

CÁLCULO DEL ESPECTRO RADIATIVO DE MUESTRAS AMBIENTALES MEDIANTE EL CÓDIGO MONTE CARLO “PENELOPE”

CALCULATION OF RADIOACTIVE SPECTRUM OF ENVIRONMENTAL SAMPLES BY MONTE CARLO CODE “PENELOPE”

E.R. González*, E.V. Bonzi

Facultad de Matemática, Astronomía y Física – Universidad Nacional de Córdoba – Medina Allende esquina Haya de la Torre
Ciudad Universitaria – (5000) Córdoba – Argentina
e-mail: engonzal@famaf.unc.edu.ar

Recibido 28/02/11; aprobado 25/11/11

Existen numerosos códigos desarrollados para la simulación del transporte combinado de fotones y electrones en la materia tales como PENELOPE, MCNP, EGS4, GEANT4 etc. Estos códigos, toman en cuenta los procesos de absorción y dispersión de fotones en los distintos materiales simples o compuestos con los que interactúan, como así también los procesos de los electrones y positrones producidos por las interacciones de estos fotones o por sus efectos secundarios. El tratamiento físico-matemático dado a estos procesos difiere ligeramente entre un código y otro influyendo esto en el resultado y en el tiempo de cálculo necesario para obtener una buena estadística. En este trabajo, hemos aplicado el código fortran PENELOPE a la determinación de la radiactividad natural de muestras materiales, prescindiendo del uso de muestras patrón calibradas.

Palabras Claves: Monte Carlo, muestras de suelo

There are numerous codes developed for the simulation of combined transport of photons and electrons in matter such as PENELOPE, MCNP, EGS4, GEANT4 etc. These codes take into account the processes of absorption and scattering of photons in simple or compound materials with which they interact as well, the electrons and positrons produced by interactions of these photons or their secondary effects. The physical-mathematical treatment given to these processes differ slightly between this code and other, influence it on the result and the computing time needed to obtain a good statistics. In this paper, we applied the fortran code PENELOPE in the determination of the natural radioactivity of material samples, without the use of calibrated standard samples.

Key Word: Monte Carlo, soil samples

I. INTRODUCCIÓN

En este trabajo hemos aplicado el programa de simulación de transporte de fotones, electrones y positrones en la materia “PENELOPE” (versión 2008)^[1] al cálculo de radiactividad de muestras ambientales de suelo y materiales de construcción con el objeto de determinar su actividad sin acudir al uso de muestras patrón. Para esto, por un lado, se determinó el espectro radiactivo de un conjunto de muestras de suelo con un detector de NaI(Tl). Por otro lado, se simuló el dispositivo experimental utilizado para grabar los espectros respetando lo más fielmente posible las formas y dimensiones de los materiales constituyentes, muestras, blindajes etc. Se obtuvieron los espectros de cada una de las líneas emitidas por la muestra individualmente. Luego, mediante una suma pesada se ajustaron a cada espectro medido y se calculó la actividad de cada línea mediante una ecuación. En la simulación se tomaron en cuenta las principales componentes internas del detector como capas difusoras, cobertura de aluminio, zócalo del tubo fotomultiplicador, el material del detector (NaI), y materiales dispersores como el aire circundante, envase de las muestras, muestra y dispositivos de blindaje respetando absolutamente las dimensiones de los cuerpos

involucrados y su forma. La medición de espectros mediante Monte Carlo consiste en simular los principales procesos que tienen lugar desde que el fotón es emitido desde el núcleo. Los efectos de absorción y dispersión que tienen lugar en la muestra y en los cuerpos que rodean el detector en un dispositivo de medición, afectan de manera considerable la forma del espectro variando la proporcionalidad que existe entre las diferentes porciones del mismo y afectando, consecuentemente el ajuste entre el espectro medido y el simulado. Por este motivo, se hizo fundamental hincapié en los archivos de materiales y de geometría los cuales fueron minuciosamente diseñados y verificados.

Los espectros de radiación gamma de muestras de suelo o materiales de construcción, contienen elementos radiactivos que persisten en la naturaleza desde la formación del universo gracias a sus tiempos de vida medios largos, del orden del tiempo transcurrido desde la formación del planeta, y que supuestamente se encuentran en equilibrio radiactivo con sus descendientes. Tal es el caso de las series radiactivas naturales del ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U y además el ^{40}K , que no pertenece a ninguna cadena radiactiva pero que persiste en la naturaleza gracias a su tiempo de vida medio largo del orden de los anteriores. Dado que toda muestra contiene en mayor o menor medida elementos de las series mencionadas, es posible simular para una muestra particular, tomada como patrón,

las principales energías emitidas por estos elementos más el conjunto de líneas emitidas por sus descendientes una sola vez y luego, usarlas para calcular la actividad de cualquier muestra sin tener que simular para cada caso particular. La mayor discrepancia se presenta en relación con la densidad de las muestras, no obstante esta dificultad puede ser obviada mezclando la muestra a medir con una porción de material de baja actividad y mayor densidad para el caso de que esta fuese menos densa que la muestra tomada como patrón y con un material sólido de baja densidad para el caso contrario.

Los espectros de los elementos pertenecientes a las series radiactivas antes mencionadas salvo el ^{40}K consisten en un gran número de líneas - más de 40 - con energías que van entre los 40 keV y 2614 keV aproximadamente y aparecen en el espectro en algunos casos superpuestas o fusionadas con otras de energía similar formando un solo pico. Otras en cambio, aparecen más solitarias y son las que se utilizan normalmente para medir la actividad de un elemento. Por otro lado, la dificultad para disponer de muestras patrón calibradas que emitan líneas de la misma energía y que tengan la misma composición que las muestras que se desea medir es un problema difícil de resolver en algunos casos. Además, dado que la actividad de un elemento en los métodos tradicionales se obtiene calculando el área neta de su fotopico y especialmente en los detectores de baja resolución como el NaI(Tl) cuando este, se encuentra ubicado en un valle, sobre el fondo Compton, o sobre el simple o doble pico de escape de líneas de energía superior no son aplicables los métodos conocidos de cálculo de línea de base^[7] y es necesario aplicar otra técnica.

Para resolver este problema, hemos implementado el siguiente método o algoritmo consistente en ajustar el pico (o los picos) de mayor energía presentes en el espectro medido y que no están afectados por el fondo Compton de líneas de energía superior; con el espectro simulado de la línea correspondiente a esa energía luego, a partir de allí, reconstruir el espectro junto con el fondo Compton hacia atrás, ubicando las líneas simuladas de menor energía en el lugar correspondiente de acuerdo a una calibración previamente realizada mediante el uso de fuentes radiactivas. Otros autores Vlastou^[2] usaron un procedimiento similar para calibrar y calcular el contenido radiactivo de agua de mar y utilizaron para tal fin el código GEANT4. Otros numerosos autores^[3,6] también, han usado simulación Monte Carlo para el estudio y análisis de funciones de respuesta y propiedades de los detectores de NaI.

II. MÉTODOS Y SIMULACIÓN

El código PENELOPE fue programado para simular una muestra cilíndrica de suelo, emitiendo fotones isotrópicamente en todas las direcciones del espacio y rodeada de un blindaje de plomo de 10 cm de espesor. Se simularon también, el envase de acrílico que contiene las muestras, la capa difusora de MgO que rodea el detector, el detector de NaI(Tl), la cobertura de aluminio que rodean al detector y al tubo fotomultiplicador, el zócalo del mismo, y el aire que rodea el dispositivo de medición.

Todo el arreglo es mostrado en la figura 1 la cual fue diseñada mediante el visualizador gráfico del programa PENELOPE.

Se tomaron en cuenta las principales energías, con intensidades > 1% emitidas por cada uno de los elementos pertenecientes a las series radiactivas del ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}Th y la de los elementos presentes en la muestra y que no son pertenecientes a ellas. Cada línea de energía se simuló de manera independiente en un número de canales equivalente al que ocupa en el espectro medido. El tiempo de simulación escogido fue tal de obtener una buena estadística y lograr un espectro bien definido, se emplearon más de veinte horas para el caso de las líneas más energéticas y alrededor de ocho para las de menor energía. Después de simuladas las líneas pertenecientes a cada serie radiactiva, se normalizaron y se multiplicaron por la intensidad y eficiencia relativa a una de las líneas de la serie, luego se convolucionaron para tomar en cuenta la resolución del detector, se multiplicaron por un factor de primera aproximación y por otro de ajuste fino, y se sumaron. Por último, se les adicionó el fondo y se ajustaron al espectro medido.

El procedimiento puede resumirse como sigue:

- Se toma el espectro simulado en N canales correspondiente a una energía E_j en forma de vector:

$$S_j = \begin{pmatrix} s_{1j} \\ s_{2j} \\ \cdot \\ \cdot \\ \cdot \\ s_{Nj} \end{pmatrix}$$

- Se normaliza de la siguiente manera :

$$S_{j\text{Norma}} = \frac{S_j}{\sum_{i=1}^N s_{ij}} \quad (1)$$

- El espectro así obtenido se convolucionan para tomar en cuenta la resolución del detector, y se multiplica por: la intensidad relativa a una línea de la serie (I_j/I_0), la eficiencia relativa a dicha línea ϵ_j/ϵ_0 , un factor de ajuste fino d_{ij} y por otro factor A de primera aproximación al espectro medido. La siguiente ecuación resume lo expresado:

$$SU_j(m, a, b, d, j) = A \cdot d_j \cdot \frac{\epsilon_j}{\epsilon_0} \cdot \frac{I_j}{I_0} \cdot \sum_{n=1}^N S_{j\text{Norma}} \cdot \frac{1}{\sqrt{2 \cdot \pi \cdot \sigma(n, a, b)}} \cdot \exp\left[\frac{-(m-n)^2}{2 \cdot \sigma(n, a, b)^2}\right] \quad (2)$$

donde, m es el número de canal y $\sigma(n,a,b)$ es la desviación estándar del fotopico de una línea pura centrada en el canal n y que suponemos verifica la relación^[3,5]:

$$\sigma(n, a, b) = a \cdot n^b \quad (3)$$

donde a y b son dos parámetros a ajustar. El factor A puede ser estimado tomando en cuenta el área del fotopico más energético que aparece en el espectro. Su valor es el mismo para todas las líneas pertenecientes a una misma serie radiactiva.

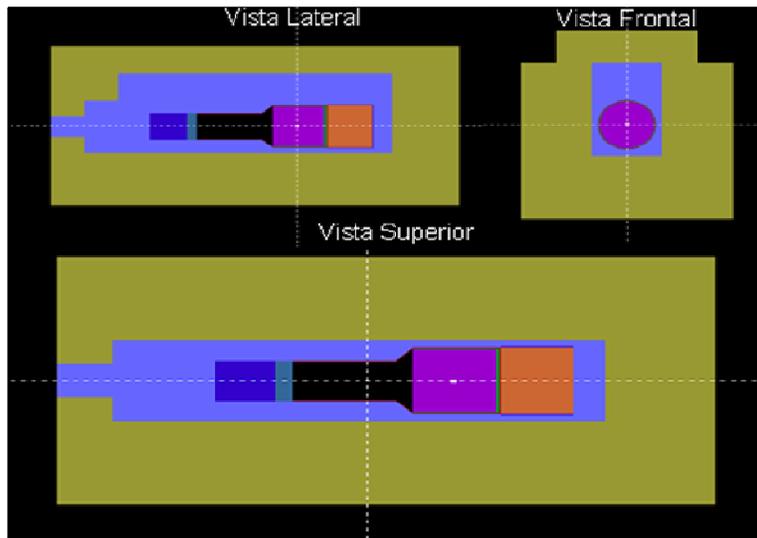


Figura 1. Gráfica que muestra las partes principales del dispositivo experimental utilizado para medir y hacer las simulaciones el esquema muestra el detector, la muestra, blindaje, tubo fotomultiplicador, aire, etc todo a escala real.

d) Finalmente se suma SU_j para todas las series y líneas individuales presentes en el espectro y se les adiciona el fondo medido $Fdo(m)$ y otro de tipo exponencial debido a la presencia de pulsos espurios generados en el tubo fotomultiplicador. El espectro simulado total es obtenido entonces como:

$$Simu(m) = \sum_{j=1}^K SU_j(m, a, b, d, j) + A_0 \cdot e^{-\frac{(m-B_0)}{C_0}} + Fdo(m) \quad (4)$$

Para hacer una estimación del valor del coeficiente de absorción de la muestra se lo midió experimentalmente a dos energías distintas utilizando una fuente radiactiva de ^{60}Co (1173.2 keV y 1332.5 keV) y otra de ^{137}Cs (661.6 keV) mediante un colimador de plomo de forma cilíndrica de 10 cm de altura con un orificio circular en su centro de 0.5 cm de diámetro. Se dispuso la muestra sobre el colimador y encima de ella se ubicó la fuente sobre la tapa del recipiente, se obtuvo el espectro, luego se vació el recipiente y se midió nuevamente con la fuente posicionada en el mismo lugar, se calculó el coeficiente

de absorción determinando el número de fotones que atravesaron la muestra. Luego, consideramos una combinación de elementos comúnmente encontrados en suelos y obtenidos de tablas.

Para reducir el número de parámetros intervinientes en la ecuación (2) y disminuir el tiempo computacional, se estimaron los parámetros a y b en primera aproximación de manera experimental midiéndolos directamente de una muestra de suelo con predominio de elementos de la serie del ^{238}U . Los valores obtenidos para a y b fueron $a = 0.1733$ $b = 0.645$ estas cantidades proveen un valor satisfactorio para σ en todo el rango de energías considerado y se mantuvieron constantes para todos los espectros ajustados manteniendo también constante la ganancia del amplificador.

III. DESARROLLO EXPERIMENTAL

Para obtener los espectros hemos utilizado una cadena de espectrometría gamma compuesta por un detector de NaI(Tl) marca AE&G Ortec de 3"x3" Modelo 6xw4, un preamplificador Tenelec AC 145, un amplificador de señal AE&G Ortec 572, y una fuente de alta tensión

marca Ortec 552. Las muestras antes de ser medidas, fueron secadas, tamizadas y envasadas herméticamente en recipientes de acrílico de forma cilíndrica de 334 cm² para minimizar el supuesto escape de radón y luego fueron estacionadas durante 40 días hasta esperar el equilibrio radiactivo entre los descendientes de vida corta del ²²⁶Ra. Transcurrido ese tiempo, las muestras fueron ubicadas frente al detector y dentro del blindaje de plomo y se grabó el espectro de cada muestra durante 18 horas, a continuación se realizó un espectro sin la muestra durante el mismo tiempo para tomar en cuenta la radiación de fondo proveniente fundamentalmente del piso, paredes, techo etc, que se filtra a través del blindaje. Este espectro fue sumado al simulado, como ya se explico.

Habiendo ajustado cada espectro en la manera indicada en la sección anterior, se calculó la actividad de los principales elementos de cada serie y la de los elementos no pertenecientes a ninguna de ellas por medio de la siguiente ecuación:

$$\text{Actividad} = \frac{A_{\text{Fotopico } j}}{\epsilon_{\text{Fotopico } j}} \cdot \frac{1}{T} \cdot \frac{1}{I_j} \quad (5)$$

donde $A_{\text{Fotopico } j}$ es el área del fotopico correspondiente a la línea de energía j simulada, y después de ser ajustada al medido, $\epsilon_{\text{Fotopico } j}$ es la eficiencia de fotopico de la línea j . Su valor fue obtenido mediante el Monte Carlo. T es el

tiempo neto de medición e I_j es la intensidad de la línea en cuestión. La tabla 1 contiene los valores encontrados para la actividad por unidad de masa para el conjunto de muestras medidas. El error de cada medición se obtuvo haciendo propagación de errores en la ecuación (5). El error para el área $A_{\text{Fotopico } j}$ correspondiente a la línea de energía j se calculó por medio de la siguiente ecuación:

$$\Delta \text{Area}_{\text{Fotopico } j} = \sum_{\text{Fotopico } j} \left[\sqrt{2SU_j(m, a, b, d, j)} + \sqrt{2Fdo(m)} \right] \quad (6)$$

Donde la sumatoria se extiende a los canales correspondientes al fotopico. El error de $\epsilon_{\text{Fotopico } j}$ es el error estadístico proporcionado por el Monte Carlo en los canales correspondientes a cada fotopico.

IV. RESULTADOS Y DISCUSION

La tabla 1 contiene los resultados obtenidos para un conjunto de muestras tomado. Las líneas correspondientes a la serie del ²³⁵U no fueron tomadas en cuenta debido a su escasa presencia en el espectro.

La figura 2 ilustra para una de las muestras medidas, el ajuste en la primera parte del espectro en donde los picos de mayor energía no están influenciados por el fondo Compton de líneas de energía superior. En las figuras (3), (4), y (5) en tanto, se muestra el ajuste en las distintas porciones del espectro junto con el espectro completo simulado de las principales líneas consideradas.

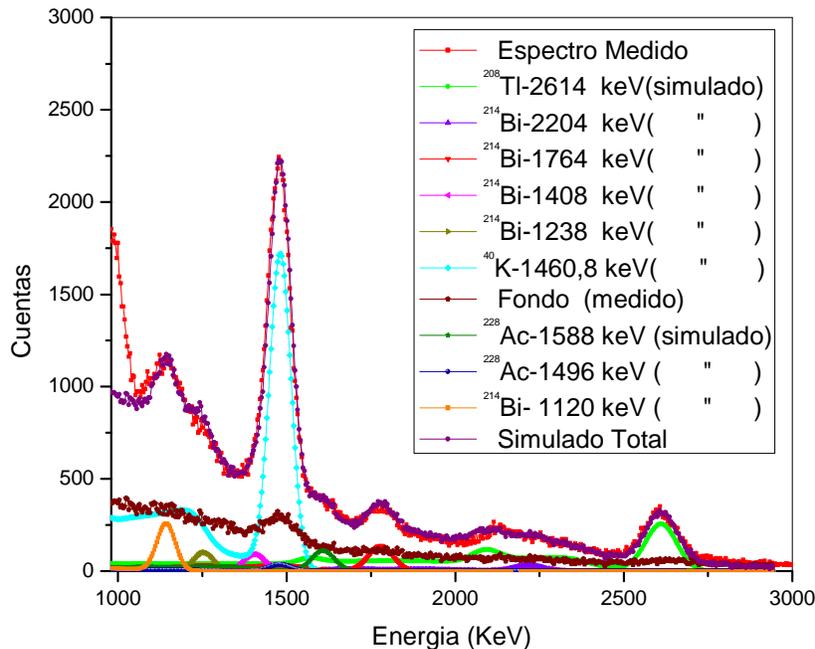


Figura 2. Ajuste parcial en la parte más energética del espectro donde puede verse parte de cada uno de los espectros simulados completos (fotopico mas continuo compton) los cuales sumados al fondo dan el espectro simulado total.

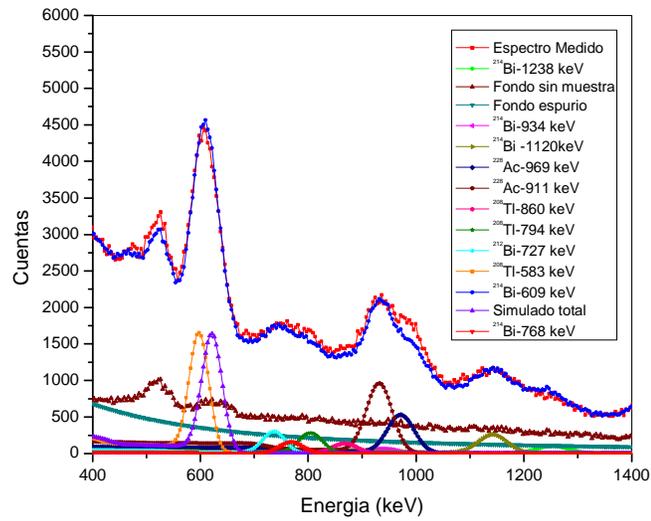


Figura 3. Ajuste en la parte de energías intermedias del espectro.

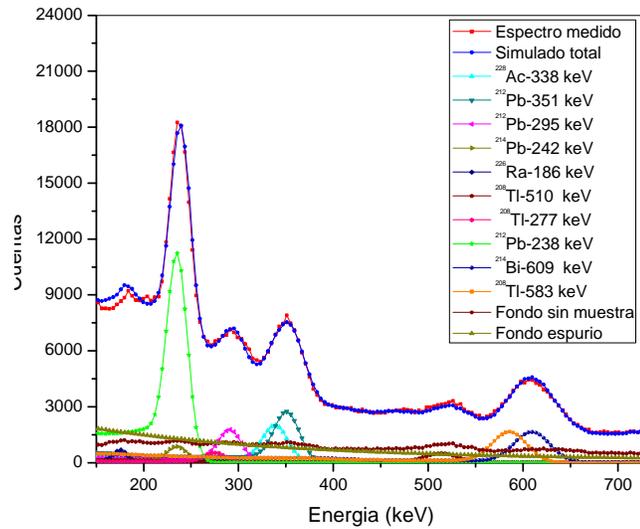


Figura4. Ajuste en la parte menos energética del espectro.

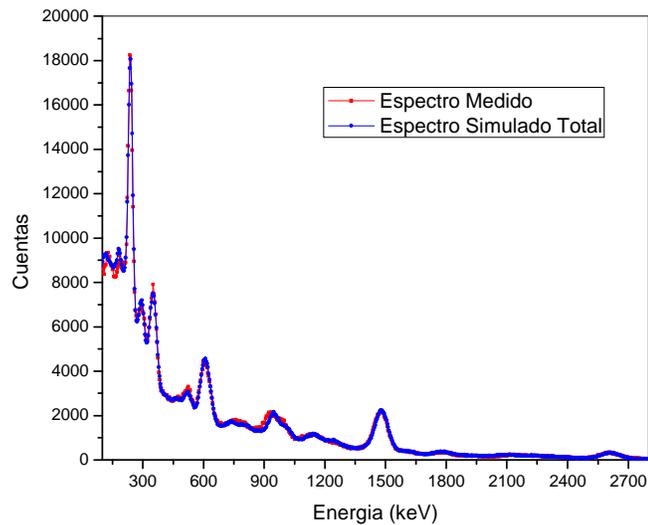


Figura 5. Ajuste en todo el rango de energías.

Tabla 1. Valores obtenidos para la concentración de los principales isótopos radiactivos encontrados

Muestra	Elemento	Energía (keV)	Actividad calculada (Bq/Kg)	Masa (g.)
1 (arena)	²¹² Pb	238.58	124 ± 6	572.2
	²⁰⁸ Tl	2614	45 ± 8	
	²⁰⁸ Tl	510.6	44 ± 4	
	²²⁸ Ac	968.97	125 ± 12	
	²²⁸ Ac	338	125 ± 9	
	²¹² Bi	727.25	124 ± 19	
	²¹⁴ Bi	1764.5	114 ± 20	
	²¹⁴ Pb	351.87	85 ± 8	
	²²⁶ Ra	186	113 ± 8	
⁴⁰ K	1460.8	1064 ± 150		
2	²¹² Pb	238.58	96 ± 4	469.2
	²⁰⁸ Tl	2614	25 ± 5	
	²²⁸ Ac	338.42	76 ± 7	
	²¹² Bi	727.25	76 ± 18	
	²¹⁴ Bi	609.31	47 ± 4	
	²¹⁴ Pb	351.87	47 ± 2	
	²²⁶ Ra	186	47 ± 8	
	⁴⁰ K	1460.8	702 ± 58	
	3	²¹² Pb	238.58	
²⁰⁸ Tl		2614	31 ± 6	
²⁰⁸ Tl		510.6	29 ± 4	
²²⁸ Ac		968.97	86 ± 7	
²²⁸ Ac		338	85 ± 8	
²¹² Bi		727.25	85 ± 20	
²¹⁴ Bi		1764.5	45 ± 5	
²¹⁴ Pb		351.87	45 ± 2	
²²⁶ Ra		186	45 ± 6	
⁴⁰ K	1460.8	866 ± 65		
4	²¹² Pb	238.58	68 ± 3	410.7
	²⁰⁸ Tl	2614	21 ± 4	
	²⁰⁸ Tl	510.6	20 ± 3	
	²²⁸ Ac	968.97	51 ± 3	
	²²⁸ Ac	338	51 ± 5	
	²¹² Bi	727.25	55 ± 8	
	²¹⁴ Bi	1764.5	54 ± 6	
	²¹⁴ Pb	351.87	54 ± 3	
	²²⁶ Ra	186	54 ± 7	
⁴⁰ K	1460.8	802 ± 54		
5	²¹² Pb	238.58	57 ± 2	504.7
	²⁰⁸ Tl	2614	14 ± 4	
	²⁰⁸ Tl	510.6	14 ± 3	
	²²⁸ Ac	968.97	53 ± 3	
	²²⁸ Ac	338	53 ± 4	
	²¹² Bi	727.25	53 ± 7	
	²¹⁴ Bi	1764.5	64 ± 6	
	²¹⁴ Pb	351.87	64 ± 3	
	²²⁶ Ra	186	64 ± 8	
⁴⁰ K	1460.8	746 ± 50		

V. CONCLUSIONES

Hemos investigado y desarrollado un método basado en simulación para la determinación de la radiactividad de muestras de suelo o similares aún a muy bajos niveles de actividad usando un detector de NaI. Los resultados obtenidos, muestran un buen ajuste con el espectro total y también una buena correlación entre líneas. La principal ventaja de su implementación es que permite liberarse

del uso de muestras-patrón calibradas. El método es aplicable a todo tipo de muestras de baja actividad en particular, alimentos y es aplicable en principio a detectores de mayor resolución.

VI. REFERENCIAS

- [1] F. Salvat, J. Fernández-Varea, J. Sempau, PENELOPE – A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport, Nuclear Energy Agency.
- [2] R. Vlastou, I. T. Ntziou, M. Kokkoris, C.T. Papadopoulos, C. Tsabaris, Monte Carlo simulation of γ -ray spectra from natural radionuclides recorded by a NaI detector in the marine environment, Applied Radiation and Isotopes. 64 (2006) 116-123
- [3] Hu-Xia Shi, Bo-Xian Chen, Thi-Zhu Li, Di Yun Precise Monte Carlo simulation of gamma-ray response functions for an NaI(Tl) detector. Applied Radiation and Isotopes 57 (2002) 517-524
- [4] J. J. Steyn, R. Huand, D.W. Harris. Monte Carlo Calculations of Clad NaI(Tl) Scintillation Crystal Response to Gamma Photons, Nuclear Instruments and Methods 107 (1973) 465-475.
- [5] K. Saito, S. Moriuchi, Monte Carlo of Accurate Response Functions for a NaI(Tl) Detector for Gamma Rays, Nuclear Instruments and Methods. 185 (1981) 299-308.
- [6] M.J. Berger, S.M. Seltzer. Response Functions for sodium iodide scintillation detectors. Nucl. Instr. and Meth. 104 (1972) 317.
- [7] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurement (John Wiley and Sons, U.S.A. 1979)