

CALCULO DE BLINDAGEM PARA ENCAPSULAMENTO DE FONTE DE ^{226}Ra UTILIZANDO O CÓDIGO DOT-3.5

MARGARET DE ALMEIDA DAMY
ROBERTO VICENTE
DEMerval LEONIDAS RODRIGUES
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares

RESUMO

Uma fonte de Ra-Be utilizada em pesquisa apresentou vazamento, sendo enviada ao IPEN para tratamento como rejeito radioativo. Foram feitos cálculos com o código de transporte bidimensional DOT-3.5 para verificar a viabilidade da utilização da embalagem rotineiramente usada no IPEN para encapsulamento de fontes de rádio. O levantamento radiométrico da superfície externa da embalagem foi efetuado para comparação dos resultados calculados com os experimentais.

INTRODUÇÃO

O objetivo deste trabalho foi primeiramente calcular a blindagem necessária para a proteção de uma fonte de ^{226}Ra de intensidade 100 mCi (decaimento α) utilizando-se a embalagem normalmente empregada no IPEN para a contenção de fontes de Ra. Os resultados do levantamento radiométrico realizado na superfície da embalagem após a imobilização da fonte, foram comparados com os valores calculados com o código de transporte bidimensional DOT-3.5 (1).

A fonte Ra-Be (α, n) possui como vantagem para fontes de nêutrons uma alta atividade específica. No entanto, algumas desvantagens tornam-na uma fonte pouco utilizada atualmente. Possui um largo espectro de energias de nêutrons (as várias energias α emitidas pelo ^{226}Ra e seus produtos filhos geram nêutrons de energias diferentes, além da perda de energia das partículas α no próprio berílio) e apresenta um intenso campo de gamas associado (vários produtos filhos do ^{226}Ra decaem por α e β com emissão γ associada. A cadeia de decaimento do rádio é apresentada na figura 1.2).

A composição dos materiais constituintes da embalagem utilizada nos cálculos encontra-se na tabela 1.

DEFINIÇÃO DO PROBLEMA

A embalagem para a fonte de ^{226}Ra (3) consiste de um tambor de aço galvanizado com espessura de aproximadamente 1,2mm (não considerado nos cálculos de blindagem), preenchido por concreto barita, onde a fonte Ra-Be ($\phi = 15\text{mm}$ e $h = 60\text{mm}$) é colocada em uma cápsula de aço inox AISI 304 de dimensões $\phi_{\text{ext}} = 75\text{mm}$, $\phi_{\text{int}} = 72\text{mm}$ e $h = 490\text{mm}$. Na figura 2 é apresentado o esquema geométrico da embalagem simulada no cálculo. Foram feitos cálculos para três materiais preenchendo o espaço entre a fonte e a cápsula de aço inox: ar, parafina borada e carvão ativado.

Os fluxos foram calculados com o código DOT-3.5, em uma estrutura de 40 grupos de energia (22 grupos de nêutrons e 18 grupos de gamas) em geometria cilíndrica bidimensional (R-2).

Tabela 1. DENSIDADE dos NUCLÍDEOS e MATERIAIS

REGIÃO (ρ g/cm ³)	Símbolo do Nuclídeo	CONCENTRAÇÃO [#átomos/barn]
Ar (0,0012)	O-16	9,521E-06
	N-14	4,091E-05
	C-12	2,351E-02
	H-1	6,982E-02
Parafina Borada	Na-23	2,124E-03
	B-10	8,410E-04
	B-11	3,407E-03
	O-16	1,805E-02
Borax 1,73 Paraf 0,9	C-12	3,20E-04
	Si	1,708E-03
	Fe	5,700E-02
	Ni	8,581E-03
Aço Inox (7,87)	Cr	1,846E-02
	Mn-55	1,747E-03
	O-16	4,318E-02
	H-1	1,039E-02
Concreto Barita (3,7)	Al-27	2,725E-04
	Ca-40	2,780E-03
	Ca-44	5,560E-03
	Mg-24	1,467E-04
	Mg-25	1,833E-05
	Mg-26	1,833E-05
	Si-28	7,934E-04
	Si-29	4,760E-05
	Si-30	3,174E-05
	Fe-54	3,990E-06
	Fe-56	6,783E-05
	Fe-57	3,990E-06
	Ba-134	1,947E-04
	Ba-135	5,354E-04
	Ba-136	6,328E-04
	Ba-137	9,086E-04
	Ba-140	5,841E-03
Carvão Ativado (0,4 bulk 70% ar)	O-16	1,422E-05
	N-14	6,072E-05
	C-12	2,006E-02

As seções de choque microscópicas foram calculadas para as 5 regiões definidas na figura 2, com o código AMPX-II (4) e as seções de choque macroscópicas foram geradas com o código AXMIX (5), para as densidades isotópicas mostradas na tabela 1.

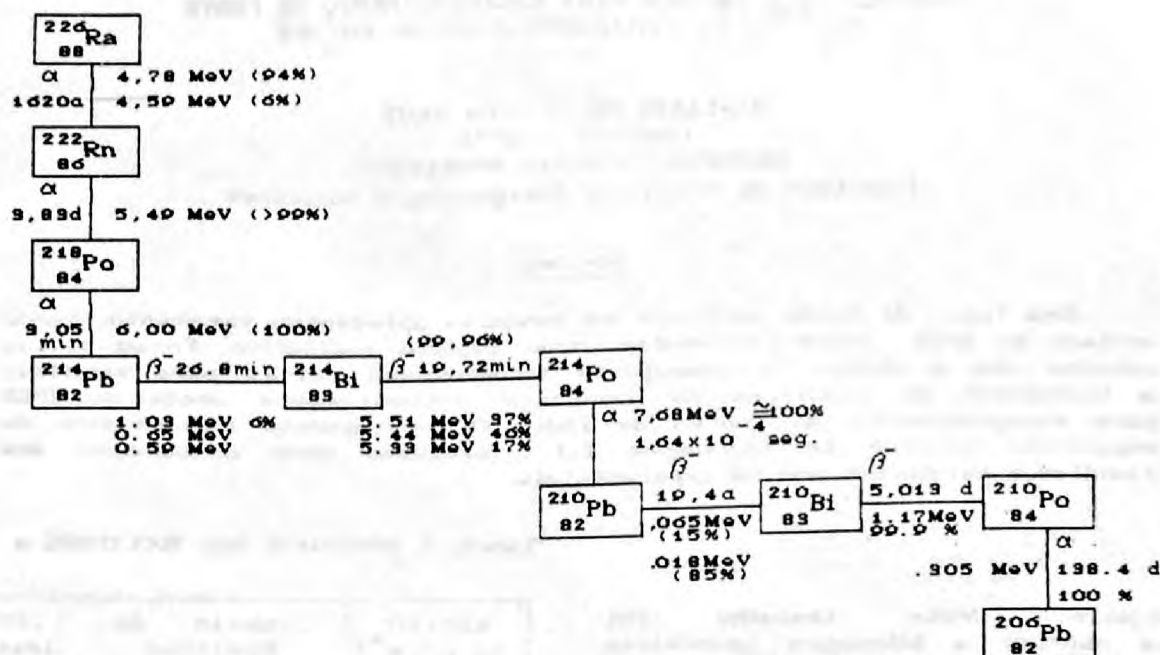


Fig. 1 Série Radioativa do Rádio-226.

O espectro de nêutrons, em 22 grupos de energia, considerado nos cálculos, foi adaptado das referências 16 - 18. Este espectro, bem como os limites superiores de energia por grupo são apresentados na tabela 2. Para os 18 grupos de energia de gamas, os limites de energia e a fração por grupo são mostrados na tabela 3.

Para calcular a fonte de nêutrons, o valor do espectro em cada grupo de energia foi dividido pelo volume da fonte ($\phi=1,5\text{cm}$ e $h=6,0\text{cm} \Rightarrow \approx 10,6\text{ cm}^3$) e multiplicado pelo valor do rendimento neutrônico deste tipo de fonte que é de 77 nêutrons para cada 10^6 partículas α ou, ou seja, $2,849 \times 10^5$ nêutrons/segundo para a atividade α de 100 mCi.

Estes valores são fornecidos por intervalo espacial e por grupo de energia para o programa DOT-3.5, para calcular os fluxos de nêutrons que saíram da embalagem da fonte. Da mesma maneira, para o cálculo da fonte de gamas a fração ou probabilidade de ocorrência de gamas por desintegração de cada átomo de ^{226}Ra foi multiplicada pela intensidade da fonte (20 mCi).

RESULTADOS

Foram calculados os fluxos para três configurações: ar, parafina borada e carvão ativado na região 2 da figura 2. As taxas de dose foram obtidas multiplicando-se os fluxos por fatores de dose adequados (17), através do programa computacional ISOFD desenvolvido pela Seção de Blindagem do IPEN.

Taxas de Dose Calculadas. As taxas de dose na região externa da embalagem da fonte encontram-se na tabela 4.

As posições onde foram calculadas as taxas de dose são referentes aos valores máximos ocorridos na superfície externa da embalagem proposta. Na figura 3 são apresentados os pontos para os quais as taxas de dose são máximas.

REGIÃO:

- Legenda:
- 1 - Fonte
 - 2 - Ar, Parafina Borada ou Carvão Ativado
 - 3 - Aço
 - 4 - Concreto Barita
 - 5 - Concreto Barita

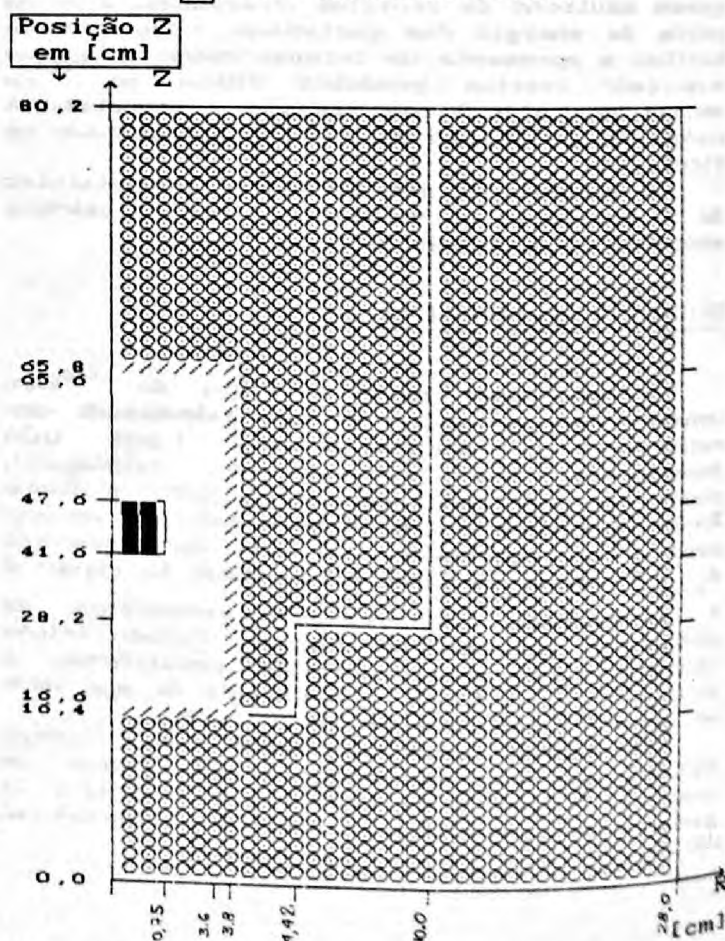


Fig. 2 Especificação das Regiões utilizadas no DOT-3.5.

Tabela 2. Espectro e Estrutura de Energia dos grupos de Nêutrons (*)

Grupo	Limite Superior [MeV]	Espectro de Nêutrons Calculado (a)
1	17,33	$5,6307 \times 10^{-2}$
2	12,214	$4,7031 \times 10^{-2}$
3	10,00	$4,1580 \times 10^{-2}$
4	8,1873	$4,1559 \times 10^{-2}$
5	6,3763	$3,7183 \times 10^{-2}$
6	4,9659	$3,5262 \times 10^{-2}$
7	4,0657	$3,5242 \times 10^{-2}$
8	3,0119	$3,8003 \times 10^{-2}$
9	2,4660	$4,7953 \times 10^{-2}$
10	2,3457	$3,8395 \times 10^{-2}$
11	1,8268	$3,6142 \times 10^{-2}$
12	1,1080	$3,7840 \times 10^{-2}$
13	$5,5023 \times 10^{-1}$	$3,9726 \times 10^{-2}$
14	$1,1109 \times 10^{-1}$	$4,8384 \times 10^{-2}$
15	$3,3546 \times 10^{-3}$	$5,2328 \times 10^{-2}$
16	$5,8295 \times 10^{-4}$	$5,2422 \times 10^{-2}$
17	$1,0130 \times 10^{-4}$	$5,2438 \times 10^{-2}$
18	$2,9203 \times 10^{-5}$	$5,2440 \times 10^{-2}$
19	$1,0677 \times 10^{-5}$	$5,2441 \times 10^{-2}$
20	$3,0590 \times 10^{-6}$	$5,2441 \times 10^{-2}$
21	$1,1254 \times 10^{-6}$	$5,2441 \times 10^{-2}$
22	$4,1399 \times 10^{-7}$	$5,2441 \times 10^{-2}$

(*) O espectro está normalizado para um (1) nêutron por segundo de fonte.

Taxas de Dose Medidas no Embalado. A fonte foi imobilizada de acordo com os procedimentos utilizados rotineiramente para o encapsulamento de fontes de Ra e com carvão ativado na região 2.

Optou-se por preencher a região 2 da embalagem com carvão ativado por duas razões: este material já é empregado usualmente para o encapsulamento de fontes de rádio; e a redução nas taxas de dose com a utilização da parafina borada não justifica o trabalho adicional junto à fonte durante a imobilização desta.

Foi feito um levantamento radiométrico na superfície do embalado nos pontos indicados na figura 3 para comparar as taxas de dose de gamas e de nêutrons com os valores calculados.

Foram utilizados dois monitores de radiação: um detector Geiger-Müller para o campo de radiação gama entre 0 e 100 mR/h, modelo PI760; e um contador proporcional esférico para taxas de dose equivalente de nêutrons entre 0,1 mrem/h a 1 rem/h para nêutrons com energia entre 0,025 eV e 7 MeV.

Os resultados das medidas estão indicados na tabela 5. Além disso, para comparação foram incluídos os resultados calculados nas mesmas posições.

Tabela 3. Espectro e Estrutura dos Grupos de Energia de Gammas

Grupo	Limite Superior [MeV]	Fração de Gammas
1	14,0	-
2	2,5	0,0781
3	2,0	0,2244
4	1,66	0,0213
5	1,50	0,0805
6	1,33	0,2404
7	1,0	0,0431
8	0,8	0,0588
9	0,7	0,4655
10	0,6	-
11	0,4	0,3580
12	0,3	0,2611
13	0,2	0,0329
14	0,15	-
15	0,1	0,15
16	0,075	0,062
17	0,06	0,0518
18	0,045	-

REGIÃO:

- Legenda:
- 1 - Fonte
 - 2 - Ar, Parafina Borada ou Carvão Ativado
 - 3 - Aço
 - 4 - Concreto Barita
 - 5 - Concreto Barita

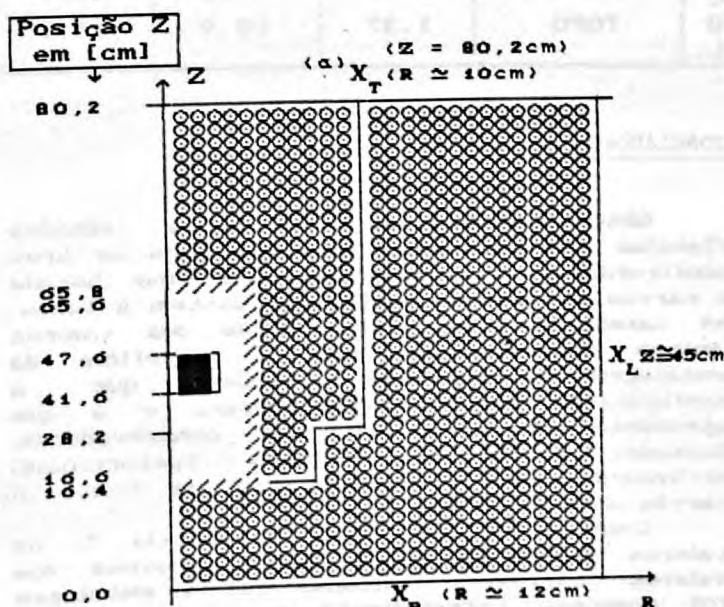


Fig. 3 - Posição Relativa da Localização dos Pontos onde Foram Calculadas e Medidas as Taxas de Dose. Os pontos X_B , X_L e X_T referem-se às taxas de dose respectivamente na Base, Lateral e Topo da Superfície da Embalagem.

Tabela 4. Taxas de Dose (mRem/hora) Calculadas na Região Externa da Embalagem

Material ao Lado da Fonte	Local. na Sup. da Emb.	Taxas de Dose devido a		
		NEUTRONS	GAMAS	TOTAL
PARAFINA BORADA Região 2	BASE	0,37	3,66	4,03
	LATERAL	2,61	20,2	22,8
	TOPO	1,08	15,8	16,9
AR na Região 2	BASE	1,09	7,30	8,39
	LATERAL	3,53	23,6	27,1
	TOPO	3,11	32,4	35,5
CARVÃO ATIVADO Região 2	BASE	0,859	4,78	5,64
	LATERAL	3,77	23,8	27,6
	TOPO	1,37	13,9	15,3

Tabela 5. Taxas de Dose (mRem/hora) Medidas e Calculadas com Carvão Ativado na Região 2.

Localização na Superfície da Embalagem	Taxas de Dose devido a		
	NEUTRONS	GAMAS	TOTAL
M E D I D O			
BASE	-	-	-
LATERAL	3,0	30,0	33,0
TOPO	0,7	8,0	15,0
C A L C U L.			
BASE	0,859	4,78	5,64
LATERAL	3,77	24,2	28,0
TOPO	1,37	13,9	15,3

CONCLUSÃO

Observando-se os resultados obtidos (Tabelas 4 e 5), verifica-se que para as três configurações calculadas, ar, parafina borada e carvão ativado na região que contém a fonte, as taxas de dose estão abaixo dos valores limites estabelecidos para a superfície da embalagem. Verifica-se também que a configuração com parafina borada e a que apresenta os resultados mais conservadores. Contudo, devido a aspectos operacionais, utilizou-se para a imobilização da fonte o carvão ativado na região 2.

Como pode ser visto na tabela 3, os valores calculados estão muito próximos dos valores observados indicando que a embalagem foi modelada corretamente e mais uma vez confirmando a utilidade do Código de Transporte DOT 3.5 para a determinação de espessuras de blindagem em geometrias complexas. A indicação de que a metodologia de cálculo é adequada deve-se a ordem de grandeza dos resultados e não aos valores numéricos em si.

As diferenças existentes entre os valores calculados e os valores medidos podem ser atribuídas às seguintes razões: incertezas na determinação do espectro de nêutrons e atividade da fonte; incerteza nos valores da composição isotópica, densidade e espessura dos materiais de blindagem que foram utilizados nos cálculos; erros na posição e leitura dos detectores.

REFERÊNCIAS

- (1) - Rhoades, W.A., Mynatt, F.R., "DOT-3.5 - Two Dimensional Discrete Ordinates Radiation Transport Code", Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, (CCC-276).
- (2) - Beckurts, K.H., Wirtz, K., "Neutron Physics", Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, 1958.
- (3) - Rodrigues, D.L., Embalagem para encapsulamento, transporte e deposição de fontes de Radio-226, Relatório final interno, IPEN, 1990.
- (4) - "AMPX-II - A Modular Code System for Generating Coupled Multigroup Neutron - Gamma Libraries from Data in ENDF Format", Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, (PSR-63).
- (5) - "The AXMIX Program for Cross Section Mixing and Library Arrangement", Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, (PSR-75).
- (6) - Marion, J.B., Fowler, J.L., "Fast Neutron Physics - Techniques" Parte I, v.1, 1960.
- (7) - Thompson, M.N., Taylor, J.M., "Neutron Spectra from Am- α -Be and Ra- α -Be Sources", Nuclear Instruments and Methods, - v.37, p.305-308; 1965.

- (8) - Obst. A.W., Grandy, T.B., Weil, J.L.,
"Reaction $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$ from 1.7 to 6.4
MeV", Physical Review C, v.3, numero 3,
p.738-754, 1971.
- (9) - Amersham/Searle Corporation, "Radiation
Sources for Laboratory and Industrial
Use" - Catálogo Comercial.
- (10) - Hess, W. N., "Neutrons from (α, n)
Sources", Annals of Physics, v.2,
p.115-133, 1959.
- (11) - Anderson, M.E., Bond Jr., W.H., Annals
of Physics, v.43, p.330, 1963.
- (12) - Van Der Zwan, L. "Calculated Neutron
Spectra from $^9\text{Be}(\alpha, n)$ Sources" Can. J.
Physics, v.46, p. 1527-1536, 1968.
- (13) - Pauw, H., Aten Jr., A.H.W., "Neutron
Spectra of α -Be Neutron Sources" Health
Physics, v.22(9), p.311, 1972.
- (14) - Morgan, K.Z., Turner, J.E., (editores)
- "Principles of Radiation Protection -
A textbook of Health Physic", 1967.
- (15) - Attix, F.H., Roesch, W.C., (editores).
"Radiation Dosimetry Fundamentals" -
v.1 -2nd Edition, 1968.
- (16) - Goldstein, H., "Fundamental Aspects of
Reactor Shielding", 1959.
- (17) - "American National Standard Neutron and
Gamma-Ray Flux-to-Dose Rate Factors".
ANSI-ANS 6.1.1, 1977.

Summary

A leaking spent radium-berillium source was sent to IPEN for treatment as radioactive waste. In order to verify the viability of the utilization of a standard package for radium sources, the two-dimensional discrete ordinates radiation transport code DOT-3.5 was used. The theoretical results for the surface of the packaging were in good agreement with the measured values.