

Laboratorio de fechado del Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear (CEADEN)

 Luis Baly Gil¹,  Raúl Arteche Díaz¹,  Piet Van Espen²,  Héctor Lubian de Iraola¹,
 Inés Quesada Wiemann¹,  Teresita Cepero Chao¹,  Dania Rodríguez Nápoles¹,
 Guido Martín Hernández¹,  Leandro Luis Peñalver Hernández³,  Roberto Alfonso Denis Valle³,
 Enrique Castellano Abella⁵,  Ana E. Cabal Rodríguez¹,  María García Fernández¹,
 Iván Pupo González¹,  Juan Carlos Gutiérrez Viera¹,  Armando Chávez Ardanza¹,
 Angelina Díaz García¹,  Fátima Padilla Cabal⁵,  Jossué Arteche Díaz¹,  Carlos M. Cruz Inclán¹,
 Antonio Leyva Fabelo¹,  Javier Riberón Peña¹,  Alexis Rosales Suárez¹,  Pilar Oropesa Verdecia⁶

¹ Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear (CEADEN), La Habana, Cuba

² Universidad de Amberes, Amberes, Bélgica

³ Instituto de Geología y Paleontología. (IGP), La Habana, Cuba

⁴ Ministerio de Energía y Minas, (MINEM), La Habana, Cuba

⁵ Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas (InsTEC), La Habana, Cuba

⁶ Centro de Isótopos (CENTIS), Mayabeque, Cuba

baly@ceaden.edu.cu

Resumen

El presente trabajo resume las principales tareas desarrolladas durante los últimos 20 años encaminadas al desarrollo de capacidades humanas y técnicas para la creación de un laboratorio de fechado para la determinación de la edad de formación de los depósitos sedimentarios mediante la técnica de luminiscencia ópticamente estimulada del cuarzo. Para ello se hace un análisis de los antecedentes que sirvieron de base a la decisión de empezar este proyecto, sus objetivos y resultados alcanzados. Al final se plantean las perspectivas de desarrollo.

Palabras clave: fechado; luminiscencia; cuarzo; dosimetría retrospectiva.

Dating laboratory of the Center for Technological Applications and Nuclear Development (CEADEN)

Abstract

This paper summarizes the main activities carried out during the last 20 years aimed at developing human and material capacities supporting the creation of a dating laboratory for determining the age of sedimentary deposits using the quartz optically stimulated luminescence technique. Following an analysis of the background conditions that served as the basis for the decision to start this project, the specific goals are exposed and the achieved results are presented. Finally, the perspective developments are commented.

Key words: luminescence dating; quartz; retrospective dosimetry.

Introducción

La determinación de la edad de objetos de interés geológico permite no solo conocer la historia de la evolución de la Tierra, también permite elaborar modelos de evolución en base a los cuales hacer planes de adaptación o mitigación. El método de fechado por luminiscencia del cuarzo es uno de los tantos métodos de fechado, pero el único que permite la determinación directa de la edad de formación de un depósito sedimentario con un alcance entre los mil y 250 mil años cuando se usa el cuarzo o entre 1000 y 500 mil años cuando se utiliza el feldespato.

Este método es relativamente joven. La idea del método es publicada por primera vez en la revista Nature [1]. Este método se basa en las propiedades de algunos minerales, lo cuales al estar expuestos a la radioactividad natural se vuelven luminiscentes. La intensidad de la luminiscencia es proporcional al tiempo que han estado expuestos y esta se va acumulando mientras el mineral no es expuesto a la luz. Por tanto el método determina la última vez que el mineral estuvo expuesto a la radiación solar antes de que sobre este se depositara una nueva capa de sedimentos. Fue en el año 2003 cuando se publica el desarrollo del protocolo SAR (del inglés Single Aliquot Regenerative) [2] que garantiza la

obtención de edades confiables. A ello contribuyó el diseño y construcción de equipos altamente especializados y complejos para el análisis de la luminiscencia del cuarzo o del feldespato [3, 4]. Para el cálculo de la edad de formación se utiliza la ecuación fundamental del método de fechado por luminiscencia [5].

$$\frac{\text{Edad (años)} = \text{Dosis Total Recibida (Gy)}}{\text{Tasa de Dosis Anual (Gy/año)} \quad (1)$$

La magnitud *Dosis Total Recibida* se refiere a la dosis recibida por el mineral durante el tiempo de enterramiento y es medida con un lector de luminiscencia previamente calibrado y con la aplicación del protocolo SAR. La magnitud *Tasa de Dosis Anual* se refiere a la dosis anual recibida por el mineral y esta se determina a partir de la concentración de elementos radiactivos naturales presentes en el sedimento. La concentración de estos elementos es normalmente tan baja que para su determinación se utiliza un sistema espectrométrico de bajo fondo.

Como se explicó anteriormente, para preservar la señal luminiscente, el mineral no puede ser expuesto a la luz en ningún momento del proceso, empezando por la toma de muestras en el campo, su tratamiento en el laboratorio y el proceso de medición.

Antecedentes

El proyecto del laboratorio de fechado surge en el grupo láser del Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear (CEADEN). El objetivo de este grupo organizado en el año 1988 era de diseñar y construir equipos basados en la óptica y el láser para dar respuesta a las necesidades del programa nuclear cubano. Tras la reestructuración del programa nuclear cubano, los objetivos de este grupo se reorientan hacia las necesidades de otros sectores de la economía. Dentro de los resultados más relevantes de aquella etapa se puede mencionar los equipos para el control metroológico de la radiación láser LM-09, el fluorímetro láser para la determinación de trazas de uranio en solución acuosa LF2 y los láseres de nitrógeno LN-03 (figura 1), de este último se exportaron dos equipos a Brasil y uno a Alemania.

Para finales de los años 90, las pocas perspectivas de ventas de los láseres de nitrógeno sumado al hecho que desde el punto de vista científico estos no tenían novedad determinaron el cierre de esta línea de trabajo, y con ello la búsqueda de una nueva línea de trabajo.

Para definir esta nueva línea se elaboraron tres directrices: La primera, en lugar de orientarnos hacia la producción de instrumentos se buscaría una línea en la cual se pudiera ofrecer un servicio científico de complejidad y utilizar nuestra capacidad de construir instrumentos para crear nuestras propias condiciones; segundo la línea de trabajo debía pertenecer a un área donde la óptica y lo nuclear se combinaran, en especial si se incluía la fluorimetría. La otra directriz era de que esta línea tuviera respaldo del Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA).

La línea de trabajo escogida entonces fue la dosimetría retrospectiva. En aquel entonces se estaba utilizando la luminiscencia del cuarzo extraído de materiales constructivos en la zona de Chernóbil para hacer un análisis retrospectivo de la radiación que recibió la población tras el accidente [6]. En el año 2001, viaja a Cuba para participar en un evento NURT la Profesora Dra. Ann Wintle, una de las autores del protocolo SAR [2], y en el intercambio ella recomienda dirigir el proyecto hacia el fechado de sedimentos que utilizan la misma metodología pero la aplicación es más amplia. Así se decide empezar el proyecto del laboratorio de fechado.

Objetivos del proyecto del laboratorio de fechado

Se definieron dos objetivos del proyecto del laboratorio de fechado, el primero crear las capacidades técnicas y humanas que permitieran ofrecer un servicio de fechado, el segundo participar en los temas de discusión internacional sobre el método de fechado por luminiscencia.

Para evaluar el alcance de los objetivos propuestos basta con observar el mapa mundial de distribución de estos laboratorios (figura 2) con fecha del 2014 conformado a partir de los participantes en el evento LED2014 celebrado en Montreal, Canadá. Este tipo de laboratorio solo existían en países altamente desarrollados; en el continente americano sin contar Cuba, solo en tres países: E.U.A, Canadá y Brasil. Mucho más reducido es el grupo de países donde se fabrican los lectores automatizados de luminiscencia, el elemento distintivo de estos laboratorios. Los elevados costos de adquisición y mantenimiento de estos equipos son una de las razones por las que existen pocos laboratorios de este tipo.

Desarrollos técnicos del laboratorio de fechado

El desarrollo del lector automatizado de luminiscencia constituyó el objetivo de mayor complejidad.



Figura 1. A la izquierda el fluorímetro con resolución temporal LF2, en el centro el medidor de energía y potencia laser LM-09 y a la derecha el láser de nitrógeno LN-03



Figura 2. Mapa mundial de distribución por países de laboratorios de fechado (2014). Los círculos azules muestran los países donde se han desarrollado lectores automatizados de luminiscencia.

Para ello se estudiaron los diseños de los equipos comerciales, y se evaluaron los tiempos de ejecución de una secuencia típica que por lo general se toma más de 16 horas. Se analizó por esta razón, para poder responder a los tiempos demandados por los clientes, los laboratorios poseen por lo general un mínimo de 3 equipos. De este análisis y de la comprensión de que para nosotros solo sería posible construir una sola unidad, se decidió no reproducir estos diseños y proponer un diseño donde se aplicaran un conjunto de ideas destinadas a la reducción de los tiempos de ejecución de las secuencias.

En el año 2009 se pone en funcionamiento el lector automatizado de luminiscencia LF02 (figura 3). Este equipo seguía la estructura básica de los equipos comerciales; un sistema de estimulación luminosa y detección de la luminiscencia, una fuente radiactiva de radiación beta, un sistema de posicionamiento automático de muestras, que traslada las muestras hacia la fuente radiactiva hacia el sistema de estimulación detección (vea: https://www.youtube.com/watch?v=_znlq6wXB94)

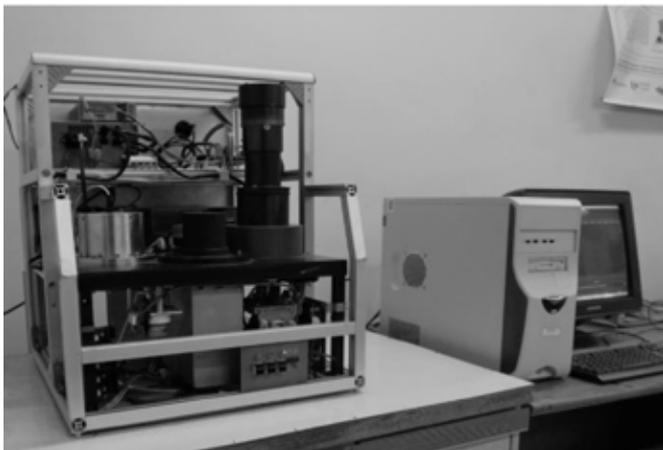


Figura 3. Lector automatizado de luminiscencia LF02

y un sistema electrónico que da soporte a estos sistemas y que sostiene la comunicación con una computadora. El LF02 tiene incorporado en su diseño un conjunto de ideas para acelerar el proceso de ejecución, que lo diferencian substancialmente de los equipos comerciales. Sin la posibilidad de explicar cada método, se destacan la introducción de la irradiación externa, la organización de la doble cola, el enfriamiento forzado de las muestras y la fusión de procesos de medición. El desarrollo del LF02 fue solo posible por la solidaridad de investigadores y técnicos de la Universidad de Amberes (UA) en Bélgica. Un equipo de tal complejidad necesitaba componentes mecánicos y electrónicos cuya adquisición no era posible. Los colegas de la UA asumieron la adquisición de estos componentes y se encargaron de la construcción de los elementos mecánicos de alta precisión.

El término automatizado no se refiere solo al posicionamiento de las muestras. Las secuencias de medición son procesos complejos de muchas variables experimentales, que varían de muestra a muestra y de proceso a proceso. La secuencia de medición es un fichero definido por el operador del equipo y requiere de una edición. Con el objetivo de generar los ficheros de secuencia fue desarrollado en conjunto con la Universidad de Ciencias Informáticas un conjunto de aplicaciones denominada SequenceToolkit [7]. Este conjunto incluye la aplicación GenSec con la cual se generan o editan las secuencias de medición. También contiene una aplicación GenRep, encargada de compilar y extraer de forma automatizada los resultados de medición generados por algunos cientos de curvas de medición. Está en proceso de desarrollo otra aplicación (GenVis) que realizará de forma automática el proceso de análisis que hoy se hace de forma manual.

Otro desarrollo importante fue el sistema espectrométrico gamma de bajo fondo (figura 4). Construido a partir de un detector de germanio de alta pureza (HPGe) recuperado y la modificación de un sistema de bajo fon-



Figura 4. Sistema espectrométrico gamma de bajo fondo.

do. La electrónica del sistema de conformación de la señal y el sistema ADC se organizaron utilizando módulos CREATE disponibles en el centro. El sistema multicanal y el software asociado fueron desarrollados por el proyecto. Esto último permitió la implementación de formas de medición para contrarrestar la inestabilidad en el suministro eléctrico, haciendo mediciones continuas con secciones de relativa corta duración. A pesar de los esfuerzos realizados, no fue posible obtener un detector HPGe nuevo que diera estabilidad a este sistema. En determinado momento fue necesario pasar a utilizar un sistema de detección basado en un sistema de centelleo con un cristal de NaI. Esto requirió de un largo proceso de puesta en marcha hasta encontrar una configuración que cumpliera con las expectativas del sistema. También fue necesaria la sustitución de las muestras de referencia, ya que la región de análisis del nuevo detector se movió hacia la zona de las altas energías.

Tanto la fuente radiactiva del lector LF02 como el sistema espectrométrico necesitan de muestras de referencias para ser calibrados. Con este propósito fueron diseñadas dos muestras de referencias. La primera construida en colaboración con el Centro de Higiene de las Radiaciones (CPHR) consistió en una muestra de cuarzo, seleccionada por su respuesta natural y posteriormente sensibilizada. Estas muestras fueron empacadas para que no recibieran luz y fueron irradiadas en el patrón secundario del CPHR a valores de dosis conocidos. Hasta la fecha han sido elaborados 4 lotes de muestras de referencia, el primero con muestras de 2 Gy, el segundo y tercero con muestras de 5 Gy y el cuarto con muestras de 5 y 30 Gy, este último para calibrar el sistema de calibración externa. La comparación entre la respuesta de las muestras de referencias nuestras de 5 Gy con las muestras de referencias de los laboratorios Riso, con una dosis de 4.8 Gy [8] da resultados satisfactorios.

La otra muestra de referencia utilizada para calibrar energéticamente el sistema espectrométrico y determinar la eficiencia del detector fue elaborada junto con el Centro de Isótopos (CENTIS). Una muestra de cuarzo na-

tural fue tratada químicamente hasta que su contenido radiactivo era inferior al límite de detección del sistema de bajo fondo. En base a esta muestra y a partir de una propuesta de actividad específica, se adicionaron cantidades específicas de fuentes radiactivas en solución de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs y ^{60}Co . La actividad de la muestra fue finalmente determinada en el sistema espectrométrico del CENTIS el cual tiene trazabilidad internacional.

Uno de los elementos típicos de los laboratorios de fechado es el laboratorio de preparación de muestras, un laboratorio con las condiciones para realizar de ataques químicos con la peculiaridad de que la iluminación es la de los cuartos de fotografía. En el CEADEN no existía un laboratorio que tuviese estas condiciones, por lo que fue necesario construir uno y equiparlo.

En el año 2013 estaban listas las condiciones básicas del laboratorio. En ese momento se decide buscar instituciones dentro de las áreas de la geología o la oceanología que pudieran tener interés en la técnica y comenzar el proceso de divulgación y capacitación. Dentro de todas las instituciones a las que se acudió, el Instituto de Geología y Paleontología (IGP) tuvo un especial interés de participar y a hasta el día de hoy se mantiene una fructífera colaboración entre las dos instituciones. En el año 2014 se realiza la primera campaña conjunta CEADEN-IGP para de toma de muestras en provincia de Pinar del Río. En fue utilizado por primera vez un dispositivo de toma de muestras nombrado MAMBI, desarrollado y construido en el CEADEN. Este dispositivo permitía tomar las muestras sin que estas sean expuestas a la luz (figura 5) y al mismo tiempo soportar los estreses mecánicos. Hasta la fecha se han realizado 5 campañas a lo largo del país y se dispone de cerca de 100 muestras a analizar.



Figura 5. Primera campaña de recolección de muestras.

Desarrollo científico del laboratorio

Parte importante del desarrollo científico del laboratorio ha estado relacionado con los desarrollos técnicos del proyecto. La complejidad individual de muchos de los elementos y la novedad en muchos casos requirió de estudios, procesos de optimización mediante simu-

lación y comprobación experimental. Dentro de estos estudios se destaca los estudios para el desarrollo del sistema estimulación óptica [9,10]. Estos trabajos también han tenido una amplia presentación en evento científicos nacionales e internacionales.

También han sido tratados temas de corte fundamental, en específico se ha venido estudiando una propuesta de mecanismo denominado deposición de carga en el cuarzo durante el proceso de irradiación natural, y su influencia en la señal luminiscente [11, 12, 13].

El laboratorio ha estado vinculado a la formación de jóvenes especialistas. En estos años 8 estudiantes de diferentes universidades han realizado su tesis bajo la dirección de los especialistas del laboratorio.

Conclusiones

En el desarrollo del laboratorio de fechado han participado muchos especialistas de varias instituciones del país. La colaboración internacional también ha sido determinante para alcanzar este resultado, que distingue a Cuba entre los pocos países latinoamericanos con un laboratorio de este tipo, y con la singularidad de haber trabajado en el desarrollo de equipamiento especializado. En el futuro cercano se prevé terminar los análisis de muestras que ha colectado el laboratorio. También pretende continuar con los estudios básicos relacionados con el proceso de deposición de carga.

Agradecimientos

Los autores desean expresar su agradecimiento a todos aquellos que de alguna forma contribuyeron al desarrollo del laboratorio de fechado. En especial queremos reconocer el aporte financiero del sistema de programas gestionado por la Agencia Nuclear y Tecnologías de Avanzadas (AENTA) sobre la base de la cual se desarrollo este proyecto.

Referencias bibliográficas

- [1]. HUNTLEY DJ, GODFREY-SMITH DI, THEWALT MLW. Optical dating of sediments. *Nature*. 1985; 313: 105-107.
- [2]. MURRAY AS, WINTLE AG. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiat. Meas.* 2000; 32: 57-73.
- [3]. BORTOLOTT VJ. A new modular high capacity OSL reader system. *Radiat. Meas.* 2000; 32(5-6): 751-757.
- [4]. BÖTTER-JENSEN L; BULUR E, DULLER GAT, MURRAY AS. Advances in luminescence instrument systems. *Radiat. Meas.* 2000; 32(5-6): 523-528.
- [5]. AITKEN MJ. *Thermoluminescence Dating*. London: Academic Press, 1985.
- [6]. BAILIFF IK, STEPANENKO VF, GÖKSU HY, et. al. The application of retrospective luminescence dosimetry in areas affected by fallout from the Semipalatinsk Nuclear Test Site: an evaluation of potential. *Health Physics*. 2004; 87(6): 625-641.
- [7]. FERRÁS HERNÁNDEZ CM, Quesada Hernández YL. Paquete de aplicaciones para la generación y análisis de secuencias de medición del lector LF02 [tesis de grado]. La Habana, Universidad de Ciencias Informáticas. Disponible en: <https://repositorio.uci.cu/jspui/handle/123456789/7102>
- [8]. HANSEN V, MURRAY AS, BUYLAERT JP, et. al. A new irradiated quartz for beta source calibration. *Radiat. Meas.* 2015; .81: 123-127.
- [9]. QUESADA I, OTAZO MR, BALLY L, GONZÁLEZ, Y. Design of a blue LED stimulation unit with a highly uniform illumination pattern. *Ancient TL*. 2004; 22 (2): 29-34.
- [10]. BALLY L, QUESADA I, OTAZO MR, GONZÁLEZ Y. Influence of non-uniformity of the stimulation source on quartz OSL signals. *Radiat. Meas.* 2006; 41(7-8): 787-789.
- [11]. BALLY L, MARTÍN G, QUESADA I, PADILLA F, ARTECHE R. Monte Carlo determination of the infinite matrix dose rate correction factors for 250 µm quartz and TLD500 chip. *Radiat. Meas.* 2015; 72: 23-30.
- [12]. AUTZEN M, MURRAY AS, GUÉRIN G, BALLY L, et. al. Luminescence dosimetry: Does charge imbalance matter? *Radiat. Meas.* 2018; 120: 26-32.
- [13]. BALLY L, QUESADA I, MURRAY AS, et. al. Modeling the charge deposition in quartz grains during natural irradiation and its influence on the optically stimulated luminescence signal. *Radiat Meas.* 2021; 142: 106564.

Recibido: 23 de enero de 2023

Aceptado: 17 de febrero de 2023

Los autores declaran que no existen conflictos de intereses en la realización, ni la comunicación del presente trabajo.

CRedit / Conceptualización: Luis Baly Gil, Raúl Arteché Díaz. **Curación de datos:** Teresita Cepero Chao, Héctor Lubián de Iraola, Inés Quesada Wiemann, Dania Rodríguez Nápoles. **Software:** Inés Quesada Wiemann, Raúl Arteché Díaz, Guido Martín, Fátima Padilla Cabal, Juan Carlos Gutiérrez Viera. **Supervisión:** Enrique Castellano Abella, Angelina Díaz García, Carlos M. Cruz Inclán, Antonio Leyva Fabelo. **Adquisición de fondos:** Piet Van Espen, María García Fernández, Ana Ester Cabal Rodríguez, Enrique Castellano Abella, Antonio Leyva Fabelo. **Validación:** Héctor Lubián de Iraola, Inés Quesada Wiemann, Teresita Cepero Chao, Dania Rodríguez Nápoles. **Investigación:** Héctor Lubián de Iraola, Inés Quesada Wiemann, Teresita Cepero Chao, Roberto Alfonso Denis Valle, Guido Martín Hernández, Raúl Arteché Díaz, Jossué Arteché Díaz, Fátima Padilla Cabal, Juan Carlos Gutiérrez Viera, Pilar Oropesa Verdecia, Javier Riberón Pena, Alexis Rosales Suárez, Armando Chávez Ardanza. **Visualización:** María García Fernández. **Metodología:** Héctor Lubián de Iraola, Iván Pupo González, Teresita Cepero Chao, Dania Rodríguez Nápoles. **Administración de Proyecto:** María García Fernández, Luis Baly Gil, Dania Rodríguez Nápoles. **Escritura – borrador original:** Luis Baly Gil. **Redacción – revisión y edición:** Luis Baly Gil.