

Determinación de Actividad por Espectrometría Gamma de Radionucleídos Presentes en Tambores de Residuos Generados en Centrales Nucleares

Julio C. Aguiar y Jorge Fernandez

*Autoridad Regulatoria Nuclear. Laboratorio de Espectrometría Gamma.
Av. Del Libertador 8250, Ciudad Autónoma de Buenos Aires, Argentina.
jaguiar@cae.arn.gov.ar; jfernad@cae.arn.gov.ar.*

Resumen

La generación de residuos radiactivos en centrales nucleares como CNA I (Central Nuclear Atucha I) y CNE (Central Nuclear Embalse) hace que la medición de los radionucleídos sea una etapa previa a la gestión del residuo. Un método utilizado en las centrales nucleares es la espectrometría gamma con detectores HPGe, previa a la inmovilización del residuo en una matriz cementada, con esto se evita el contacto con los agentes exteriores y su posible dispersión al ambiente a corto plazo.

La ARN (Autoridad Regulatoria Nuclear) de Argentina realiza periódicamente intercomparaciones y evaluaciones de los sistemas de medición y procedimientos utilizados en las centrales nucleares para la correcta medición y determinación de actividad de residuos radiactivos por espectrometría gamma. En este trabajo se expone un método independiente de medición a las centrales nucleares.

Para determinar la actividad de los residuos por espectrometría gamma depositados en tambores, se requiere del conocimiento preciso de la curva de eficiencia para tal geometría y matriz.

Debido a que la ARN no cuenta con un patrón de estas características, se ha utilizado un modelo matemático para obtener dicha curva de eficiencia.

Para ello, es necesario determinar previamente: 1) la eficiencia geométrica o ángulo sólido sustentado por el sistema fuente-detector (tambor-detector) aplicando un modelo matemático descrito en este trabajo. 2) Estimar el factor de auto-atenuación que presentan los fotones en la matriz cementada, estos cálculos se realizan con una simple ecuación y son verificados con el programa MicroShield 6.10.

El contenedor comúnmente utilizado por estas centrales nucleares son tambores de 220 litros construido con acero SAE 1010 y con un espesor de 0.127 cm, con un peso aproximado de 7.73 Kg., diámetro interno de 57.1 cm, y altura: 87 cm.

Los resultados obtenidos hasta el momento registran una discrepancia de 5 a 10 % con relación a las mediciones realizadas por las centrales nucleares.

1. INTRODUCCIÓN

La medición de actividad de fuentes volumétricas es una práctica indispensable en instalaciones nucleares cuando se requiere evaluar la actividad de fuentes radiactivas con fines asociados a la radioprotección [1].

En este trabajo se presenta un método que permite determinar las curvas de eficiencias y por consiguiente la actividad presente en tambores de residuo radiactivo.

Una práctica común en espectrometría gamma es la utilización de patrones para tales fines [2]. La adquisición de un patrón con tales dimensiones impone un alto costo monetario debido a las complicadas técnicas de fabricación y a la indeseable generación de residuos radiactivos. Motivo por el cual la ARN ha decidido utilizar un método cuasi teórico para determinar estas curvas de eficiencias sin la necesidad de adquirir un patrón.

La determinación de la eficiencia para un tambor de residuo se logra posicionando la fuente puntual estándar conteniendo el mismo radionucleido en el "centro imaginario" del tambor.

Si consideramos que la fuente volumétrica es la suma de infinitas fuentes puntuales podemos estudiar a la fuente en forma de campo de radiación y obtener así el valor del ángulo sólido sustentado por el tambor en el espacio con respecto al detector [3].

Ya que la eficiencia del detector depende directamente de la energía del radionucleído, se ha utilizado fuentes puntuales, tales como: ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{137}Cs , cubriendo así, un amplio espectro de energías.

La eficiencia total de cualquier tipo de fuente se define como:

$$\varepsilon(E) = N_{det} / N_{emit} \cdot \quad (1)$$

Donde $\varepsilon(E)$ es la eficiencia para una energía dada, N_{det} es el número de cuentas colectado en el fotopico y N_{emit} son los fotones de energía E emitidos por la fuente [4].

Debido a que no siempre es posible colocar la fuente puntual a distancias muy grandes ya que la actividad de las fuentes estándares no son altas, es conveniente realizar varias mediciones alejándolas a la cara del detector para luego poder extrapolar a grandes distancias respetando la misma pendiente, ver figura 1.

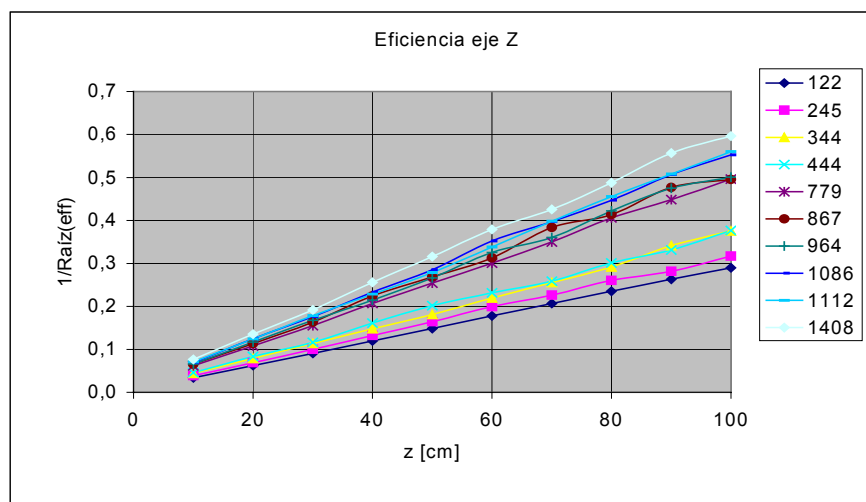


Figura 1. mediciones realizadas con fuentes puntuales a una distancia de 1 m.

En la figura 1 se observa el gráfico $1/\sqrt{\varepsilon(E)_p}$ en función a la distancia, donde $\varepsilon(E)_p$ representa la eficiencia para una fuente puntual a una dada distancia Z (cm) del detector. Cada una de estas pendientes representa las energías del ^{152}Eu . Por lo tanto, si medimos previamente una fuente puntual a la distancia equivalente al centro del tambor o extrapolando a esa distancia si fuera necesario, obtendremos el valor de la eficiencia para un diferencial volumen del tambor.

Una vez que obtenemos esa eficiencia podemos integrar matemáticamente en torno a todo el espacio que representa el tambor y obtener así la eficiencia volumétrica, como se puede observar en la ecuación (2).

$$\varepsilon(E)_V = \iiint_V \varepsilon(E)_p F_G F_{att} \quad (2)$$

Donde $\varepsilon(E)_V$ representa la eficiencia volumétrica, $\varepsilon(E)_p$ es la eficiencia puntual obtenida experimentalmente, y $F_G F_{att}$ son el factor geométrico de corrección y el factor de atenuación respectivamente.

El F_G representa el ángulo sólido sustentado por el tambor en cuestión y F_{att} es el factor de atenuación que sufren los fotones debido a la auto-absorción en la matriz o medio, recordemos que la matriz es cementada y que la fuente o residuo se encuentra uniformemente distribuida en el tambor. La densidad aproximada de la matriz es de 2.25 g/cm^3 , en un contenedor de acero SAE 1010 y espesor 0.127 cm con diámetro interno de 57.1 cm , y altura: 87 cm .

2. DESARROLLO TEÓRICO

El desarrollo teórico esta basado en determinar cada uno de los parámetros representados en la ecuación (2). Para poder utilizar esta ecuación es necesario conocer el factor geométrico F_G y el factor de atenuación F_{att} .

2.1. Cálculo de F_G o Angulo Sólido

Consideremos una fuente disco, que para nuestros propósitos representa la base del tambor, donde la actividad se encuentra distribuida uniformemente en toda la muestra. El flujo de fotones emitidos por la fuente disco al punto p_1 como muestra la figura 2, se encuentra dado por [5]:

$$\varepsilon(E)_a = \varepsilon(E)_p \int_A \frac{dA}{4\pi\rho^2} \quad (3)$$

Donde:

$$F_G = \int_A \frac{dA}{4\pi\rho^2} \quad (4)$$

$$dA = r dr d\theta$$

$$b^2 = d^2 + r^2 - 2rd \cos \theta$$

$$\rho^2 = h^2 + b^2 = h^2 + d^2 + r^2 - 2rd \cos \theta$$

$$\varepsilon(E)_a = \frac{\varepsilon(E)_p}{4\pi} \int_0^R \int_0^{2\pi} \frac{rdrd\theta}{h^2 + d^2 + r^2 - 2rd \cos \theta} \quad (5)$$

La solución de la ecuación (5) haciendo cambio de variables es:

$$\varepsilon(E)_a = \varepsilon(E)_p \frac{h^2}{4R_s^2} \ln \left[\frac{R_s^2 + (h/2)^2 - d^2 + \sqrt{(R_s^2 + (h/2)^2 - d^2)^2 + 4d^2(h/2)^2}}{2(h/2)^2} \right] \quad (6)$$

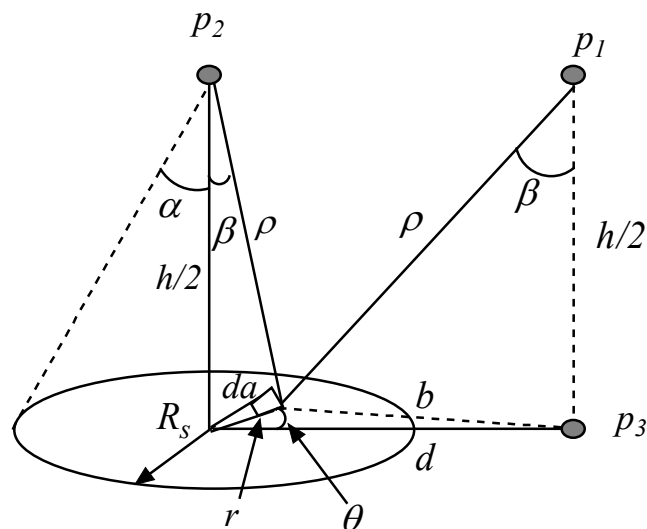


Figura 2. representa un disco de actividad uniformemente distribuida, y donde el da representa a la fuente puntual. El punto p_1 representa el detector que se encuentra a la altura $h/2$ respecto al tambor.

Si integramos la fuente disco desde $-h/2$ a $h/2$ obtendremos el volumen del cilindro.

$$\int_{-h/2}^{h/2} \varepsilon(E)_a dz = \int_{-h/2}^{h/2} \varepsilon(E)_p \frac{z^2}{4R_s^2} \ln \left[\frac{R_s^2 + (z/2)^2 - d^2 + \sqrt{(R_s^2 + (z/2)^2 - d^2)^2 + 4d^2(z/2)^2}}{2(z/2)^2} \right] dz \quad (7)$$

Esta integral es la suma de n discos que se puede resolver numéricamente pero no posee una solución cerrada. Para nuestros propósitos se llega a una buena aproximación (error menor al 3 %), utilizando la ecuación (6) considerando que la fuente se encuentra compuesta por 10 discos equidistantes en el volumen del tambor, como se muestra en la figura 3.

La fuente puntual es colocada a una distancia equivalente al centro del tambor para obtener así la eficiencia que corresponde a una fuente puntual $\varepsilon(E)_p$, como se dijo con anterioridad.

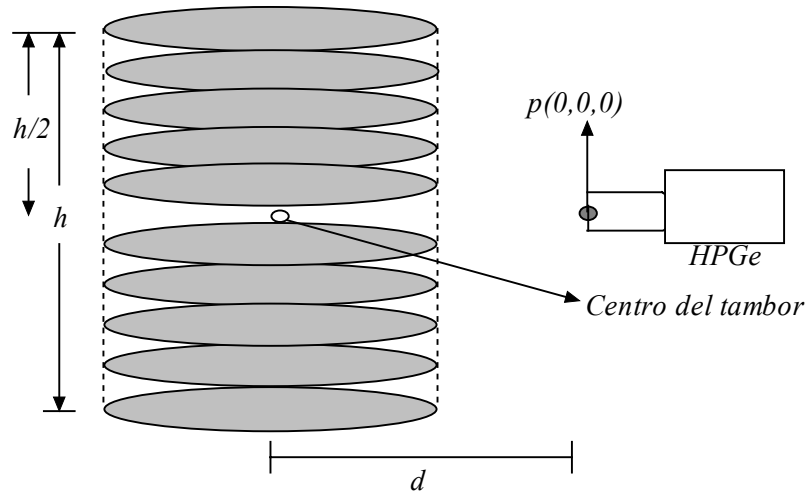


Figura 3. Se observa al tambor "imaginariamente" fragmentado.

Por lo tanto haciendo la sumatoria de los 10 discos utilizando la ecuación (6) podemos escribir:

$$\varepsilon(E)_V \approx \frac{\varepsilon(E)_p d^2}{5R^2} \ln \left[\frac{1}{18h^{10}} \left(15625 \left(R^2 + \frac{h^2}{100} - d^2 + \sqrt{\frac{d^2 h^2}{25} + \left(R^2 + \frac{h^2}{100} - d^2 \right)^2} \right) \right. \right. \\ \left. \left(R^2 + \frac{9h^2}{100} - d^2 + \sqrt{\frac{9d^2 h^2}{25} + \left(R^2 + \frac{9h^2}{100} - d^2 \right)^2} \right) \left(R^2 + \frac{4h^2}{25} - d^2 + \sqrt{\frac{16d^2 h^2}{25} + \left(R^2 + \frac{4h^2}{25} - d^2 \right)^2} \right) \right. \\ \left. \left(R^2 + \frac{h^2}{4} - d^2 + \sqrt{d^2 h^2 + \left(R^2 + \frac{h^2}{4} - d^2 \right)^2} \right) \left(h^2 - 25d^2 + 25 \left(R^2 + \sqrt{\frac{4d^2 h^2}{25} + \left(R^2 + \frac{h^2}{25} - d^2 \right)^2} \right) \right) \right) \right] \quad (8)$$

Donde R es el radio del cilindro, h la altura del cilindro y d la distancia del centro del cilindro a la cara del detector.

2.2. Cálculo de F_{att} Factor de Atenuación por Blindaje

El factor de atenuación se define como la relación o cociente entre la tasa de fluencia de un medio blindante y otro no blindante.

Para el cálculo del factor de atenuación utilizamos dos métodos: 1) solución numérica utilizando del programa MicroShield 6.10.

2) Solución matemática utilizando la literatura existente.

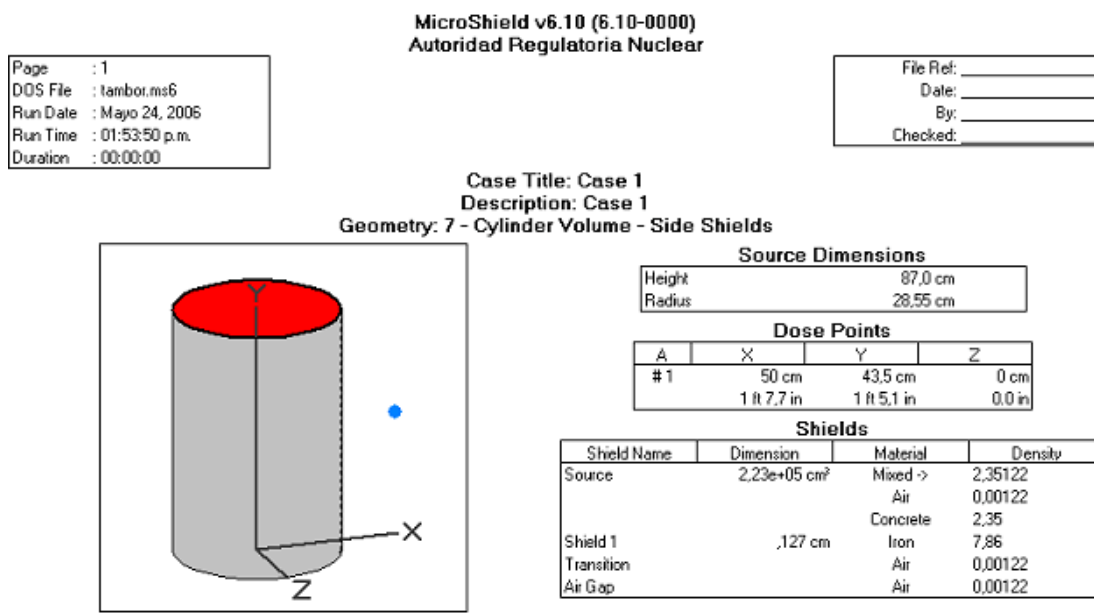


Figura 4. Se observa los datos geométricos de entrada para el cálculo de blindaje utilizando el programa MicroShield 6.10.

Para calcular el factor de atenuación utilizamos como parámetro de entrada cualquier actividad de radionucleídos en el programa MicroShield 6.10 ya que este factor es independiente de la actividad de la fuente, así el factor se define como:

$$F_{att} = \frac{\Phi_{ca}}{\Phi_{sa}} \quad (9)$$

Donde Φ_{ca} es el flujo de fotones de una determina energía con atenuación, y Φ_{sa} es el flujo cuando el medio blindante es el aire o "sin atenuar".

A continuación y a modo de ejemplo se presentan algunos de los factores obtenidos con el programa MicroShield 6.10.

Tabla I. Factores de atenuación calculado con el programa MicroShield 6.10

Radionucleído	E(KeV)	Φ_{ca} ($\gamma/cm^2.s$)	Φ_{sa} ($\gamma/cm^2.s$)	F_{att}
Co-60	1332	1,29E+04	8,66E+04	1,49E-01
Co-60	1173	1,39E+04	8,69E+04	1,60E-01
Cs-137	662	8,16E+03	7,28E+04	1,12E-01

Un valor similar se puede obtener a partir de la ecuación presentada en la literatura ya existente [4, 6, 7, 8,]:

$$F_{att} = \frac{8}{3\pi} \mu R - \frac{1}{2} \mu^2 R^2 \quad \text{para } \mu R < 1 \quad (10)$$

Donde μ es el coeficiente de atenuación dependiente de la energía del fotón en el medio, con dimensiones de $1/cm$. Y R el radio del cilindro.

3. EQUIPAMIENTO Y MEDICION

El equipamiento utilizado ha sido una cadena portátil, compuesta por un detector de Germanio HP (40 %), un Multicanal, y una computadora personal portátil, apto para mediciones *in situ*.

A todo el sistema se le ha incorporado un sistema manual de movilidad que nos permite variar la altura y distancia en el posicionamiento del detector.

Luego de coleccionar el espectro proveniente del tambor de residuo durante cierto tiempo es necesario determinar la actividad del mismo. Para ello se integra el área del fotopico a analizar y se extrae las cuentas por segundos. Luego de determinar los factores de corrección tanto geométricos como de atenuación aplicamos la siguiente ecuación.

$$A = \frac{N_{cps}}{\varepsilon(E)_V} F_G F_{att} \quad (11)$$

Donde A es la actividad de la muestra a medir y N_{cps} es el número de cuentas por segundo registrados en el fotopico.

4. CONCLUSIONES

Hasta ahora se han medido varios tambores cementados, las distancias de medición (detector-centro de la fuente) varían entre 1 a 6 m dependiendo la actividad del tambor. Resultando ser más precisa en la práctica esta última distancia ya que el error es más pequeño debido a que $\varepsilon(E)_p \approx \varepsilon(E)_V$.

Las curvas de eficiencias obtenidas a través de las fuentes puntuales estándar nos ha proporcionado la herramienta necesaria para determinar la actividad de los tambores, utilizando la ecuación (8). Experimentalmente no se observan los efectos indeseados como la disminución del conteo en el fotopico debido a la atenuación de la capa muerta del detector y/o del espesor de aluminio que envuelve el cristal para energías mayores a los 300 KeV. Por lo tanto, el flujo de fotones colectados sigue la ley de la inversa del cuadrado de la distancia independientemente del ángulo de incidencia de los fotones, lo que hace factible poder integrar matemáticamente en torno al volumen del tambor [3].

Los cálculos de blindajes realizados con el programa MicroShield 6.10 nos ha proporcionado mejores resultados que utilizando la ecuación (10). La discrepancia entre la solución para el factor de atenuación presentado por el programa MicroShield 6.10 y la ecuación (10) es de 5 % para fotones mayores a los 400 KeV, este error aumenta a menor energía ya que μR toma valores mayores o cercanos a 1.

Los resultados obtenidos hasta el momento fueron corroborados con los datos obtenidos de las mediciones hechas en las centrales nucleares observando una discrepancia de 5 al 10 %.

Las mediciones hechas por CNA I y CNE no presentan grandes inconvenientes de atenuación y geometría ya que estos residuos son medidos en forma de barras en pequeños volúmenes antes de su incorporación al tambor, con lo cual, presupone que estas mediciones deben ser más precisas que los realizados por la ARN. El valor de esta práctica no radica en la precisión de la medición, si no, en poder contar con un sistema propio capaz de corroborar los informes elevados por estas centrales a la ARN.

AGRADECIMIENTOS

Los autores desean agradecer la colaboración del personal del AGE Area Gestión de Ezeiza, especialmente al Ing. Anibal Coppo. Al Ing. Eduardo Grassi por su participación en las mediciones y al Lic. Eduardo Quintana por la dirección del proyecto.

REFERENCIAS

1. Saegusa J., et al. Determination of Gamma-ray Efficiency curves for volume samples by the combination of Monte Carlo simulations and point source calibration. *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*. **37**, N°12 P.1075-1081 (2000).
2. Korun, M. and Martincic, R. Efficiency calibration of gamma-ray spectrometers for volume-source geometry. *Appl. Radiat. Isot.* **43**, 29-35 (1992).
3. Aguiar, J.; Galiano E. and Fernandez, J. Peak efficiency calibration for attenuation corrected cylindrical sources in gamma ray spectrometry by the use of a point source. *Appl. Radiat. Isot.* In Press (2006).
4. Debertin, K. and Helmer, R.G. *Gamma and x-ray spectrometry with semiconductor detectors*. North-Holland, Amsterdam (1988).
5. Kenneth R. Kase and Walter R. Nelson. *Concepts of radiation dosimetry*. Pergamon Press, p. 111-112 (1978).
6. Dickens, J.K. Self absorption of gamma rays produced in large cylindrical samples. *Nucl. Inst. Meth.* **98**, 451-454 (1972).
7. Evans R.D. and Evans R. O. Studies of self-absorption in gamma ray sources. *Rev. of Mod. Phys.* **20**, N° 1, P. 305-326 (1948).
8. Clifford C Paterson et al. An Investigation of Radium Luminous Compound. *Proc. Phys. Soc. London* **29** P. 215-249 (1916).