

CÁLCULO DE LA ACTIVIDAD DE UNA MUESTRA DE URANIO IRRADIADA POR NEUTRONES TÉRMICOS PARA EL ANÁLISIS INICIAL EN PROTECCIÓN RADIOLÓGICA USANDO SIMULACIÓN MONTE CARLO

CALCULATION OF THE ACTIVITY OF AN URANIUM SAMPLE IRRADIATED BY THERMAL NEUTRONS FOR THE INITIAL ANALYSIS IN RADIOLOGICAL PROTECTION USING MONTE CARLO SIMULATION

Andrés F. Porras

Laboratorio de Investigación en Comustibles y Energía - LICE, Universidad Nacional de Colombia, Colombia

(Recibido: 05/2017. Aceptado: 10/2017)

Resumen

Para efectuar el análisis de protección radiológica y grado de peligrosidad de una práctica en una instalación que utiliza radiación ionizante, se realiza un análisis proveniente de cálculos computacionales, tanto de radiación *gamma* como neutrónica, que son las de mayor de mayor alcance y penetración. El objetivo es determinar la dosis que produce la interacción de estas radiaciones con la materia en los diferentes puntos de una instalación para una práctica de interés consistente en irradiar un gramo de dióxido de uranio en un flujo neutrónico de $10^{11} \text{ n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ durante 40 s.

Palabras clave: Neutrones, Protección radiológica, Uranio.

Abstract

To carry out the analysis of radiological protection and degree of danger of a practice in a facility that uses ionizing radiation, an analysis is made from computational

calculations, both of *gamma* and neutron radiation, which are those of greater reach and penetration. The objective is to determine the dose produced by the interaction of these radiations with matter at the different points of a facility for a practice of interest consisting in irradiating a gram of uranium dioxide in a neutron flux of 10^{11} n cm² s⁻¹ for 40 s.

Keywords: Neutrons, Radiological protection, Uranium.

Introducción

Los minerales son sustancias sólidas, naturales, de composición química definida, generalmente de origen inorgánico, pueden generar formas geométricas características [1] y tienen gran importancia por sus múltiples aplicaciones en los diversos campos de la actividad humana [2]. La industria moderna depende directa o indirectamente de los minerales para fabricar múltiples productos de la civilización moderna [3]; así, por ejemplo, de distintos tipos de cuarzo y silicatos, se produce el vidrio [4]; los nitratos y fosfatos se emplean como abono para la agricultura; ciertos materiales, como el yeso, se utilizan en la construcción y prácticamente todos los productos fabricados industrialmente contienen algún componente obtenido de los minerales [5].

El uranio en sus formas minerales más importantes como la pechblenda, uranita y cofinita [6] que con las debidas transformaciones físicas como la trituration y molienda y químicas como la concentración y enriquecimiento se convierte en mineral de interés estratégico de orden mundial a mediano y largo plazo con una creciente demanda [7].

El uranio se encuentra en la naturaleza como óxido con números de oxidación +4, +5 y +6, siendo el +4 y el +6 los más abundantes en la naturaleza [6], pero también se le puede encontrar como hidróxidos y sales.

A pesar que el uranio es un elemento escaso, su ocurrencia en la corteza terrestre es superior a la del bismuto, cadmio, mercurio y plata [8]; sin embargo, la relación entre la abundancia en

la corteza terrestre y la probabilidad de descubrir yacimientos económicamente importantes para su explotación es menos ocurrente por la dispersión y baja concentración en que está presente [9].

Para poder cuantificar las cantidades de éste elemento en un material existen diferentes técnicas analíticas [10]; sin embargo, las técnicas nucleares son mucho más confiables para su detección, esto implica, en algunos casos, irradiar la muestra con neutrones térmicos y convertirla en radiactiva. Para poder realizar una adecuada manipulación de dichas sustancias se debe hacer un análisis en protección radiológica para asegurar que el personal que realiza la manipulación se encuentra bajo los límites de radiación recibida permitidos [11].

Se puede realizar una comparación en protección radiológica de las medidas de tasa de dosis en un laboratorio con una simulación Monte Carlo que consiste en construir un modelo matemático de un problema físico en cuestión y tomar muestras modelo para obtener una respuesta aproximada del problema. El conjunto de eventos probabilísticos individuales que conforman un proceso se simulan en secuencia [12]. La herramienta más comúnmente utilizada para simular comportamientos de transporte de neutrones es el código GEANT4 que es un código de simulación mediante métodos de Monte Carlo del transporte de radiación para neutrones, fotones y electrones en una geometría definida por el usuario.

Cálculos para radiación γ incidente

La aproximación teórica al cálculo de la actividad de cada radionúclido durante el desarrollo del análisis de una muestra de uranio realizó tomando como base el análisis de diferentes muestras que ejemplifican la composición promedio en la corteza terrestre de matrices objeto de análisis como rocas, suelos y sedimentos. Para éste análisis se usaron las muestras de referencia certificadas IAEA 312 (muestra de suelo con altos contenidos de U, Th, y ^{226}Ra), CLB-1 (Carbón de la mina Lower Bakerstown, Estados Unidos) y NIST 950a (Óxido de uranio, 99.94% de pureza). Para la clasificación de la peligrosidad de la práctica,

se calculan las actividades de éstos materiales de referencia y se comparan con los niveles de exención aceptados internacionalmente [13]. Las actividades teóricas fueron calculadas a partir de la composición elemental certificada correspondiente a 1,0 g de muestra de referencia (masa a 1 g total), 40 segundos en una fuente de neutrones asumiendo valores de flujo neutrónico normales un reactor nuclear de investigación de baja potencia [14]. Para determinar la actividad teórica de cada radionúclido, se emplea la ecuación general de activación:

$$A = n_b N_A \Phi \sigma f (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1)$$

donde A es la actividad producida, en Bq; n_b equivale al número de moles del núclido blanco; N_A es el número de Avogadro; σ es la sección eficaz del núclido blanco, en barns (10^{-24} cm²); Φ es el flujo de neutrones térmicos, en n cm⁻² s⁻¹; f es equivalente a la abundancia isotópica del núclido blanco; λ es la constante de desintegración del núclido radiactivo formado y es igual a $\ln 2/T$; t es el tiempo de irradiación, en horas y T es el período de semidesintegración del radionúclido producido, en horas [15].

La actividad calculada de acuerdo con la ecuación 1 para cada material de referencia y radionúclido con su nivel de exención (actividad mínima para que el material no cause daño) se muestra en las Tablas 1, 2 y 6.

| Radioisótopo a analizar | Masa a 1 g total (mg) | Constante de dosis gamma (rem m ² h ⁻¹ Ci ⁻¹) | Actividad (Bq) | Valor D (TBq) | A/D |
|-------------------------|------------------------|---|------------------------|---------------|-----------------------|
| ²²⁶ Ra | 1,21*10 ⁻¹⁰ | 7,83*10 ⁻³ | 5,74*10 ⁻¹² | 0,07 | 8,2*10 ⁻²³ |
| ²³² Th | 0,0914 | 9,57*10 ⁻² | 9,11*10 ⁻³ | 8,0 | 1,1*10 ⁻⁹ |
| ²³⁸ U | 0,0165 | 1,34*10 ⁻¹ | 5,42*10 ² | 0,06 | 9,0*10 ⁻⁹ |
| Total | 0,1079 | – | 9,65*10 ³ | – | 1,02*10 ⁻⁸ |

TABLA 1. Actividad calculada de la muestra IAEA-312. NR: No Reportado.

El análisis de categorización de las fuentes obtenidas se realizó de acuerdo con lo estipulado en el documento *Categorización de Fuentes* de la Resolución 9-0874 de 2014 expedida por el Ministerio de Minas y Energía [11], en la cual se establece que para "prácticas

| Radioisótopo a analizar | Masa a 1 g total (mg) | Constante de dosis gamma (rem m ² h ⁻¹ Ci ⁻¹) | Actividad (Bq) | Valor D (TBq) | A/D |
|----------------------------|-----------------------------|---|----------------------|------------------|----------------------|
| ²³⁸ U | 999,4 | 1,34*10 ⁻¹ | 3,28*10 ⁷ | 0,06 | 5,5*10 ⁻⁴ |
| Total | 999,4 | – | 3,28*10 ⁷ | – | 5,5*10 ⁻⁴ |

TABLA 2. *Actividad calculada de la muestra NIST 950a.*

en donde existan varias fuentes que se encuentren muy próximas entre sí” (como ocurre en el caso de la práctica en cuestión), el conjunto de fuentes, para los fines de su categorización, será considerado como una sola fuente, utilizando la siguiente fórmula para su agregación”:

$$\left(\frac{A}{D}\right)_{Agregado} = \sum_{k=1}^m \frac{A_{i,k}}{D_k} \quad (2)$$

Donde $A_{i,k}$ es la actividad de cada fuente individual (i) de un radionúclido k, D_k es el valor D para el radionúclido k y m es el total de radionúclidos en la muestra a analizar.

La determinación de la categoría a la que pertenecería la práctica sigue los lineamientos establecidos en la Resolución 18-0052 de 2008 del Ministerio de Minas y Energía [11], teniendo en cuenta el cálculo de la razón entre la actividad del radionúclido (A) y el valor D (descrito anteriormente), lo cual permite establecer las cinco categorías relacionadas en la Tabla 3.

| Categoría | Proporción de actividad |
|-----------|--------------------------------------|
| 1 | $A/D \geq 1000$ |
| 2 | $1000 > A/D \geq 10$ |
| 3 | $10 > A/D \geq 1$ |
| 4 | $1 > A/D \geq 0,1$ |
| 5 | $0,01 > A/D$ y $A > \text{Exención}$ |

TABLA 3. *Límites de A/D para clasificar prácticas radiactivas [11].*

La Tabla 4 muestra los resultados de las actividades de los 3 patrones a un flujo neutrónico de $2,5 \cdot 10^{11} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ apreciando que, a las condiciones de flujo, tiempo de irradiación y distancia

dadas, los 3 estándares analizados poseen la categoría más baja de peligrosidad de fuentes radiactivas (categoría 5). Es importante notar que las categorías 4 y 5 no necesitan licencia de manejo de material radiactivo por parte de la entidad reguladora (que es el Servicio Geológico Colombiano), únicamente una autorización para realizar la operación y la demostración que no existe riesgo que merezca una categorización más alta para la práctica.

| Estándar | Valor A/D | Nivel de categorización |
|-----------|-----------------------|-------------------------|
| IAEA 312 | $1,02 \cdot 10^{-8}$ | 5 |
| CLB-1 | $4,57 \cdot 10^{-10}$ | 5 |
| NIST 950a | $5,5 \cdot 10^{-4}$ | 5 |

TABLA 4. Categorización de los estándares irradiados.

Cálculos Monte-Carlo para dosis de neutrones

Para realizar el cálculo de la dosis adquirida mediante neutrones debe conocerse su transporte en el sistema de interés aplicando el método de Monte Carlo para partículas con masa y encontrando su densidad (x) mediante la siguiente ecuación [16]:

$$x(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = C(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega} \rightarrow \vec{\Omega}, t) T(\vec{r}' \rightarrow \vec{r}, E, \vec{\Omega}) x'(\vec{r}', E', \vec{\Omega}', t) \quad (3)$$

En donde $x(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$ es la densidad de partículas que abandonan una fuente o emergen de una colisión en las coordenadas \vec{r} , dirección $\vec{\Omega}$, a un tiempo t y una energía E ; $C(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega} \rightarrow \vec{\Omega}, t)$ es un operador de colisión que indica que una partícula en las coordenadas \vec{r} , choca y cambia su dirección de $\vec{\Omega}'$ a $\vec{\Omega}$ y su energía de E' a E ; $T(\vec{r}' \rightarrow \vec{r}, E, \vec{\Omega})$ es el operador de transporte, que traslada una partícula desde una posición \vec{r}' hasta la nueva coordenada \vec{r} con una dirección $\vec{\Omega}$ a energía constante y el último término es la densidad de las partículas iniciales como se muestra esquemáticamente en la figura 1 [16].

El método comienza calculando mediante procesos aleatorios la probabilidad de que la partícula exista, consecuentemente se crea su energía, su posición y la dirección inicial de la trayectoria, tomando

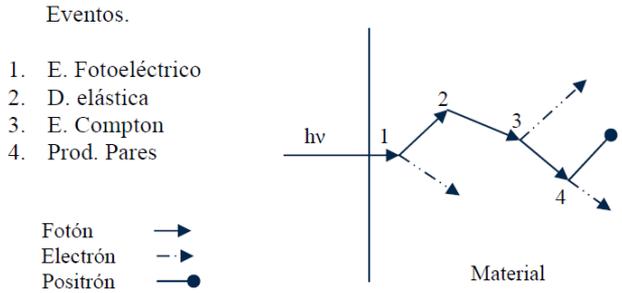


FIGURA 1. Esquema de la simulación de una secuencia de eventos neutrónicos.

en cuenta que las partículas son independientes entre sí. Posterior a ello, se simula la distancia libre media que recorre antes de interactuar y generar un tipo específico de colisión; la energía y la dirección de las partículas dispersadas también se simulan y se evalúa la totalidad del proceso hasta que alcanza una condición terminal depositando completamente la energía en el sistema.

Actualmente, existen muchos tipos de programas que realizan simulación de transporte de neutrones, uno de ellos es el código Geant4, el cual simula el mismo transporte de neutrones que MCNP, con la ventaja de que es software libre, a diferencia de MCNP que es licenciado. Estos programas permiten considerar distintos modos de simulación de transporte de partículas ya sea individuales o combinados. Las áreas específicas de aplicación incluyen protección radiológica y dosimetría, radiografía, física médica, seguridad nuclear, cálculos de flujos neutrónicos entre otros [17] calculándose numerosos parámetros de protección radiológica debido a la amplia variedad de análisis mundialmente reconocidos.

GAMOS es un ambiente de simulación basado en Geant4 el cual es fácil de usar ya que el lenguaje de secuencias de comandos integrales hace fácil poner en práctica los requisitos de una aplicación de física nuclear sin necesidad de codificación de C++ (que es el lenguaje madre de Geant4) [18]. El diseño modular simple, la documentación detallada y al conjunto de ejemplos y tutoriales facilitan la ampliación de las aplicaciones permitiendo explotar al máximo la flexibilidad de Geant4, mediante la creación de nuevo código de usuario [18].

| Isótopo | Masa a 1 g total (mg) | Constante gamma (rem m ² h ⁻¹ Ci ⁻¹) | Actividad (Bq) | Valor D (TBq) | A/D |
|-------------------|-----------------------------|--|------------------------|------------------|------------------------|
| ²³ Na | 0,23 | 1,94 | 4,08*10 ² | 20 | 2,0*10 ⁻¹¹ |
| ²⁶ Mg | 0,47 | 0,54 | 5,47*10 ² | NR | - |
| ²⁷ Al | 15,1 | 0,88 | 3,62*10 ⁶ | NR | - |
| ³⁰ Si | 25,1 | 4,8*10 ⁻⁴ | 1,22*10 ³ | 20 | 6,1*10 ⁻¹¹ |
| ⁴¹ K | 0,76 | 0,14 | 1,71*10 ² | 10 | 1,7*10 ⁻¹¹ |
| ⁴⁴ Ca | 2,2 | 2,99*10 ⁻⁸ | 2,22*10 ⁻¹⁵ | 100 | 2,8*10 ⁻¹⁵ |
| ⁴⁵ Sc | 0,002 | 1,17 | 6,95*10 ⁻¹ | 40 | 1,7*10 ⁻¹⁴ |
| ⁵⁰ Ti | 0,78 | 2,64*10 ⁻¹ | 1,67*10 ³ | NR | - |
| ⁵¹ V | 0,012 | 7,61*10 ⁻¹ | 2,01*10 ⁴ | NR | - |
| ⁵⁵ Mn | 0,008 | 0,92 | 8,75*10 ² | 20 | 4,4*10 ⁻¹¹ |
| ⁵⁸ Fe | 12,5 | 0,92 | 7,57*10 ⁻¹ | 10 | 7,6*10 ⁻¹⁴ |
| ⁵⁹ Co | 0,007 | 1,37 | 1,10*10 ⁻¹ | 30 | 3,7*10 ⁻¹⁵ |
| ⁶⁴ Ni | 0,0002 | 0,30 | 1,68*10 ⁻² | 20 | 8,4*10 ⁻¹⁶ |
| ⁶⁴ Zn | 0,024 | 0,33 | 3,95*10 ⁻² | 300 | 1,3*10 ⁻¹⁶ |
| ⁶⁸ Zn | 0,009 | 4,32*10 ⁻⁶ | 2,39*10 ¹ | 30 | 8,0*10 ⁻¹³ |
| ⁷¹ Ga | 0,003 | 1,46 | 6,55 | 20 | 3,3*10 ⁻¹³ |
| ⁸⁵ Rb | 0,004 | 0,054 | 4,07*10 ⁻² | 20 | 2,0*10 ⁻¹⁵ |
| ⁸⁷ Rb | 0,0014 | 0,32 | 2,14 | NR | - |
| ⁹³ Nb | 0,001 | 0,98 | 8,08*10 ⁻⁸ | 30 | 2,7*10 ⁻²¹ |
| ¹³⁰ Ba | 3,6*10 ⁻⁵ | 0,46 | 1,07*10 ⁻⁵ | 100 | 1,1*10 ⁻¹⁹ |
| ¹³² Ba | 3,4*10 ⁻⁵ | 0,45 | 5,16*10 ⁻⁷ | 70 | 7,4*10 ⁻²¹ |
| ¹³⁸ Ba | 0,024 | 0,028 | 4,26*10 ¹ | NR | - |
| ¹³⁹ La | 0,005 | 1,00 | 9,34 | 20 | 4,7*10 ⁻¹³ |
| ¹⁴⁰ Ce | 0,008 | 0,073 | 4,79*10 ⁻² | 20 | 2,45*10 ⁻¹⁵ |
| ¹⁴² Ce | 0,001 | 0,25 | 2,94*10 ⁻² | 20 | 2,9*10 ⁻¹⁵ |
| ¹⁴⁶ Nd | 8,6*10 ⁻⁴ | 0,14 | 6,62*10 ⁻³ | 40 | 1,7*10 ⁻¹⁶ |
| ¹⁴⁸ Nd | 2,8*10 ⁻⁴ | 0,30 | 0,193 | 10 | 1,9*10 ⁻¹⁴ |
| ²³² Th | 0,0014 | 9,57*10 ⁻² | 139 | 20 | 7,04*10 ⁻¹² |
| ²³⁸ U | 0,0005 | 1,34*10 ⁻¹ | 18,1 | 0.06 | 3,0*10 ⁻¹⁰ |
| ⁷⁵ As | 0,013 | 274*10 ⁻¹ | 34,4 | 10 | 3,4*10 ⁻¹² |
| ¹²¹ Sb | 0,0015 | 3,04*10 ⁻¹ | 7,25*10 ⁻¹ | 70 | 1,0*10 ⁻¹⁴ |
| Total | 60,0 | - | 3.65*10 ⁶ | - | 4.57*10 ⁻¹⁰ |

TABLA 6. Actividad calculada de la muestra CLB-1. NR: No Reportado.

La simulación del blindaje para la determinación del contenido de uranio por detección de neutrones se realizó mediante diseño de blindaje para neutrones y se realizó con el software GAMOS. Para las condiciones generales del archivo de entrada se consideran los siguientes aspectos:

- Cilindro de radio 3,5 cm y altura 3 cm que abarca la totalidad de la muestra. La figura 2 muestra la geometría cilíndrica del material que equivale al cilindro formado por 1 gramo de óxido del estándar NIST 950a.
- Cubo de aire de 7 cm³ que abarca a la totalidad de la muestra.

- Cubo de parafina borada que contiene al cubo de aire de 80 cm³.
- Universo definido como las dimensiones de una habitación común.

Para verificar que las condiciones iniciales están bien establecidas, se realiza la simulación con 1 solo evento (1 neutrón) asegurando que el archivo de entrada no tiene problemas y confirmando la geometría del sistema (figura 2).

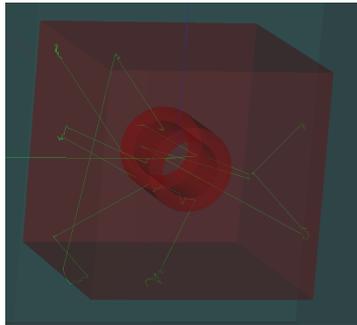


FIGURA 2. Verificación de geometría en GAMOS.

La simulación se realizó para distancia 0 (a contacto con el blindaje) y aumentando la medida cada 30 cm hasta llegar a la pared del cuarto. Los resultados de la simulación del proceso indican que la cantidad de neutrones simulada en el proceso (10000 con una energía inicial de 0,062 eV) no salen del blindaje de parafina borada como se muestra en la figura 3, lo que significa que un Trabajador Ocupacionalmente Expuesto (TOE) puede permanecer a poca distancia del blindaje y no recibir radiación proveniente de los neutrones emitidos por la muestra irradiada asegurando su protección lo cual es benéfico porque no se necesita programas de dosimetría de mayor categoría y complejidad.

Conclusión

La práctica tiene la menor peligrosidad radiactiva establecida por la autoridad reguladora dado que la parafina borada garantiza el blindaje para que ningún neutrón proveniente de la muestra irradiada salga del sistema asegurando al operador que realiza el análisis.

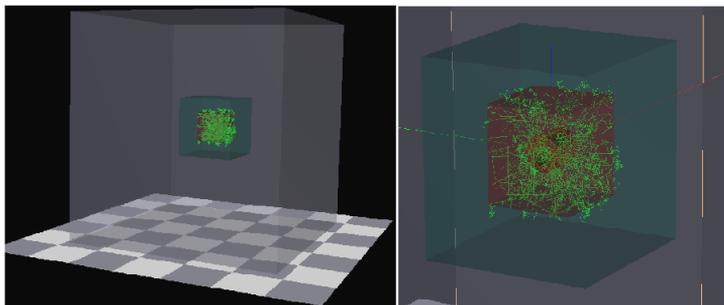


FIGURA 3. Resultados de la simulación.

El análisis de protección radiológica del sistema indica que la radiación γ y los neutrones emitidos de una muestra con contenidos altos y bajos de uranio (a las condiciones de irradiación y flujo de neutrones descritos en el artículo) están en la categorización 5 de peligrosidad de fuentes radiactivas que la hace inocua para su operación por sus bajos niveles de radiación γ ionizante.

Referencias

- [1] W. Phillips and N. Phillips, *Fundamentos de mineralogía para geólogos* (Limusa, 1986).
- [2] L. de Vallejo, *Ingeniería geológica*, Fuera de colección Out of series (Pearson Educación, 2002).
- [3] M. Rodríguez, J. Yélamos, and J. Robles, *Geología práctica: Introducción al reconocimiento de materiales y análisis de mapas*, Fuera de colección Out of series (Pearson Educación, 2007).
- [4] M. Groover, C. de la Peña Gómez, and M. Sarmiento, *Fundamentos de manufactura moderna: materiales, procesos y sistemas* (Pearson Educación, 1997).
- [5] E. Tarbuck and F. Lutgens, *Ciencias de la tierra: una introducción a la geología física*, Fuera de colección Out of series (Pearson Educación, 2005).
- [6] C. Álvaez Álvaez, M., *Yacimientos y Obtención de Uranio*, edited by S. de Publicaciones (Universidad de Oviedo, 1995).

- [7] J. Barquín and J. Gil, *Energía: técnica, economía y sociedad*, Colección Ingeniería (Universidad Pontificia Comillas, 2004).
- [8] A. Sanz and A. Onrubia, *Diccionario inglés-español sobre tecnología nuclear: glosario de términos* (TECNATOM, 2008).
- [9] A. J., *Informe de labores IAN 1989* (Instituto de Asuntos Nucleares, 1989).
- [10] A. F. P. Ríos, *Importancia de la adecuación de un laboratorio de neutrones retardados en Colombia para la exploración de uranio y protección radiológica en su manipulación y análisis*, Master's thesis, Universidad Nacional de Colombia - Sede Bogotá (2016), magister en Ciencias - Química. Línea de Investigación: Materiales y Energía.
- [11] M. de Minas y Energía, "Por medio de la cual se adopta el sistema de categorización de las fuentes radiactivas," (2008).
- [12] D. J. C. Mackay, "Introduction to monte carlo methods," in *Learning in Graphical Models*, edited by M. I. Jordan (Springer Netherlands, Dordrecht, 1998) pp. 175–204.
- [13] IAEA, *Aplicación de los conceptos de exclusión, exención y dispensa.*, Tech. Rep. (Guía de seguridad No. RS-G-1.7, 2007).
- [14] J. Sarta and L. Castiblanco, in *4th World TRIGA users Conference* (2008).
- [15] A. Travesi and Junta de Energía Nuclear (España) - Servicio de Publicaciones, *Análisis por activación neutrónica: teoría, práctica y aplicaciones*, Publicaciones Científicas (Servicio de Publicaciones de la J.E.N., 1975).
- [16] J. Gomez, *Diseño de un modelo digital en el programa MCNP para la simulación de la dosimetría de la fuente de cobalto-60 de la EPN y validación del mmodelo mediante dosimetría FRICKE*, Master's thesis, Escuela Politecnica Nacional (2013).
- [17] Los Alamos National Laboratory, "Monte carlo methods, codes, & applications group," (consultado en mayo del 2014).
- [18] CIEMAT, "Geant4-based architecture for medicine-oriented simulations," (Consultado en marzo de 2016.).