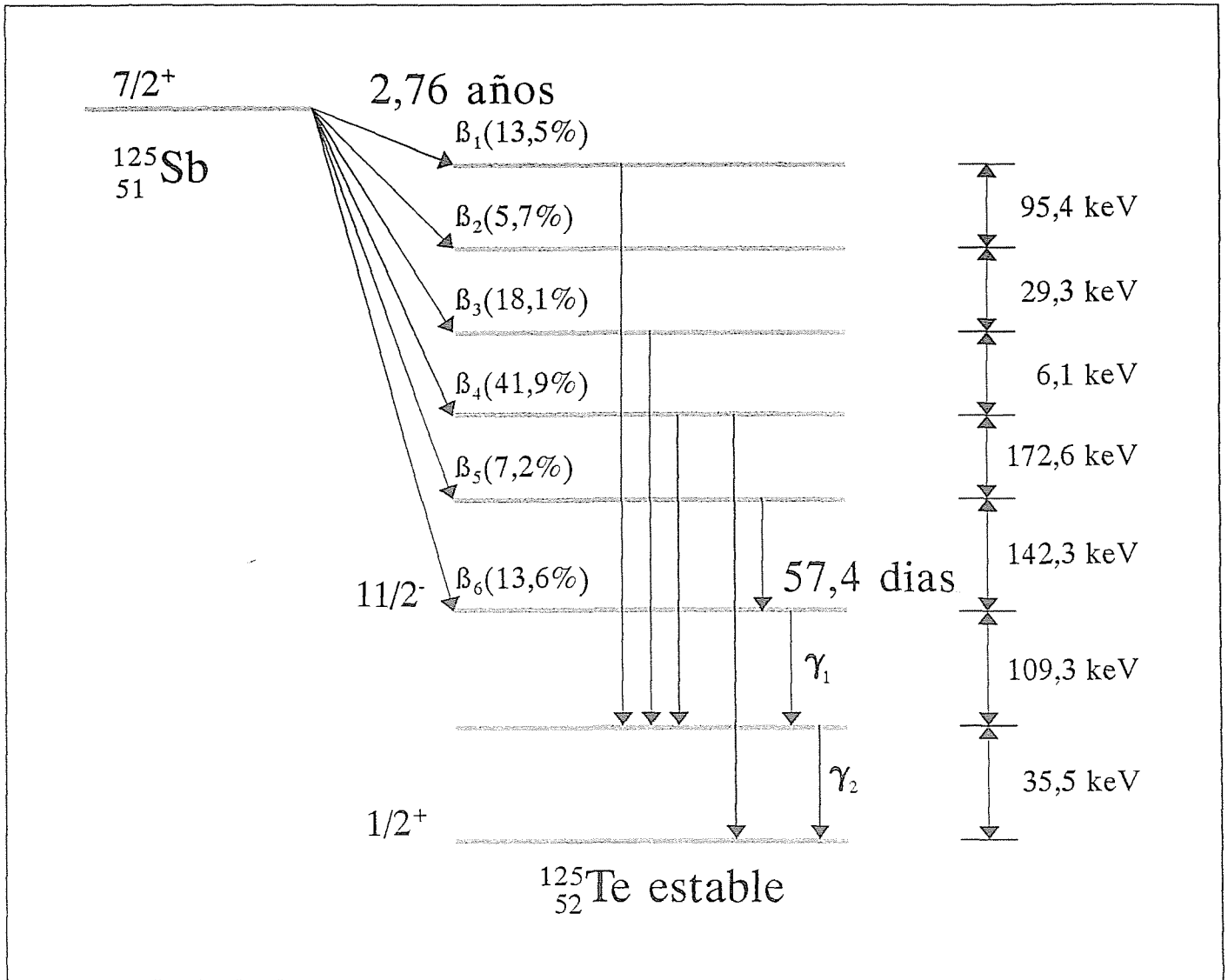


Fig. 1. Esquema de desintegración del $^{125}\text{Sb} + ^{125m}\text{Te}$

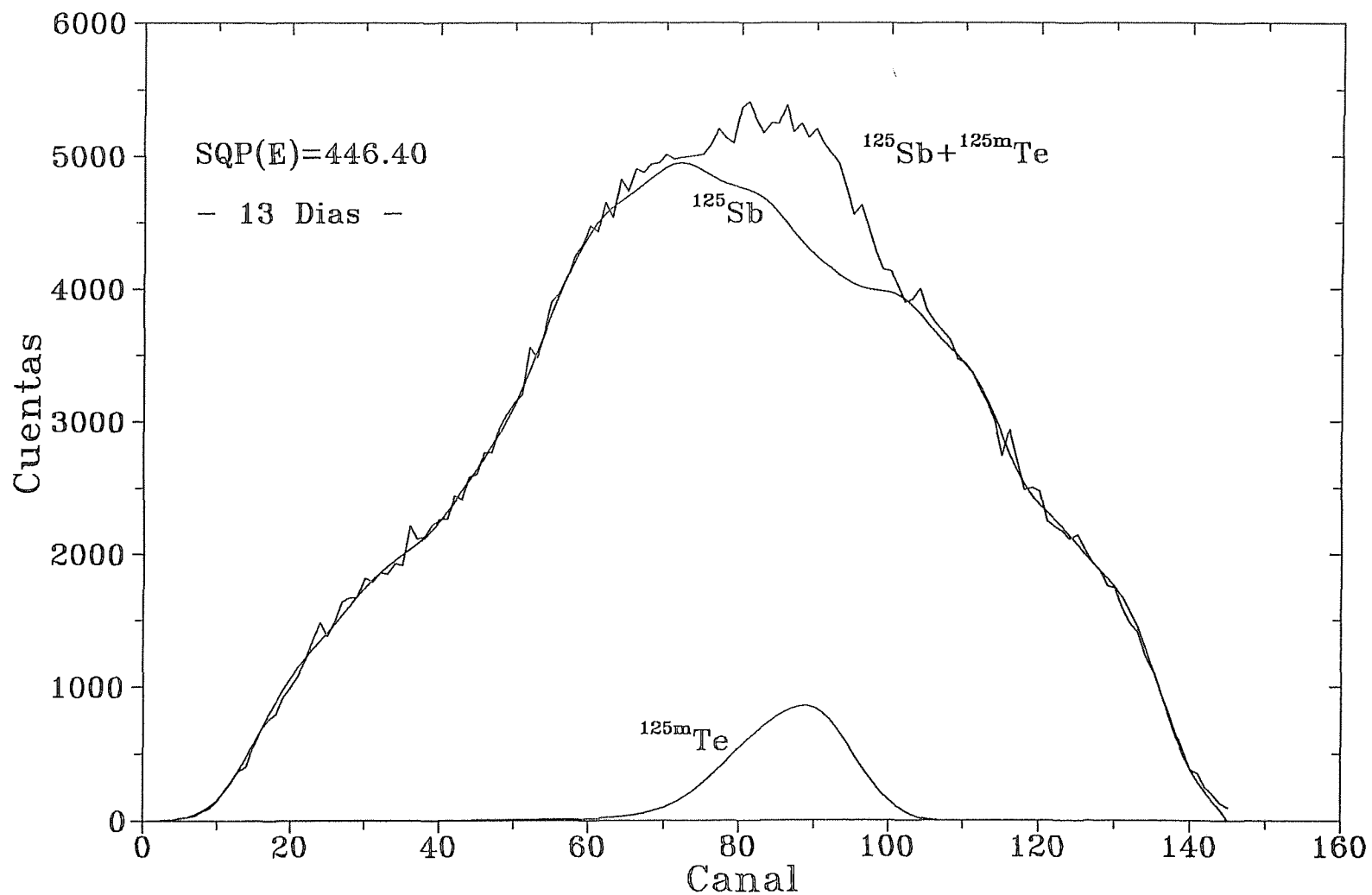


Fig.2 Descomposicion espectral mediante el programa MLOG de una mezcla $^{125}\text{Sb} + ^{125m}\text{Te}$, 13 dias despues de su elucion en la columna de cambio ionico

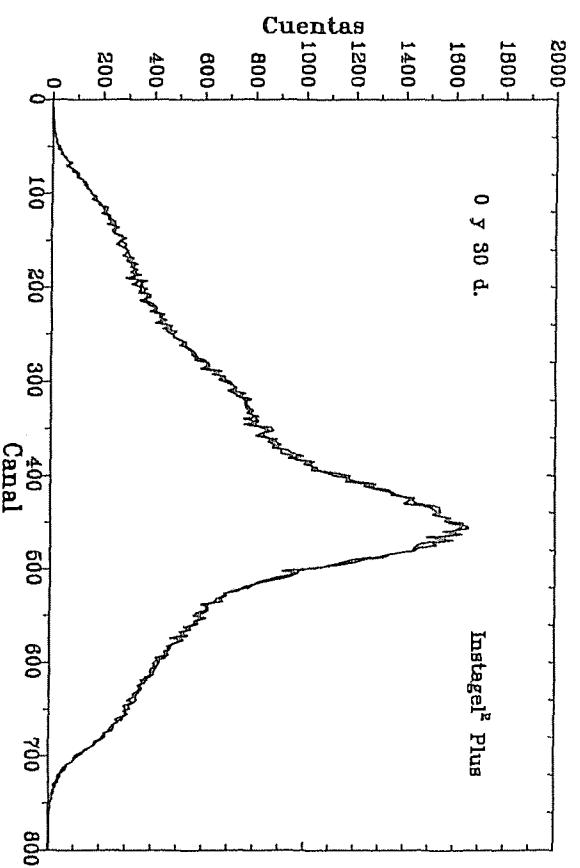
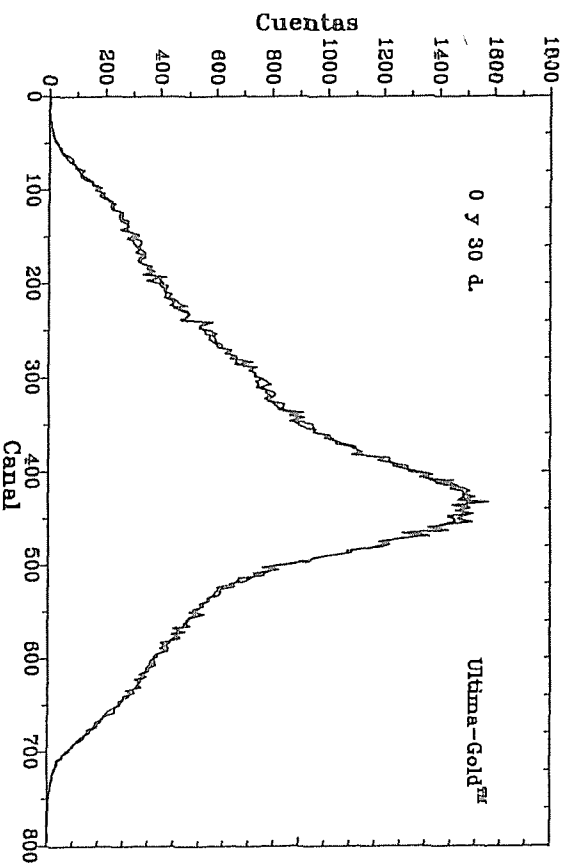
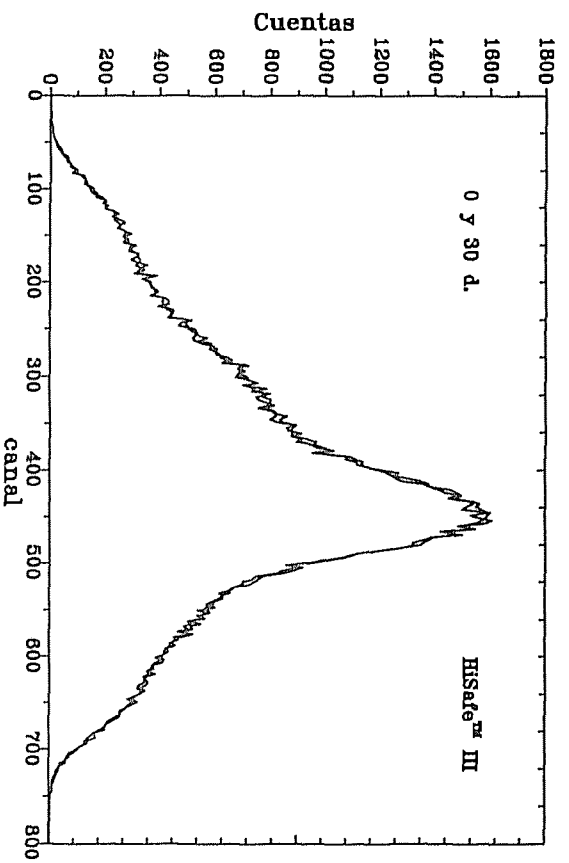


Fig 3. Evolucion temporal de los espectros de $^{125}\text{Sb} + ^{125m}\text{Te}$ en varios centelleadores

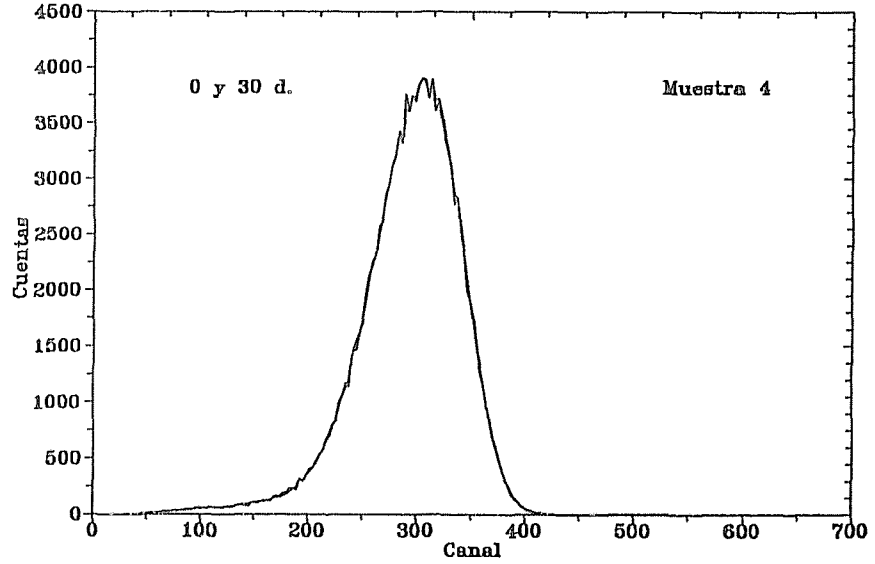
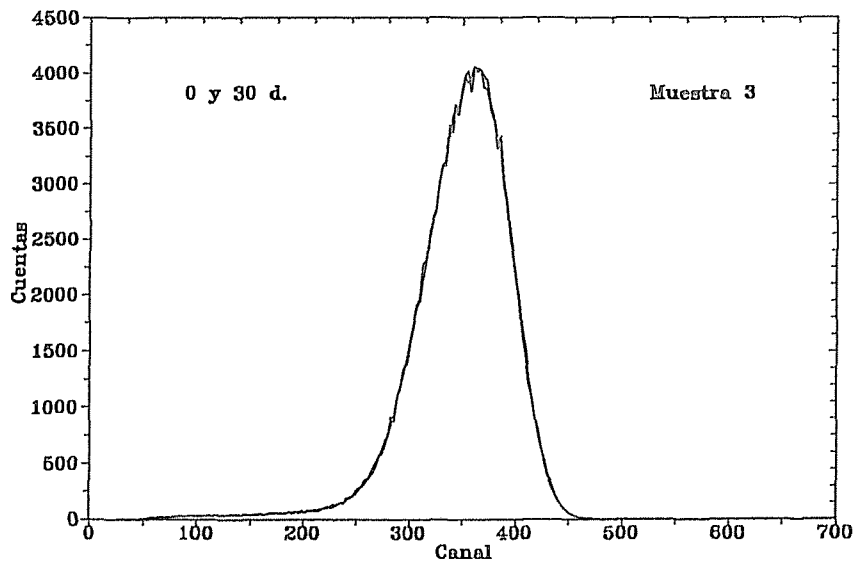
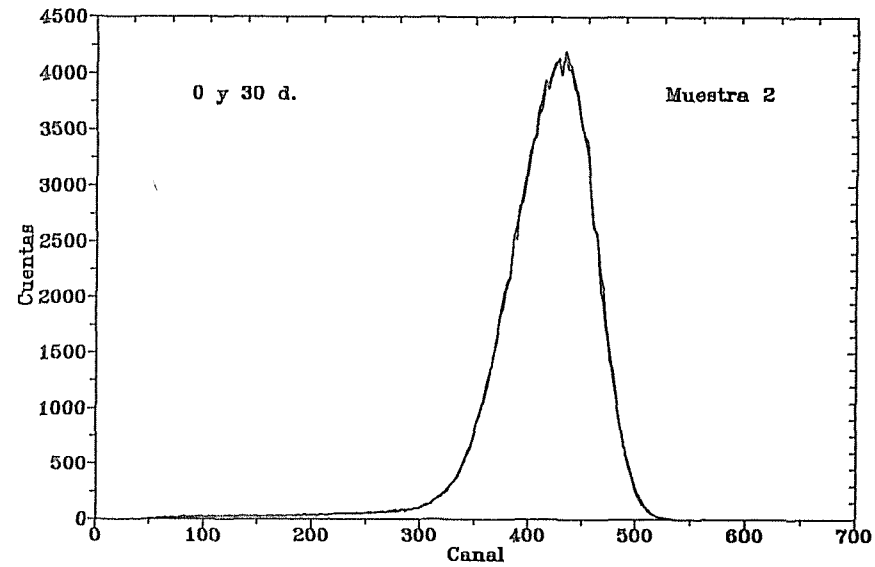
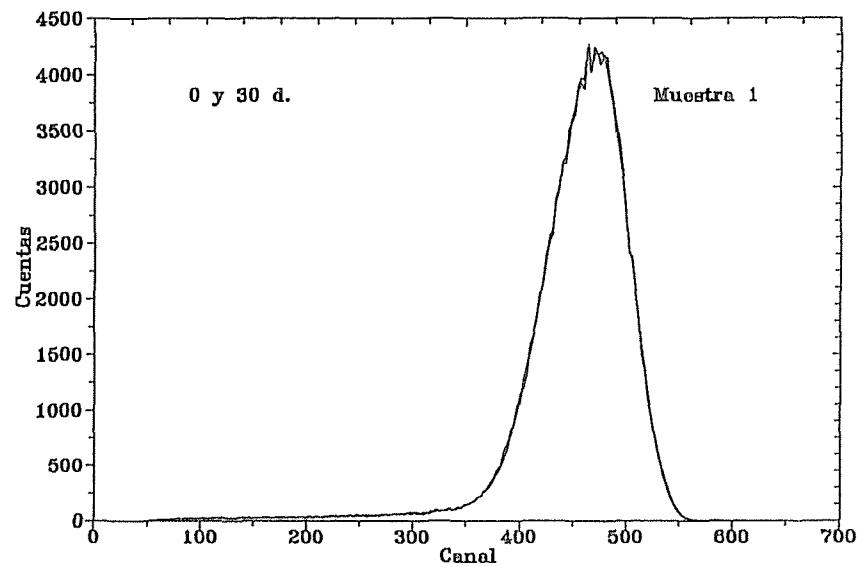


Fig. 4. Evolucion temporal de los espectros de ^{125m}Te en 4 muestras con diferentes extinciones en Instagel^R Plus.

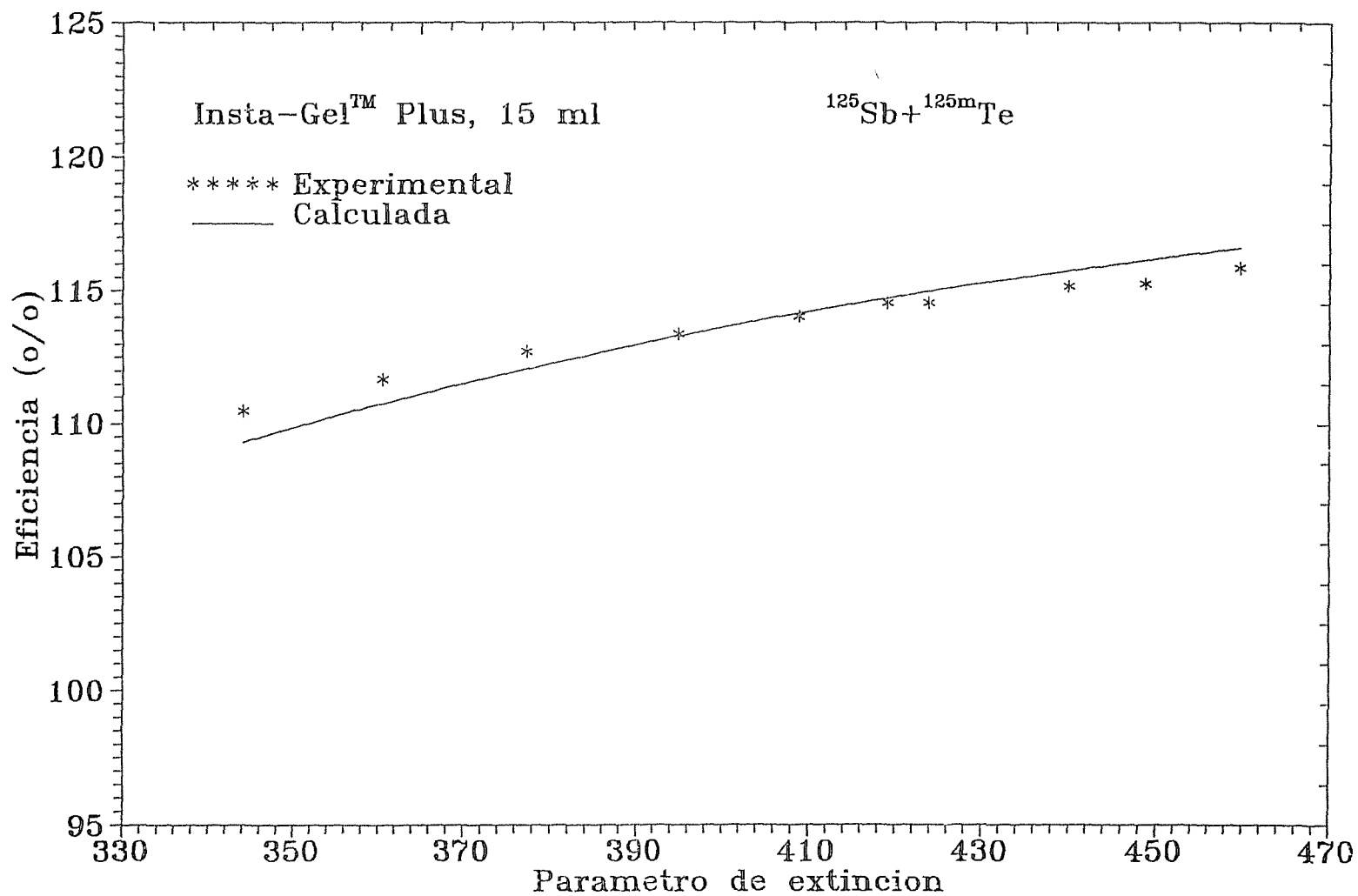


Fig.5 Eficiencias experimentales y calculadas para la disolucion de $^{125}\text{Sb} + ^{125\text{m}}\text{Te}$.

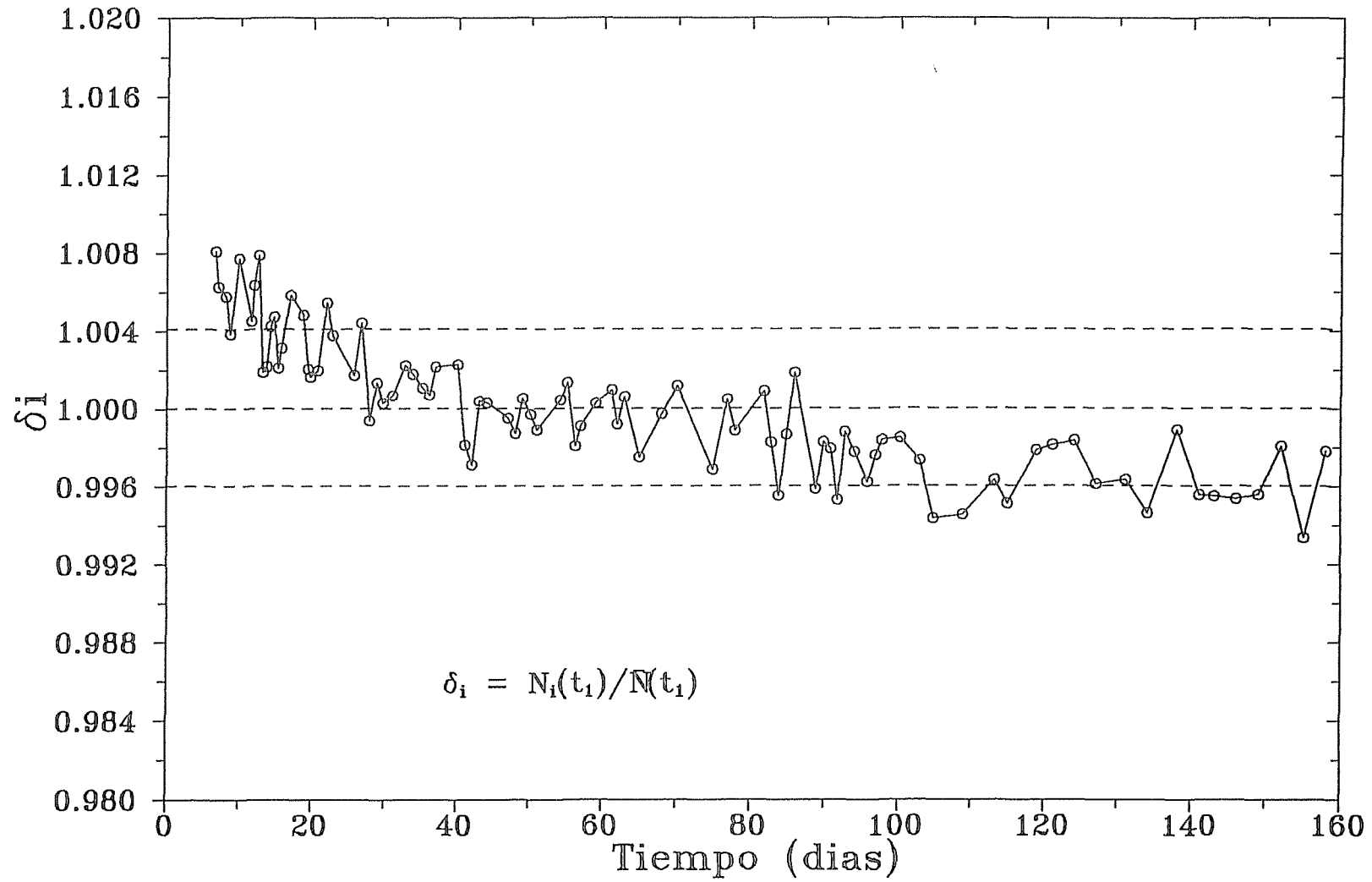


Fig.6 Evolucion temporal de la muestra A

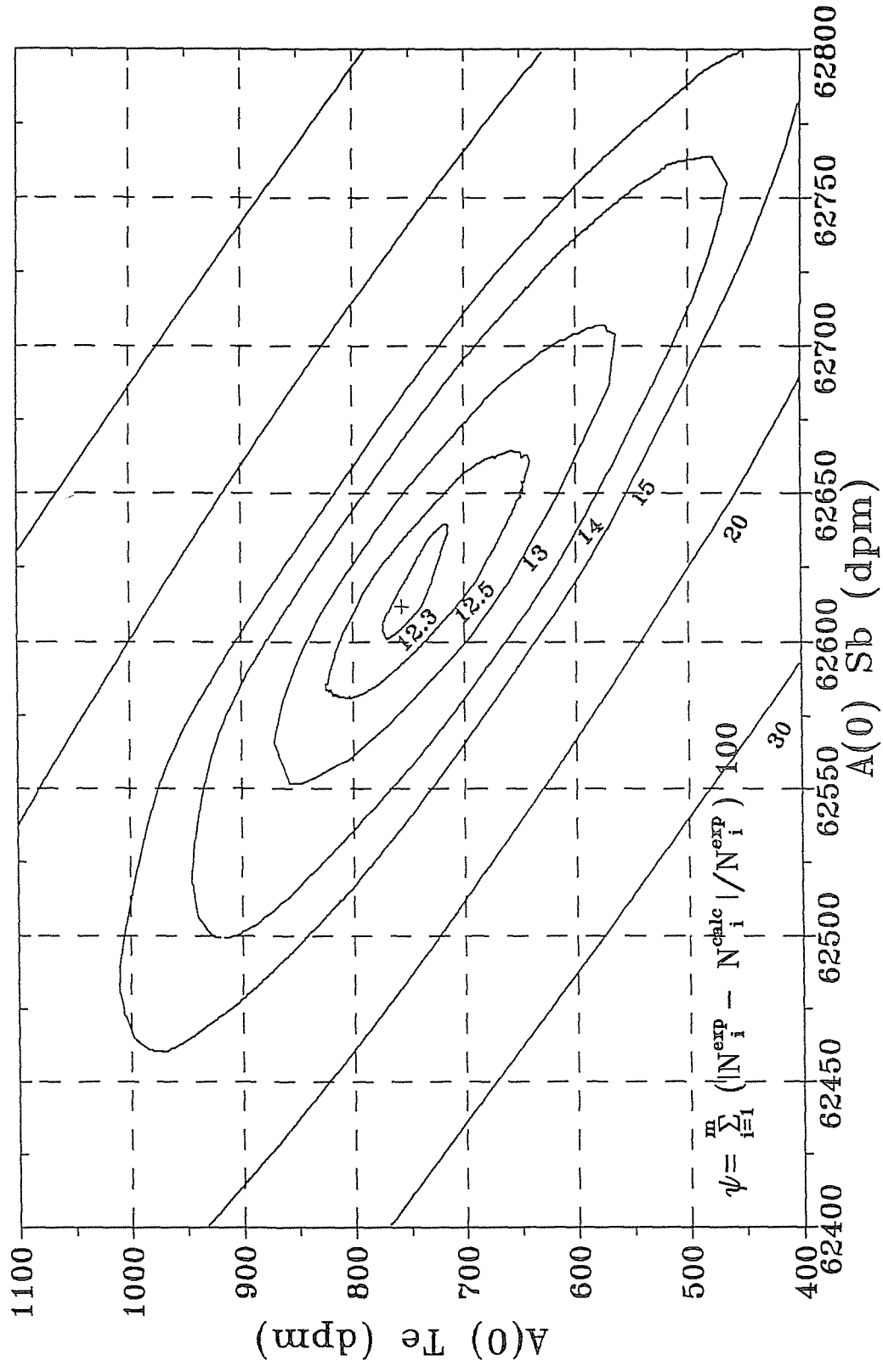


Fig.7 Determinacion de $A_{\text{Te}}(0)$ y $A_{\text{Sb}}(0)$ en muestra A

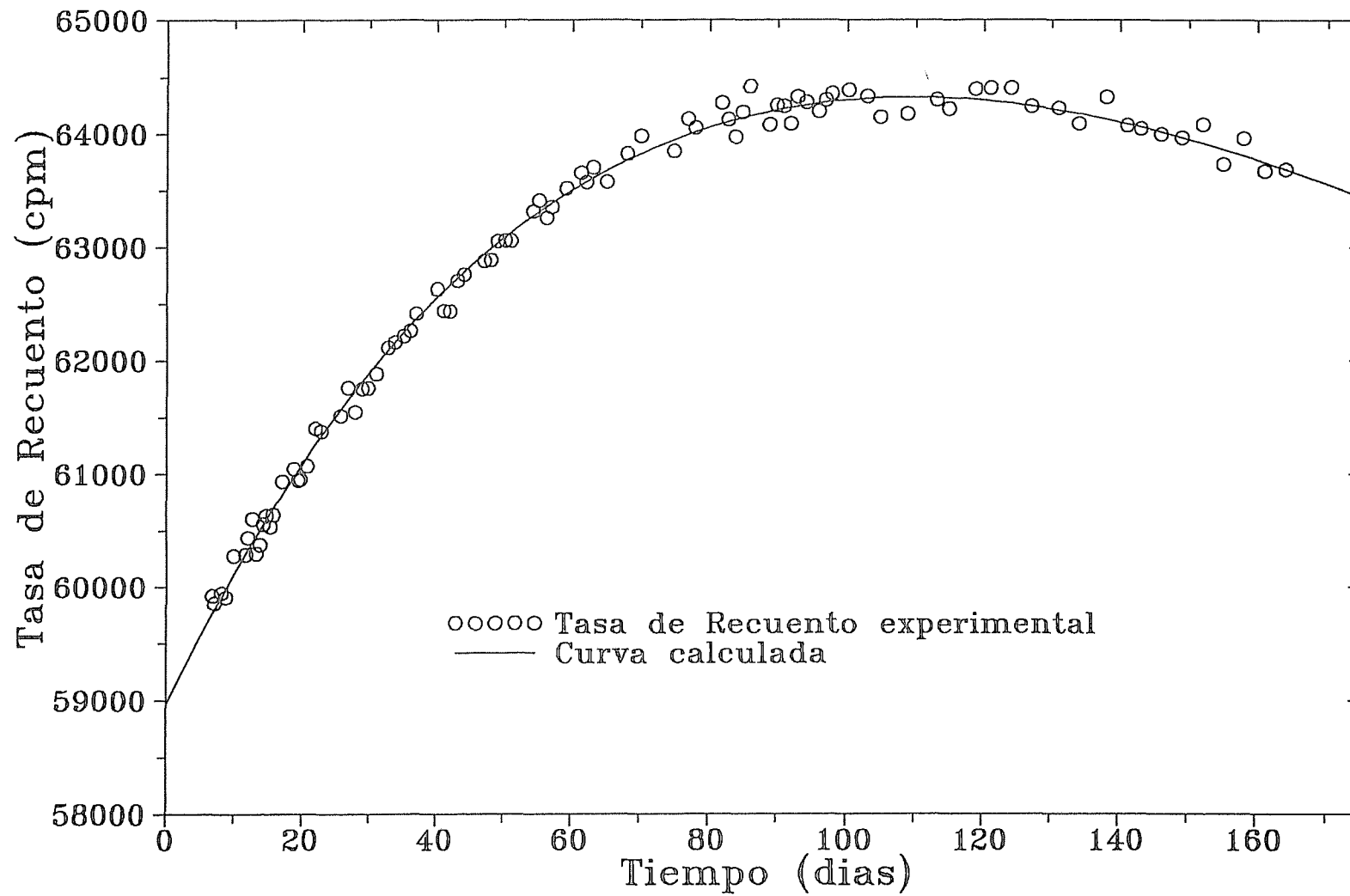


Fig. 8 Tasas de recuento experimental y calculada de la muestra A

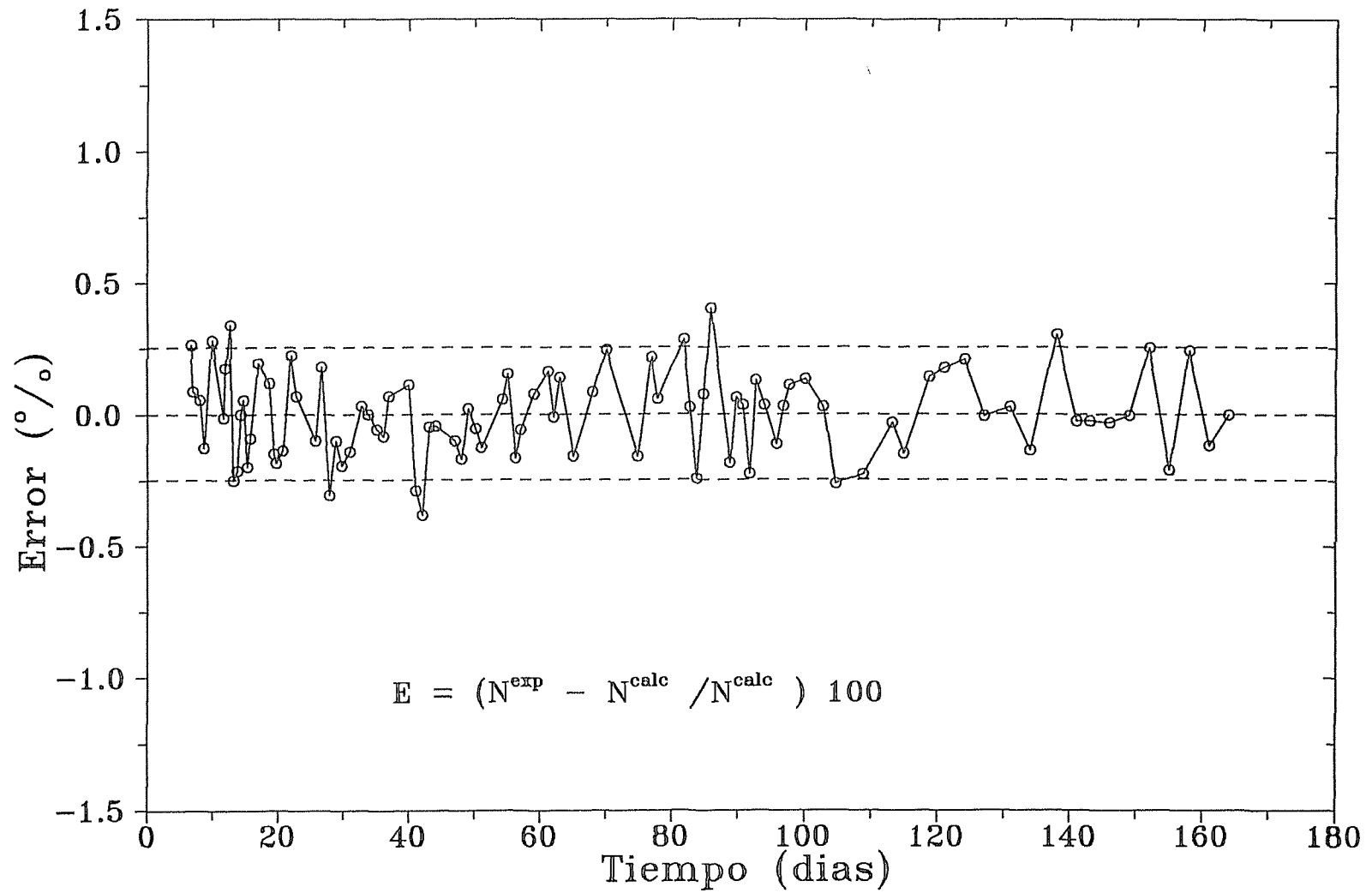


Fig. 9 Discrepancias entre las tasas de recuento experimental y calculadas en la muestra A

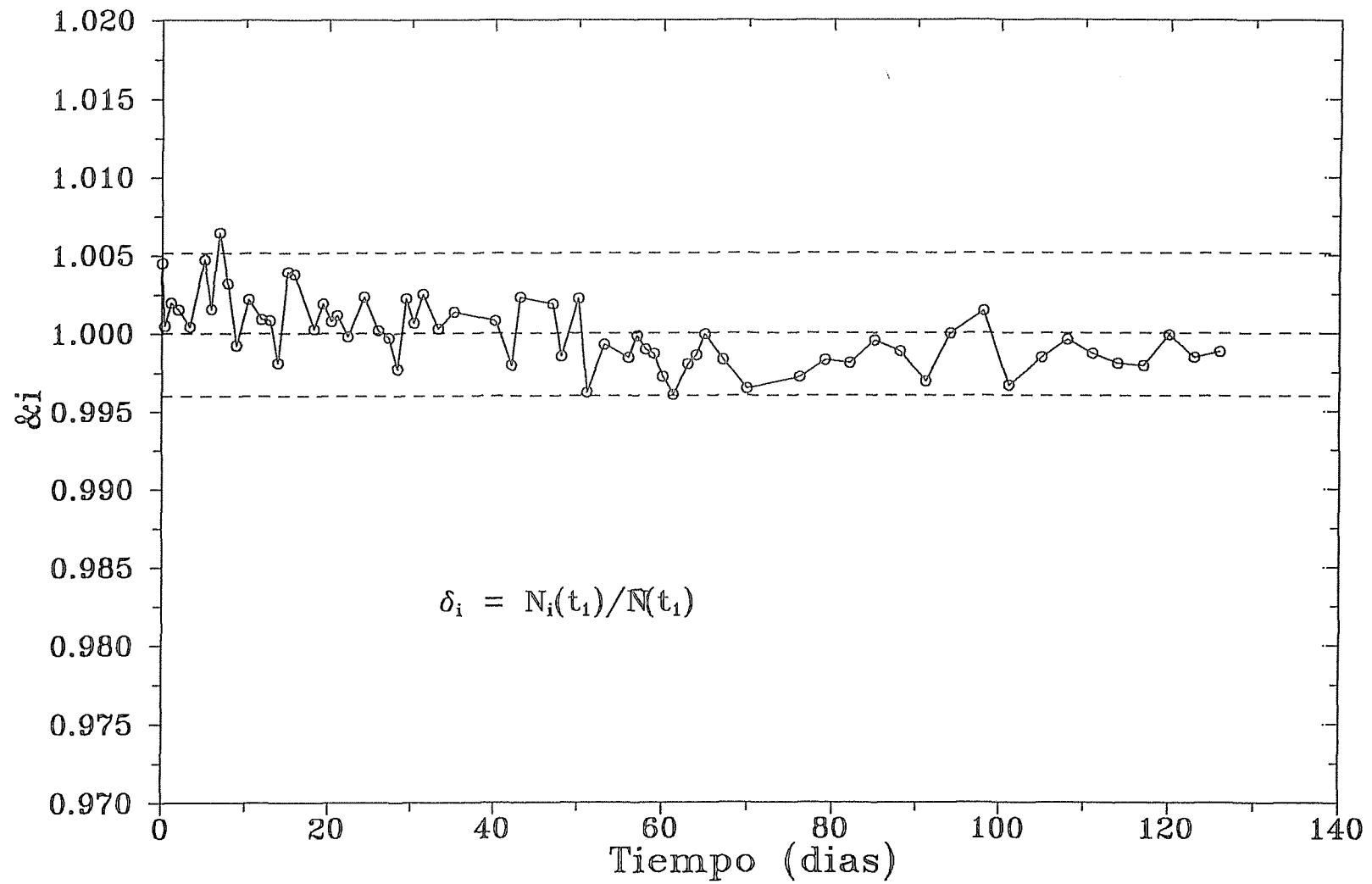


Fig. 10 Evolucion temporal de la tasa de recuento de la muestra B

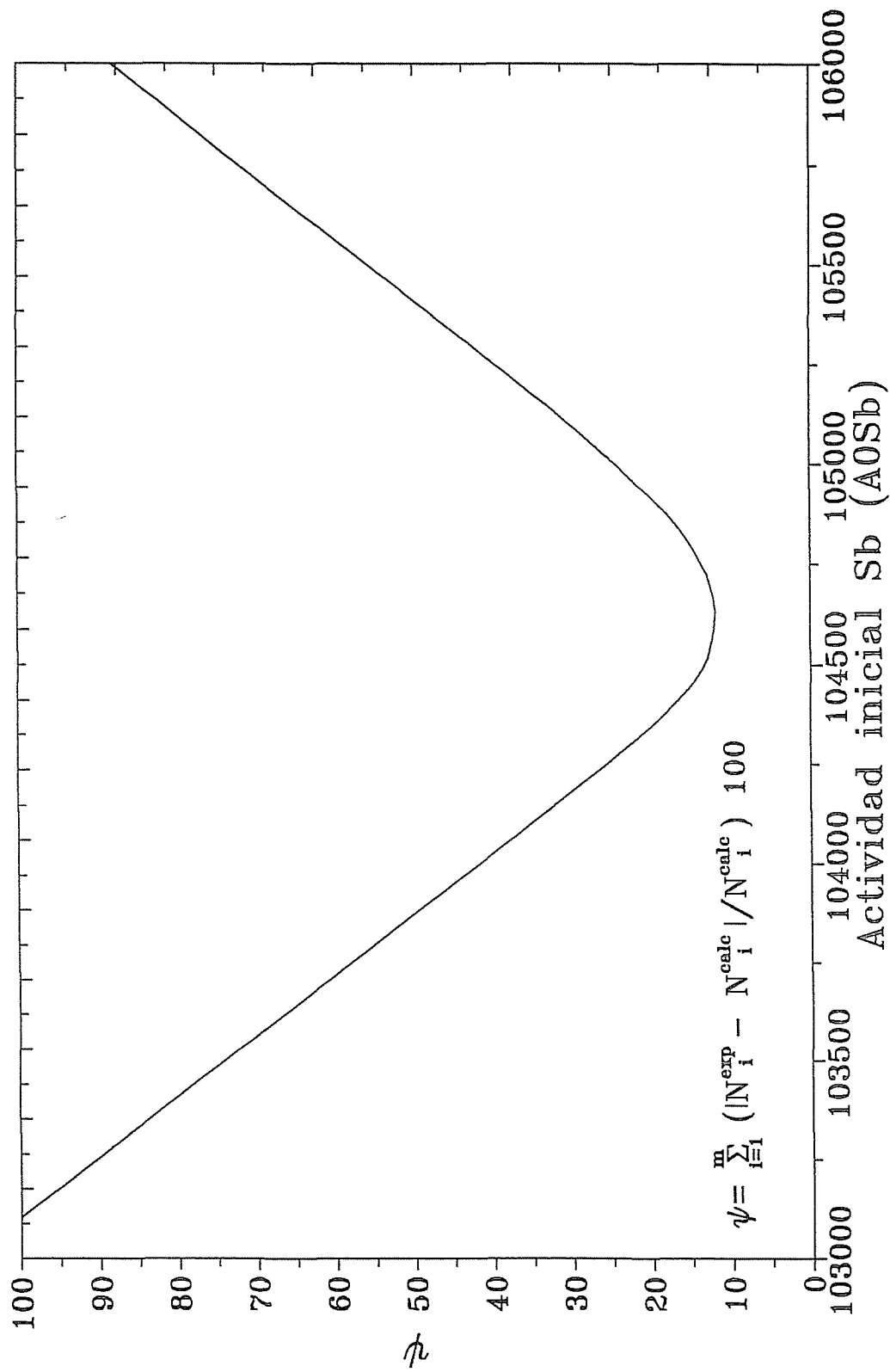


Fig. 11 Determinacion A_{Sb}(0) en la muestra B

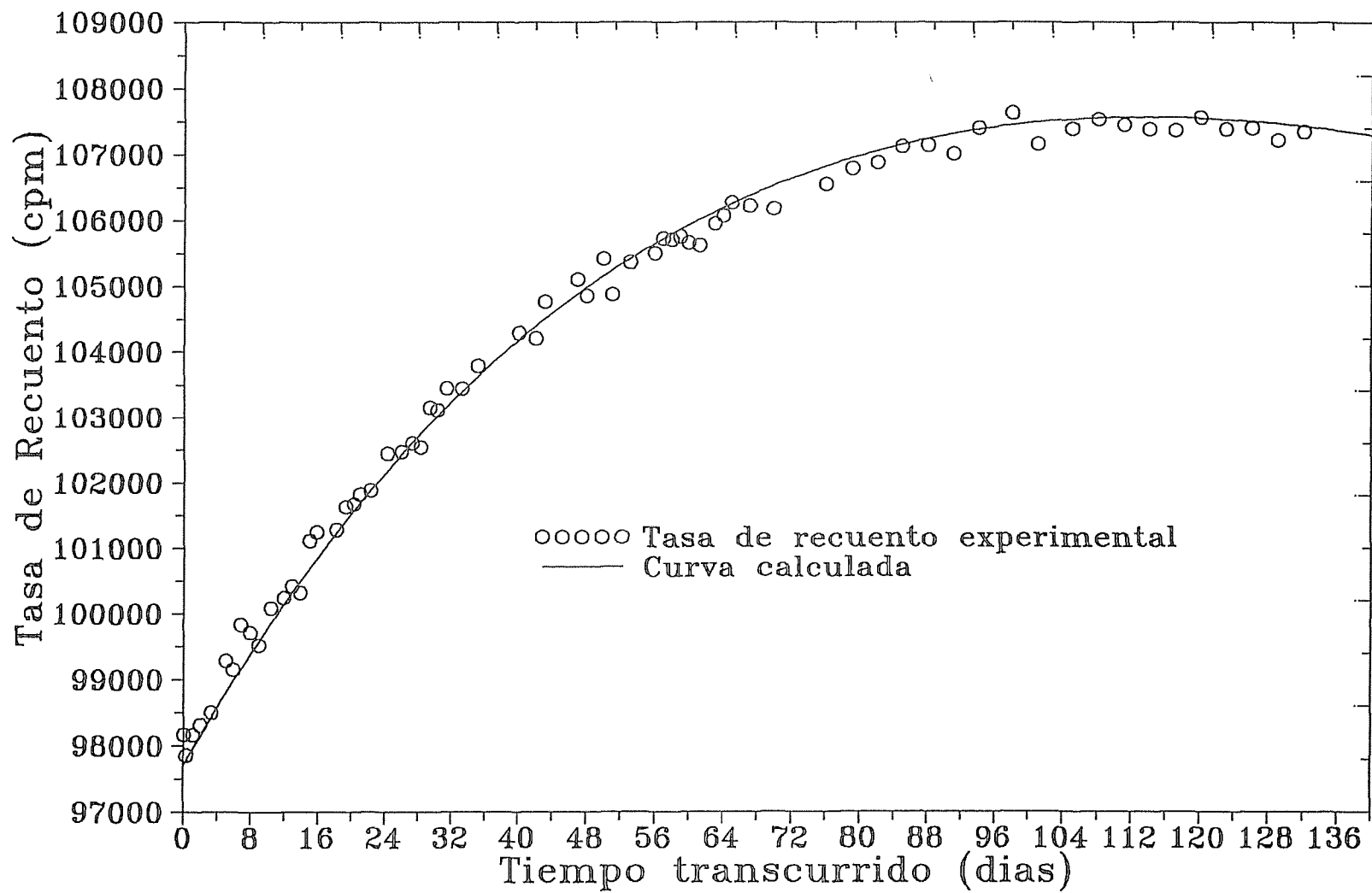


Fig. 12 Tasas de recuento experimental y calculada de la muestra B