

Determinación de los parámetros de un reactor nuclear necesarios para obtener radioisótopos con actividad exenta

José Ródenas Diago, Salvador Aledó Cuenca

Empresa: Universitat Politècnica de València (UPV)

Dirección: Dpto. de Ingeniería Q. y Nuclear, Edificio 5i, Camino de Vera s/n E-46022 Valencia

Teléfono: 963877631

E-mail: jrodenas@iqn.upv.es

Resumen –El uso de radionucleidos como marcadores en un proceso industrial es muy útil. El producto marcado debe contener una actividad por debajo de los valores exentos para que pueda considerarse después del proceso como un residuo convencional. Además, la dosis potencialmente recibida por los trabajadores durante el proceso tiene que estar por debajo de los límites, ya que no trabajan en zona controlada. El objetivo de este trabajo es analizar la influencia de varios parámetros en una activación neutrónica. El código MCNP, basado en el método Monte Carlo, se ha utilizado para simular la activación de diferentes materiales en un reactor nuclear de investigación. La producción de Na-24, Mo-99 y Sb-124 mediante reacciones (n, γ) se ha simulado evaluando los parámetros que influyen en la actividad generada que deberá ser exenta según la legislación vigente. Los resultados permiten verificar que es posible utilizar la activación neutrónica para obtener Na-24, Mo-99 y Sb-124 con actividades exentas, siempre que se ajusten los parámetros analizados.

1. INTRODUCCIÓN.

El uso de radionucleidos como marcadores es un método común para analizar algunas características de un proceso industrial. Implica la introducción de una sustancia radiactiva en un sistema, modificándolo lo menos posible, para medir algunas de sus propiedades aprovechando la fácil detección de la sustancia introducida [1, 2]. Además, los trazadores radiactivos tienen la ventaja de desaparecer del medio ambiente por desintegración tras varios periodos de semidesintegración. Sin embargo, los radionucleidos utilizados son generalmente caros y tienen disponibilidad limitada.

El marcador ideal no debe interactuar con el medio, ni alterar sus propiedades fisicoquímicas, ni contaminarlo permanentemente. También debe ser estable química y biológicamente. Debe ser fácil de manejar, fácil de obtener, detectable en pequeñas cantidades y con alta solubilidad. Es muy importante hacer una buena elección del radionucleido que se utilizará para cada aplicación.

Uno de los métodos más utilizados para obtener radionucleidos para ser usados como trazadores es la activación neutrónica. La actividad generada debe estar por debajo de los valores exentos para que el producto marcado pueda considerarse como un residuo convencional. Además, la dosis potencialmente recibida por los trabajadores durante el proceso debe estar por debajo de los límites, ya que no trabajarán en zona controlada. En este trabajo, se analiza la influencia de varios parámetros en la actividad obtenida en una activación neutrónica para que la actividad generada esté por debajo de los valores exentos [3].

Durante los cursos de Radioprotección en la Universitat Politècnica de València (UPV), se proponen habitualmente varios ejercicios para estudiar la activación neutrónica [4]. Los estudiantes deben calcular la actividad generada en un reactor nuclear cuando se irradia una muestra. Con este objetivo, deben analizar las reacciones nucleares inducidas por los neutrones.

El primer autor de este trabajo ha publicado varios artículos relacionados con el tema. Estimación de la actividad generada por activación neutrónica en las barras de control de un BWR [5, 6]. Cálculo de la tasa de dosis producida por las barras de control descargadas del núcleo de un BWR en la piscina de combustible irradiado [7]. Se propuso una reducción de esta dosis, cambiando la

posición de las barras de control irradiadas [8]. Se publicó otro artículo donde se analizó la activación neutrónica de una muestra de acero inoxidable en un reactor nuclear de entrenamiento [9].

Esta ponencia se basa en el trabajo preliminar desarrollado por un alumno de Ingeniería Energética en la UPV, para su Trabajo Final de Grado [10]. El estudio consideró datos de mediciones realizadas hace muchos años durante un proyecto desarrollado en IRISIB, Bruselas (Bélgica) para un motor Diesel. Los resultados de ese proyecto fueron enviados recientemente al autor por comunicación privada [11]. En ese trabajo, trataron de controlar las partículas que escapan del filtro midiendo la actividad del compuesto marcado. Se agregaron al aceite del motor, aditivos marcados con Na-24, Mo-99 y Sb-124, obtenidos por activación neutrónica. Dicha activación neutrónica se ha simulado utilizando el código MCNP, basado en el método Monte Carlo [12]. Se han analizado algunos parámetros, como la potencia del reactor, el tiempo de irradiación, el tiempo de enfriamiento y el volumen de muestra, para ajustar sus valores de modo que se obtengan actividades exentas.

2. METODOLOGÍA.

Para estimar la actividad generada en una reacción con neutrones, se debe calcular la velocidad de reacción Q (reacciones/cm³-s).

$$Q = C \int \Phi(E) \sigma(E) dE \quad (1)$$

Siendo C (átomos/barn-cm) un factor de normalización que depende de la concentración del blanco y es equivalente a su densidad atómica. $\Phi(E)$ es el flujo de neutrones (n/cm²-s); y $\sigma(E)$ la sección eficaz microscópica (barn) de la reacción.

Para cada radionucleido Y generado en la reacción, se puede plantear un balance de materia:

$$\frac{dY}{dt} = Q - \lambda_Y Y \quad (2)$$

Si en cada reacción se produce un solo núcleo de Y , la ecuación (2) permite obtener, una vez integrada, la concentración de Y (núcleos/cm³). Multiplicando por la constante de desintegración λ_Y y teniendo en cuenta el tiempo de irradiación t_i y el tiempo de enfriamiento t_c , se puede obtener la actividad volumétrica (Bq/cm³) generada (ecuación 3) que habrá que multiplicar por el volumen de muestra V para tener la actividad total. La actividad máxima será el valor asintótico, Q (multiplicado por el volumen de muestra V), considerando un tiempo de irradiación muy largo ($\sim \infty$) y despreciando el tiempo de enfriamiento.

$$A_Y(t) = Q \left(1 - e^{-\lambda_Y t_i} \right) e^{-\lambda_Y t_c} \quad (3)$$

Un código de Monte Carlo como MCNP puede calcular el flujo de neutrones $\Phi(E)$ a partir de la fuente de neutrones y sus características: geometría, dimensiones, materiales, etc. Los valores de $\sigma(E)$ para los materiales involucrados en las reacciones consideradas se extraen de las bibliotecas del código. Si se proporcionan valores de C , las velocidades de reacción Q se calculan a partir de la ecuación (1) para cada caso considerado. MCNP utiliza un *tally* F4 para este tipo de problema con una tarjeta multiplicadora FM4 que incluye los valores de C , el identificador del material X y el identificador de la reacción.

Todos los *tallies* obtenidos con MCNP están normalizados por partícula de partida. Por lo tanto, la actividad se calcula por partícula emitida, neutrones en este caso. Como la ecuación (2) necesita Q en núcleos/cm³-s, la ecuación (1) debe calcular Q por unidad de volumen (reacciones/cm³-s) utilizando el flujo Φ (neutrones/cm²-s). Sin embargo, el *tally* F4 da fluencia (neutrones/cm²), por lo que es necesario considerar la población instantánea de neutrones \dot{N} (neutrones/s) que se puede calcular con la ecuación (4).

$$\dot{N} = \bar{p} c v \quad (4)$$

Dónde \bar{P} es la potencia media (W); c es igual a $3,12 \text{ E}+10$ fisiones/W-s; y v es el número medio de neutrones emitidos por fisión, igual a 2,47 para U-235. Por lo tanto, la actividad final (en Bq) será el producto de las ecuaciones (3) y (4) multiplicado por el volumen de muestra V . Es decir:

$$A_{\text{Ytotal}}(t) = A_{\text{Y}}(t) \dot{N} V \quad (5)$$

Se utilizaron tres elementos, Na, Mo y Sb, para la experiencia en el IRISIB [11]. Sus características más significativas se listan en la tabla 1. El sodio está compuesto de Na-23 al 100%, por lo que la única reacción de activación posible es Na-23 (n, γ) Na-24. El molibdeno está compuesto por siete isótopos. Hay varias reacciones posibles de activación neutrónica, pero después de descartar radionucleidos con periodos cortos y reacciones menos probables, el estudio se centró en la reacción Mo-98 (n, γ) Mo-99. El antimonio tiene dos isótopos: Sb-121 y Sb-123. Las dos posibles reacciones de activación son similares, pero se optó por la reacción Sb-123 (n, γ) Sb-124 porque el Sb-124 tiene un periodo más largo. La captura radiativa es la reacción más probable con neutrones térmicos en todos los casos. Las actividades exentas según las reglas del CSN [3] también se enumeran en la tabla 1.

La actividad generada es directamente proporcional a la potencia del reactor, como se desprende de las ecuaciones (4) y (5). Por lo tanto, el valor de la potencia, la población neutrónica de hecho, es crucial para obtener una determinada actividad. Existe una gran variedad de reactores con diferentes potencias. Sin embargo, para obtener una actividad exenta se debe utilizar una potencia baja. Por lo tanto, es aconsejable un reactor de investigación, con potencias que no excedan de 1 kW e incluso reactores con una potencia media del orden de unos pocos vatios o una fuente de neutrones como Am-Be. La activación de neutrones se realizó en un reactor nuclear de investigación para Mo y Sb, mientras que el Na se activó en un irradiador con una fuente Am-Be.

Tabla 1. Características de los elementos elegidos para la experiencia.

	Na		Mo		Sb	
Densidad (g/cm ³)	0,968		10,28		6,697	
Abundancia isotópica natural	Na-23	100%	Mo-92	14,53%	Sb-121	57,21%
			Mo-94	9,15%	Sb-123	42,79%
			Mo-95	15,84%		
			Mo-96	16,67%		
			Mo-97	9,6%		
			Mo-98	24,39%		
			Mo-100	9,82%		
Reacción de activación	Na-23 (n, γ) Na-24		Mo-98 (n, γ) Mo-99		Sb-123 (n, γ) Sb-124	
Periodo de semidesintegración	14,997 h	Na-24	65,976 h	Mo-99	60,2 d	Sb-124
Actividad exenta	Na-24	0,1 MBq	Mo-99	1 MBq	Sb-124	1 MBq

La variación de la actividad con el volumen de la muestra también es lineal (ecuación 5). Por lo tanto, se pueden hacer consideraciones similares. Sin embargo, la masa de los radionucleidos utilizados como marcadores suele ser pequeña. En consecuencia, también se considerarán pequeños volúmenes de muestra, del orden de 1 cm³ o incluso menores.

El equilibrio, es decir, el valor asintótico de la actividad, se alcanza después de unas 50 horas de irradiación para el Na-24, mientras que es necesario alrededor de 200 horas para el Mo-99 y más

de 180 días para el Sb-124. En cuanto al tiempo de enfriamiento, debe ser muy corto para el Na-24 debido a su corto periodo. Por esta razón, es preferible una irradiación no muy lejos del sitio donde se usa el marcador y se utilizó un irradiador de Am-Be. Para Mo-99, un tiempo de enfriamiento de 200 horas disminuirá la actividad obtenida por un factor de 10. Sb-124 tiene un periodo más largo, por lo que el tiempo de enfriamiento no tiene influencia práctica en la actividad generada. Para analizar la posibilidad de obtener actividades exentas, se han variado de modo independiente estos cuatro parámetros para cada reacción.

3. RESULTADOS.

En primer lugar, se analiza la variación de la potencia de 0 a 50 vatios. Se han incluido dos volúmenes diferentes, 0,1 y 1 cm³ en el análisis. El tiempo de irradiación se ha establecido en 24 horas y el tiempo de enfriamiento en 12 horas. Los resultados se presentan en la Tabla 2.

Para Na-24 es posible obtener actividades exentas para $P \leq 1$ W y 0,1 cm³ de volumen, pero para un volumen de muestra de 1 cm³ la potencia debe ser inferior a 0,1 W. Para Mo-99 se puede obtener una actividad exenta con un volumen de 0,1 cm³ cuando $P < 10$ vatios, mientras que P debe ser inferior a 1 W si el volumen es de 1 cm³. Finalmente, para Sb-124 y el volumen pequeño, se puede generar una actividad exenta para cualquier potencia en el rango analizado, mientras que para el volumen de 1 cm³ sólo es posible para una potencia inferior a 10 W.

Tabla 2. Actividades (Bq) obtenidas variando la potencia del reactor.

P (W)	0,1 cm ³			1 cm ³		
	Na-24	Mo-99	Sb-124	Na-24	Mo-99	Sb-124
0	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
1	9,05E+04	1,43E+05	1,55E+04	9,05E+05	1,43E+06	1,55E+05
2	1,81E+05	2,87E+05	3,10E+04	1,81E+06	2,87E+06	3,10E+05
5	4,52E+05	7,17E+05	7,76E+04	4,52E+06	7,17E+06	7,76E+05
10	9,05E+05	1,43E+06	1,55E+05	9,05E+06	1,43E+07	1,55E+06
20	1,81E+06	2,87E+06	3,10E+05	1,81E+07	2,87E+07	3,10E+06
30	2,71E+06	4,30E+06	4,66E+05	2,71E+07	4,30E+07	4,66E+06
40	3,62E+06	5,74E+06	6,21E+05	3,62E+07	5,74E+07	6,21E+06
50	4,52E+06	7,17E+06	7,76E+05	4,52E+07	7,17E+07	7,76E+06

Tabla 3. Actividades (Bq) obtenidas variando el volumen de muestra.

V (cm ³)	P = 1 W			P = 2 W		
	Na-24	Mo-99	Sb-124	Na-24	Mo-99	Sb-124
0	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
1	9,05E+05	1,43E+06	1,55E+05	1,81E+06	2,87E+06	3,10E+05
2	1,81E+06	2,87E+06	3,10E+05	3,62E+06	5,74E+06	6,21E+05
3	2,71E+06	4,30E+06	4,66E+05	5,43E+06	8,61E+06	9,31E+05
4	3,62E+06	5,74E+06	6,21E+05	7,24E+06	1,15E+07	1,24E+06
5	4,52E+06	7,17E+06	7,76E+05	9,05E+06	1,43E+07	1,55E+06

Para los mismos valores de tiempo de irradiación (24 h) y tiempo de enfriamiento (12 h), la variación del volumen de la muestra entre 0 y 5 cm³ se ha analizado considerando dos valores de la potencia, 1 y 2 W. Los resultados se pueden ver en la tabla 3. Sólo para Sb-124 se puede obtener una actividad exenta. Para cualquiera de los volúmenes considerados si la potencia es de 1 W, pero solo para volúmenes menores de 4 cm³ si la potencia es de 2 W.

Manteniendo una potencia de 1 W y un volumen de muestra igual a 0,1 cm³, se analiza ahora la variación del tiempo de irradiación, despreciando el tiempo de enfriamiento. Los resultados están en la Fig. 1. Para Mo-99 y Sb-124 se puede obtener una actividad exenta con un tiempo de irradiación de hasta 100 horas, mientras que para Na-24 el tiempo máximo de irradiación, sin tiempo de enfriamiento, es de 10 horas debido al límite más bajo de su actividad exenta.

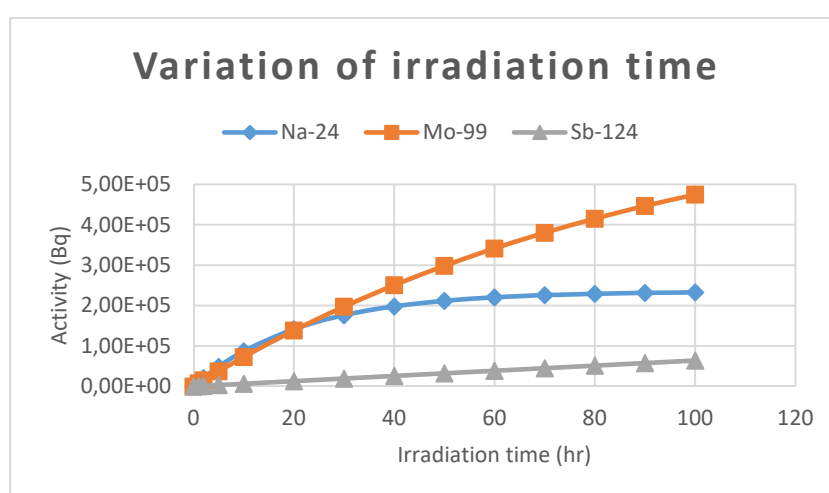


Figura 1. Variación de la actividad con el tiempo de irradiación.

Finalmente, se realiza una variación del tiempo de enfriamiento en el rango de 0-50 horas para P = 1 W, V = 0,1 cm³ y un tiempo de irradiación igual a 24 horas. Los resultados se muestran en la Fig. 2. Para Mo-99 y Sb-124 se puede obtener una actividad exenta en todo el rango analizado. Sin embargo, para Na-24 el tiempo de enfriamiento debe ser de igual o superior a 10 horas.

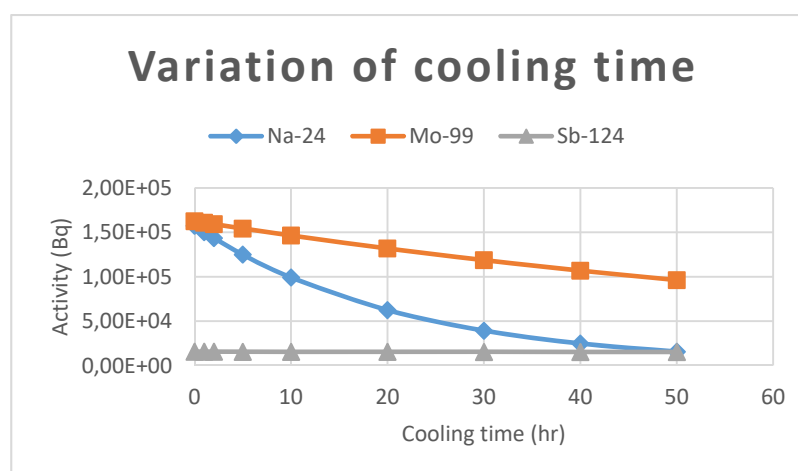


Figura 2. Variación de la actividad con el tiempo de enfriamiento.

En los siguientes párrafos, se realiza un análisis separado para cada radionucleido generado, considerando los valores de los parámetros más adecuados para obtener una actividad exenta.

3.1. Irradiación de sodio.

Debido al periodo corto del Na-24, la irradiación de sodio se realizó con una fuente Am-Be de 5 Ci que emitía 107 n/s. La masa del aditivo que contiene Na-24 utilizado en el proyecto IRISIB [11] fue de 319 g, lo que supone un volumen de 330 cm³. Es un volumen bastante grande, pero el corto periodo del Na-24 implica que se puede obtener una actividad exenta con tiempos de irradiación no demasiado largos y tiempos de enfriamiento cortos. La irradiación se realizó en el laboratorio nuclear no muy lejos del taller mecánico donde tuvo lugar la experiencia.

El Na-24 tiene un límite de exención menor que Mo-99 y Sb-124, por lo que tendrá valores más pequeños para los parámetros estudiados. Como la población de neutrones y el volumen son fijos para esta irradiación, solo se estudiará una variación de tiempos. La variación de la actividad de Na-24 con el tiempo de irradiación se presenta en la Fig. 3 para tres tiempos de enfriamiento diferentes: 0, 1 y 3 horas.

De esta figura, se puede deducir que es posible producir una actividad exenta de Na-24 con tiempos de irradiación inferiores a 100 horas y un tiempo de enfriamiento de 1 o 3 horas.

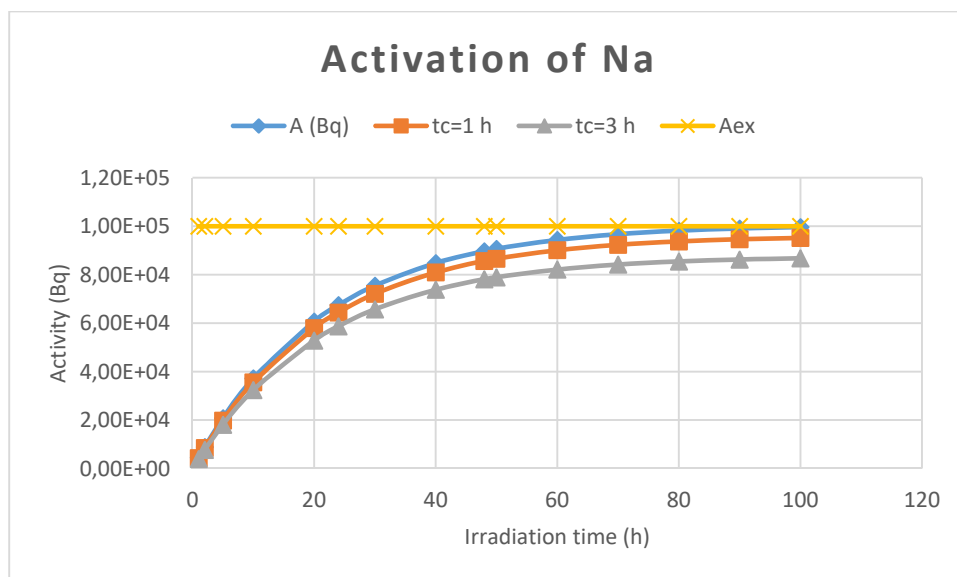


Figura 3. Variación de la actividad de Na-24 con el tiempo de irradiación.

3.2. Irradiación de molibdeno.

Para obtener Mo-99, se ha considerado un volumen de Mo igual a 0,85 cm³ con tres valores diferentes de la potencia del reactor: 2, 50 y 1000 W. El tiempo de enfriamiento no es importante debido al periodo de semidesintegración del Mo-99. Para los valores más altos de la potencia, 50 W y 1 kW, no es posible obtener actividades exentas, incluso considerando un tiempo de enfriamiento. Para la potencia más baja considerada, 2 W, se puede obtener una actividad exenta con tiempos de irradiación inferiores a 8 horas. Por lo tanto, si la potencia es mayor, será necesario un volumen menor. Los resultados se pueden ver en la Tabla 4.

Tabla 4. Actividades (Bq) de Mo-99 para tres potencias variando el tiempo de irradiación.

t_i (hr)	$P_1 = 2 \text{ W}$	$P_2 = 50 \text{ W}$	$P_3 = 1 \text{ kW}$	A_{ex}
1	1,30E+05	3,24E+06	6,48E+07	1,00E+06
2	2,58E+05	6,45E+06	1,29E+08	1,00E+06
3	3,85E+05	9,63E+06	1,93E+08	1,00E+06
4	5,11E+05	1,28E+07	2,55E+08	1,00E+06
5	6,35E+05	1,59E+07	3,18E+08	1,00E+06
6	7,58E+05	1,90E+07	3,79E+08	1,00E+06
7	8,80E+05	2,20E+07	4,40E+08	1,00E+06
8	1,00E+06	2,50E+07	5,00E+08	1,00E+06
9	1,12E+06	2,80E+07	5,60E+08	1,00E+06
10	1,24E+06	3,09E+07	6,19E+08	1,00E+06

3.3. Irradiación de antimonio.

Para la irradiación de antimonio, el volumen se ha establecido en $0,75 \text{ cm}^3$, y no se incluye tiempo de enfriamiento ya que el periodo de semidesintegración del Sb-124 es muy largo. Nuevamente, se han considerado tres valores diferentes de la potencia del reactor: 2, 50 y 1000 W. La simulación proporciona valores de actividad para una variación del tiempo de irradiación de hasta 100 horas. Los resultados se muestran en la Tabla 5. De los valores obtenidos se deduce que no se puede obtener una actividad exenta para Sb-124 con las potencias más elevadas (50 W y 1 kW), mientras que es posible para 2 W.

Tabla 5. Actividades (Bq) de Sb-124 para tres potencias variando el tiempo de irradiación.

t_i (hr)	$P_1 = 2 \text{ W}$	$P_2 = 50 \text{ W}$	$P_3 = 1 \text{ kW}$
1	9,81E+03	2,45E+05	4,91E+06
5	4,90E+04	1,23E+06	2,45E+07
10	9,79E+04	2,45E+06	4,90E+07
20	1,95E+05	4,88E+06	9,77E+07
50	4,85E+05	1,21E+07	2,42E+08
100	9,58E+05	2,40E+07	4,79E+08

4. CONCLUSIONES.

En resumen, se ha demostrado que ajustando convenientemente los parámetros analizados, es posible obtener por activación neutrónica, actividades exentas de Na-24, Mo-99 y Sb-124.

Este ejercicio es muy interesante para los estudiantes de Ingeniería Nuclear y Protección Radiactiva para complementar el análisis de las reacciones de activación neutrónica. Pueden verificar la posibilidad de obtener actividades más bajas y, en consecuencia, dosis más bajas para una mejor protección de los trabajadores en particular y del público en general.

REFERENCIAS.

1. Ortega, X., Jorba, J., Radiaciones ionizantes: Utilización y riesgos – Volumen II, Edicions UPC, Barcelona, Spain (1996).
2. Lamarsh, J. R., Baratta, A. J., Introduction to Nuclear Engineering, 3rd edition, Prentice Hall, Upper Saddle River, New Jersey, US (2001).
3. “INSTRUCCIÓN IS/05, de 26 de febrero de 2003, del Consejo de Seguridad Nuclear, por la que se definen los valores de exención para nucleídos según se establece en las tablas A y B del anexo I del Real Decreto 1836/1999”, <https://www.boe.es/boe/dias/2003/04/10/pdfs/A14221-14229.pdf> (2003).
4. Ródenas, J., Introducción a la Ingeniería de la Contaminación Radiactiva. Inter Técnica Ediciones, Valencia, Spain (2003).
5. Ródenas, J., Gallardo, S., Abarca, A., Juan, V., “Estimation of the activity generated by neutron activation in control rods of a BWR”, Appl. Radiat. Isot. 68(4–5), pp.905–908 (2010).
6. Ródenas, J., Gallardo, S., Abarca, A., Sollet, E., “Validation of the Monte Carlo model developed to assess the activity generated in control rods of a BWR”, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A, 619, pp.258–261 (2010).
7. Ródenas, J., Gallardo, S., Abarca, A., “Analysis of the dose rate produced by control rods discharged from a BWR into the irradiated fuel pool”, Appl. Radiat. Isot. 68(4–5), pp.909–912 (2010).
8. Ródenas, J., Gallardo, S., Abarca, A., “Reduction of dose around a storage pool by changing the position of BWR irradiated control rods”, Proceedings of Third European IRPA Congress, Helsinki, Finland, 14-18 June 2010, pp.1308-1317 (2010).
9. Ródenas, J., Gallardo, S., Weirich, F., Hansen, W., “Application of dosimetry measurements to analyze the neutron activation of a stainless steel sample in a training nuclear reactor”, Radiation Physics and Chemistry, 104, pp.368–371 (2014).
10. Aledó, S., “Cálculo del tiempo de irradiación en un reactor nuclear de investigación para limitar la actividad de materiales irradiados: aplicación a la obtención de radioisótopos para utilizarlos como marcadores en un proceso industrial”, Trabajo Fin de Grado en Ingeniería de la Energía, ETSII, Valencia, Spain (2017).
11. Manderlier, N., Tondeur, F., Guillaume, J., Gerardy, I., “Mesures sur banc moteur avec différents additifs activés”, IRISIB, Belgium, (Comunicación privada al autor en 2017) (2003).
12. X-5 Monte Carlo Team, MCNP- A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. LA-UR-03-1987, Los Alamos National Laboratory, US, April 2003 (revised 10/03/2005).