

ACTIVACIÓN NEUTRÓNICA DEL BÚNKER DE UN CICLOTRÓN PARA PRODUCIR RADIOFÁRMACOS



KAREN ARLET GUZMÁN GARCÍA

Ingeniera de Desmantelamiento y Recuperación Ambiental.

ENUSA INDUSTRIAS AVANZADAS, S.M.E (GRUPO SEPI) ENUSA-ENSA A.I.E



MANUEL SANTIBAÑEZ ORTIZ

Ingeniero de Proyectos en el Área de Desarrollo Técnico e Innovación.

EQUIPOS NUCLEARES, S.M.E (GRUPO SEPI) y ENUSA-ENSA A.I.E



PATRICIA PÉREZ MARTÍN

Ingeniera de Desmantelamiento y Recuperación Ambiental.

ENUSA INDUSTRIAS AVANZADAS, S.M.E (GRUPO SEPI) ENUSA-ENSA A.I.E

TIAGO SALGADO

Advanced Accelerator Applications (AAA) Molecular Imaging Ibérica.

GRUPO NOVARTIS

Technical Manager of Iberia Advanced Accelerator Applications

INTRODUCCIÓN

El ciclotrón es un acelerador de partículas para la producción de radioisótopos para Tomografía por Emisión de Positrones (PET), tales como el 13-N, 11-C y 18-F [1]. Durante el bombardeo de blancos se puede producir una pérdida o desviación del haz, generando altos niveles de neutrones rápidos y rayos gamma. La interacción del haz con los blancos y el sistema de colimación dará como resultado la producción de neutrones secundarios que surgen de las reacciones (p, n) (d, x), causando la activación de las estructuras del propio ciclotrón, así como de las infraestructuras circundantes, tales como los muros del búnker, logrando alcanzar algunos centímetros de profundidad del hormigón del recinto. Según distintas referencias [1-5], la máxima activación del hormigón se produce entre los 20-30 cm de profundidad, llegando hasta los 50 cm en algunos casos.

En la instalación objeto de este trabajo existe un ciclotrón

de la marca General Electric Medical Systems, modelo PETtrace con una energía máxima de 16,5 MeV (**Figura 1**) colocado dentro de un búnker de 4 x 4 m por 3 m de altura, con paredes de hormigón de 2 m de espesor. Por razones estratégicas y de producción se ha decidido trasladar el ciclotrón a una nueva instalación tras operar durante 12 años. Para la retirada del ciclotrón es necesario derribar parte de un muro construido con bloques de hormigón prefabricados y macizados con hormigón in situ, al objeto de que pudiera ser retirado sin comprometer la estructura del edificio.

En los primeros 5 años de funcionamiento no se implementó ningún dispositivo adicional para reducir la producción de neutrones secundarios generados en el bombardeo de blancos. Posteriormente, en los últimos 7 años, se añadió un moderador de polietileno boratado para reducir la producción de neutrones secundarios y reducir el tiempo de espera para ingresar al búnker con niveles aceptables de radiación.

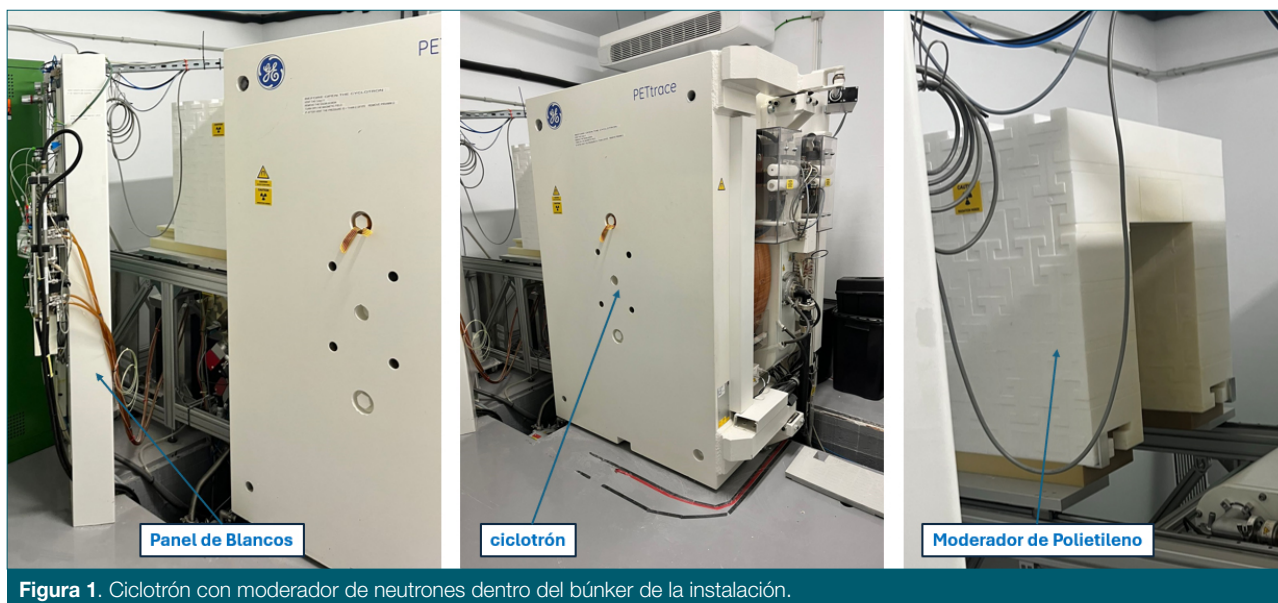


Figura 1. Ciclotrón con moderador de neutrones dentro del búnker de la instalación.

El objetivo de este trabajo es definir y llevar a cabo un plan de caracterización radiológica inicial del búnker, determinar el alcance de los trabajos de extracción del ciclotrón, la previsión de generación de residuos radiactivos, y conocer el estado actual del búnker para su uso con otros fines, por lo que es importante determinar el grado de activación actual del búnker. Por todo ello, ENUSA-ENSA AIE (EEAIE) definió y llevó a cabo un plan de caracterización radiológica inicial del búnker implementando técnicas analíticas con Modelos Matemáticos (MCNP) y posterior extracción de testigos con un análisis de espectrometría gamma de dichas muestras.

METODOLOGÍA

Debido a la presencia del ciclotrón en el búnker, existe un alto fondo radiológico con puntos calientes en algunas zonas cercanas al ciclotrón. Por ello, para determinar el grado de activación en las paredes, se descartó realizar la caracterización radiológica con medidas directas y se diseñó un plan de caracterización mediante la extracción de testigos de hormigón en diversos puntos del recinto. Con este enfoque se examina, además, el estado radiológico en la profundidad del hormigón.

Selección de la Posición de los Testigos de Hormigón

Se hizo una selección de puntos de extracción de los testigos según el comportamiento de los neutrones generados en el ciclotrón, tanto para los puntos de mayor impacto neutrónico como los de menor para determinar la mínima y máxima activación, basándose en la literatura y en simulaciones Monte Carlo del búnker.

Referencias bibliográficas

Diversas referencias indican que el mayor impacto debido a los neutrones secundarios se da en las paredes más cercanas al bombardeo de los blancos [6,7]. Según las características específicas de cada instalación y vida operativa, este mapa radiológico de fluencia neutrónica variará de una instalación a otra. En base a esto, se hizo una pre-selección de los puntos de extracción. Para ob-

tener unos resultados más representativos de esta instalación, se realizó también un análisis específico con simulación Monte Carlo.

Método Monte Carlo

Mediante los métodos Monte Carlo con el código MCNP6.2 [8] se ha desarrollado un modelo específico de esta instalación (**Figura 2**), definiendo los elementos estructurales del ciclotrón, del moderador de neutrones y del búnker. Además, se define el término fuente como una distribución de evaporación [9] contrastada con la fuente teórica de Carroll [10], y función maxwelliana [11], que se define como indica la siguiente ecuación [9].

$$(E) = C \cdot E \cdot \exp\left(-\frac{E}{T}\right) \quad (1)$$

Donde:

- C es un factor de normalización
- E es la energía del neutrón en MeV
- T es la temperatura

Dicha función está predeterminada por MCNP como "ERG -5 a Evaporation spectrum", de modo que así se define el término fuente SDEF [8].

Resultados del modelo MCNP

En las **Figuras 3 y 4**, se observan los resultados de fluencia neutrónica en dos cortes y con dos configuraciones del blanco, con y sin moderador. Los resultados indican un mayor impacto en las zonas cercanas al blanco del ciclotrón.

En las figuras se observa la actuación del moderador implementado en los últimos años de vida del ciclotrón, que reduce la fluencia neutrónica en las paredes cercanas.

Los puntos de mayor impacto son los más cercanos al blanco, por lo que los puntos de extracción se seleccionaron lo más cerca posible a estos puntos de interés, con una mayor probabilidad de activación. Los puntos de

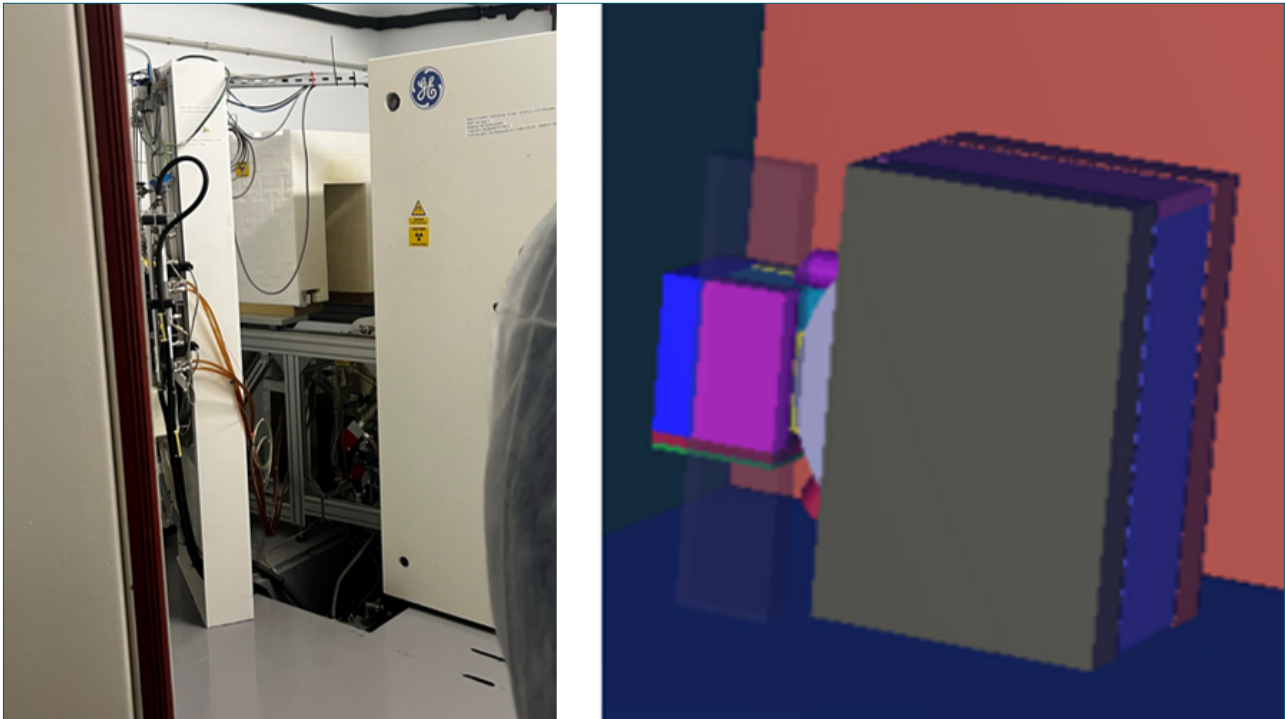


Figura 2. Ciclotrón con moderador de neutrones dentro del búnker de la instalación y modelo MCNP.

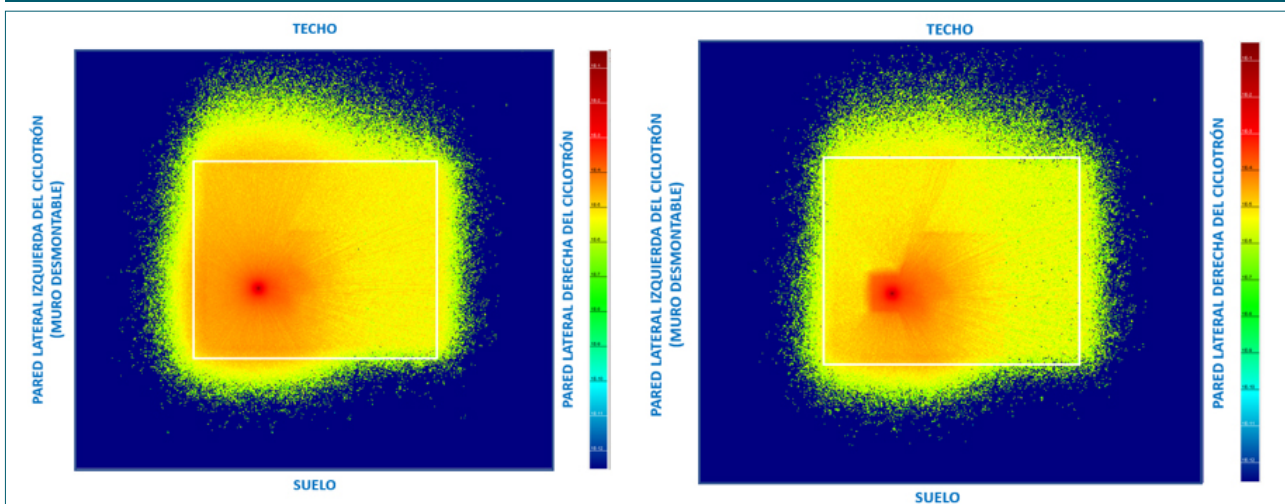


Figura 3. Resultados del flujo neutrónico del blanco sin moderador (izq.) y con moderador(dcha.) (corte longitudinal).

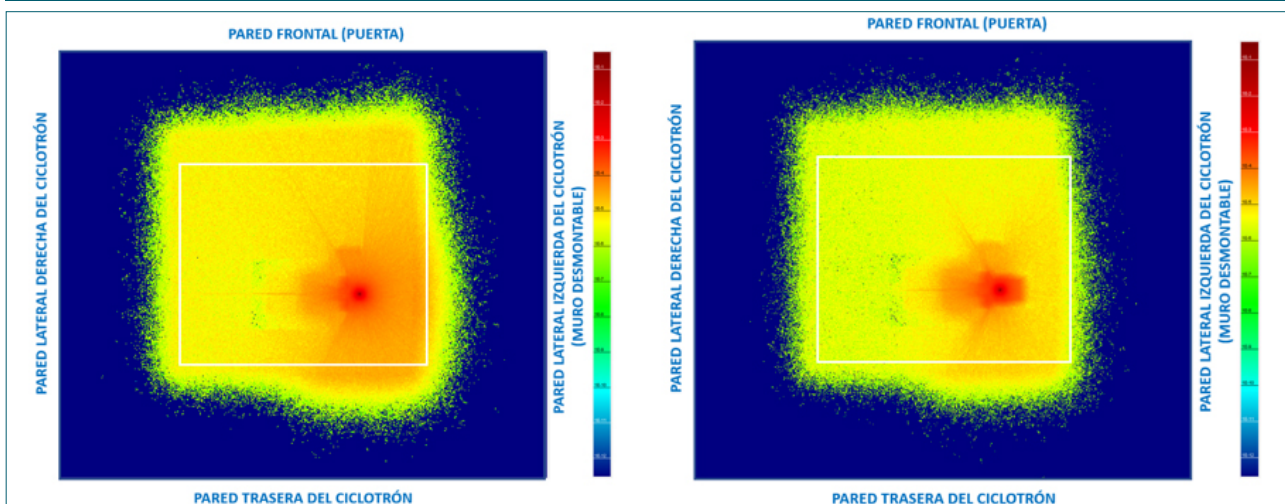


Figura 4. Resultados de la fluencia neutrónica del blanco sin moderador (izq.) y con moderador (dcha.) (corte superior).

menor impacto se seleccionaron en las superficies circundantes (paredes, suelo y techo), con menor fluencia neutrónica, tal como muestra el estudio de fluencia neutrónica realizado con MCNP.

Extracción de los Testigos de Hormigón

Tras los análisis realizados, EEAIE definió los 11 puntos de extracción de interés en el búnker y los procedimientos de operación para la extracción de testigos. Algunos de los puntos fueron redefinidos in situ según las condiciones de operación por el espacio de operación disponible.

La profundidad máxima de extracción fue establecida en 55 cm, siendo la previsión de ser la mayor profundidad que pudiera estar activada según lo valorado con referencias y modelos matemáticos.

Se extrajeron 10 de los 11 puntos inicialmente definidos, ya que el punto del techo (testigo 6) se descartó por la posibilidad de dañar el ciclotrón durante la extracción. La identificación y posición final de los testigos se indican en la **Figura 5**.

Una vez extraídos, cada testigo se seccionó en porciones

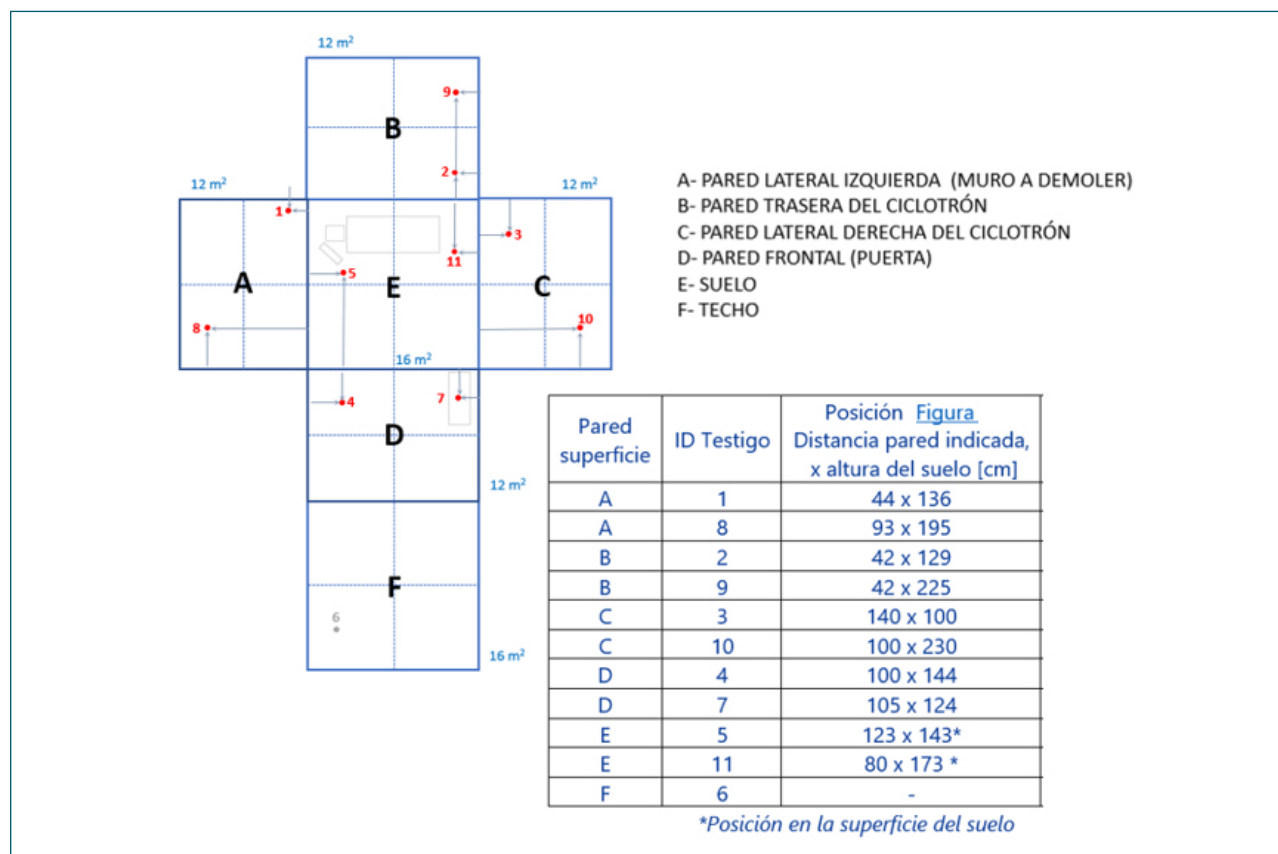


Figura 5. Diseño de caracterización por medio de testigos de hormigón.



Figura 6. Testigos 1 y 8 extraídos en el muro construido con bloques de hormigón prefabricados.



Figura 7. Testigos de hormigón extraídos en la puerta, suelo y paredes del búnker.

de 5 cm para determinar la profundidad de máxima activación, para cada muestra se realizó de espectrometría gamma con un detector de Germanio Hiperpuro (HPGe) y la adquisición de espectros se realizó con el Software Genie 2000 [12].

Los testigos 1 y 8 no pudieron extraerse como un cilindro macizo de hormigón, por las características descritas anteriormente de este muro, por lo que no se pudieron seccionar ni trazar la profundidad de la activación. La muestra extraída de estos testigos se observa en la **Figura 6**. En la **Figura 7** se muestran el resto de testigos de hormigón.

Resultados

Los resultados de las espectrometrías realizadas sobre los testigos indican que los radionucleidos presentes en las muestras se encuentran muy por debajo de los límites indicados en la Instrucción del CSN, IS-05. Los radionucleidos analizados, así como el límite de la IS-05 [13] se indican en la **Tabla I**.

En general, los resultados reportan valores dos órdenes de magnitud inferiores al límite indicado en la IS-05 (**Tabla I**).

Los radioisótopos ^{152}Eu y ^{60}Co reportan en algunas muestras valores más elevados que el resto de radioisótopos, estando aun así muy por debajo del límite in-

Nombre	IS-05	Nombre	IS-05	Nombre	IS-05	Nombre	IS-05
K-40	100	Zr-95	10	Cs-137	10	Bi-214	10
Mn-54	10	Ru-106	100	Ce-144	100	Pb-214	10
Co-60	10	Rh-106	10	Eu-152	10	Ac-228	10
Zn-65	10	Ag-110-m	10	Eu-154	10		
Nb-94	10	Sb-125	100	Eu-155	100		
Nb-94	10	Cs-134	10	Pb-212	10		

Tabla 1. Radionucleidos analizados y límite de la IS-05 (kBq/Kg).

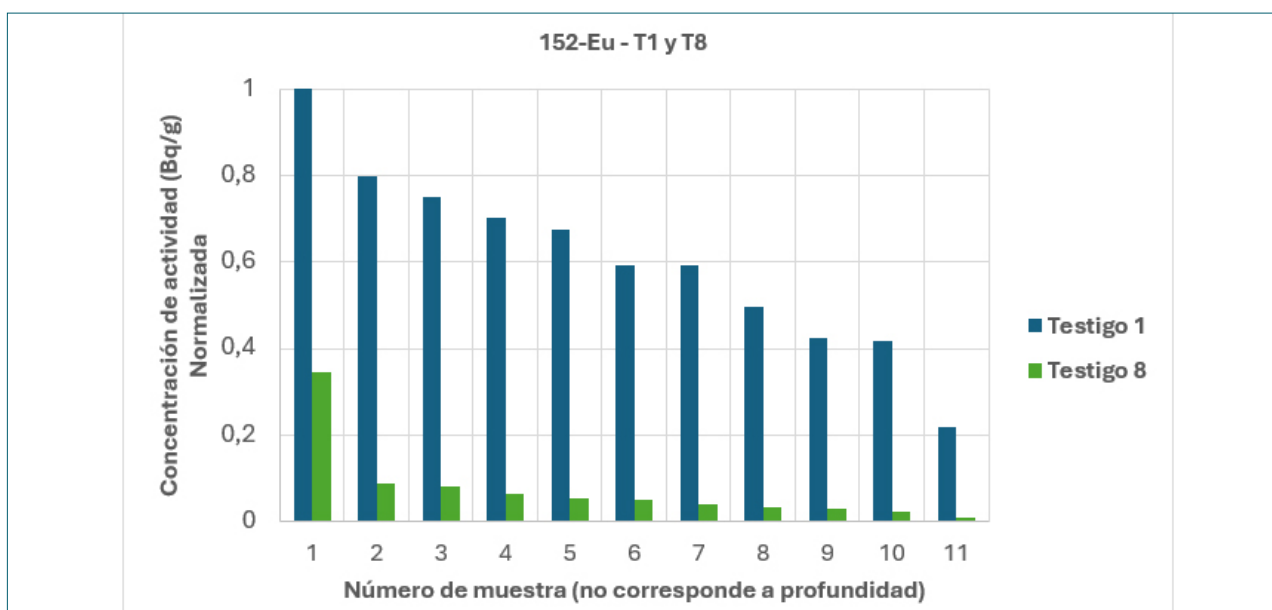


Figura 8. Concentración de actividad normalizada de ^{152}Eu en los testigos 1 y 8 (Pared A)

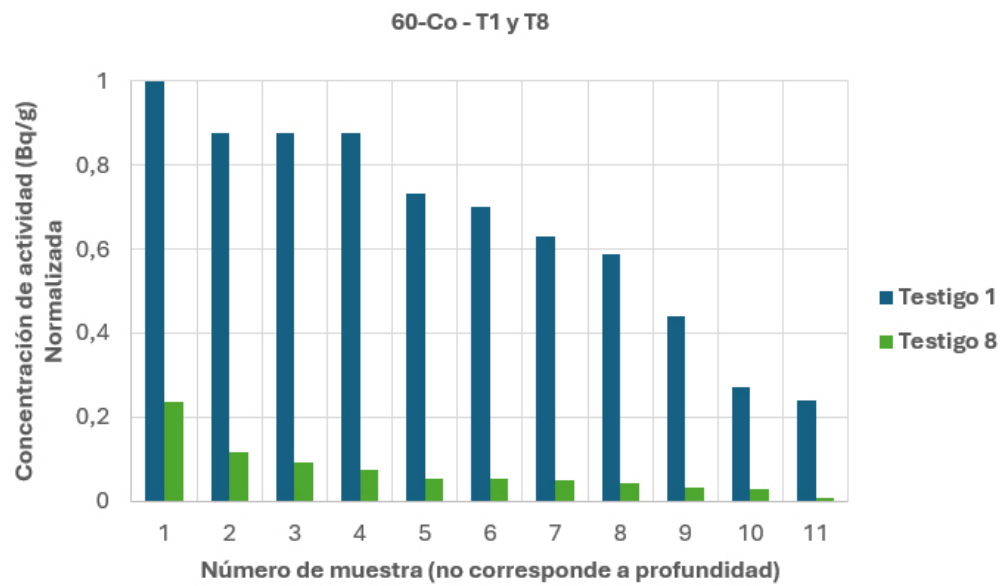


Figura 9. Concentración de actividad normalizada de 60-Co en los testigos 1 y 8 (Pared A).

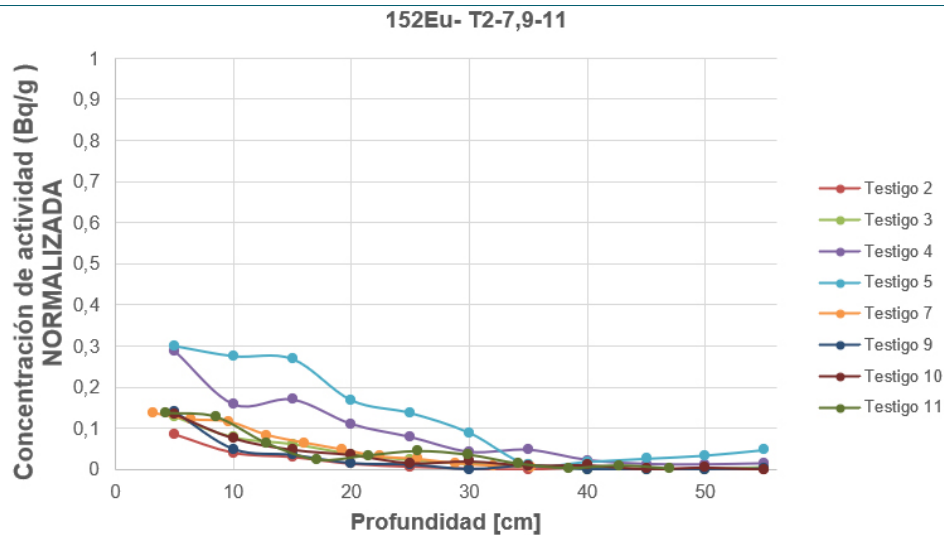


Figura 10. Concentración de actividad normalizada de 152-Eu en testigos 2-5,7,9-11, de las superficies que permanecen en la instalación.

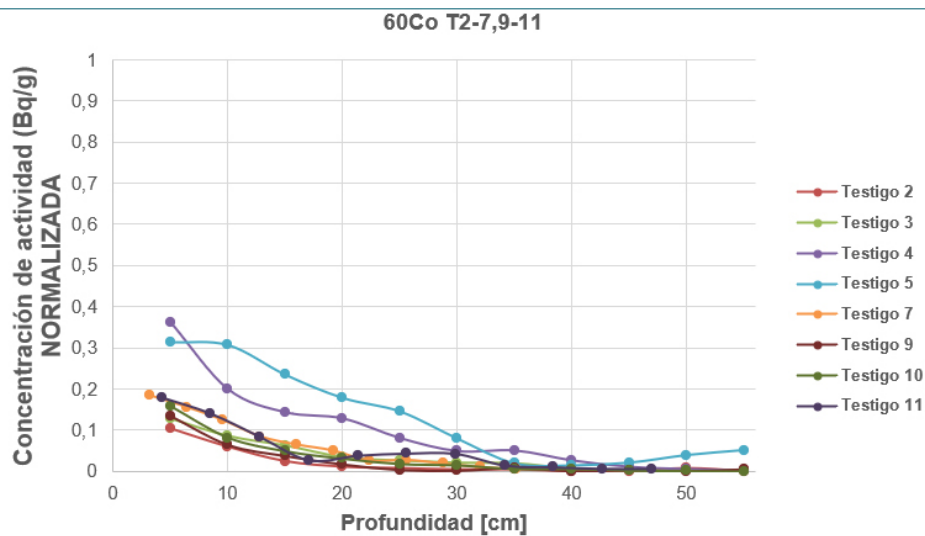


Figura 11. Concentración de actividad normalizada de 152-Eu en testigos 2-5,7,9-11, de las superficies que permanecen en la instalación.

dicado en la **Tabla I**. En el análisis de los testigos 1 y 8, homogeneizados tras su extracción, se observaron las mayores concentraciones de actividad respecto a los testigos extraídos en superficies menos impactadas.

En estos testigos, las muestras no se corresponden con la profundidad por lo expuesto anteriormente. Se presenta en las Figuras 8-9 la concentración de actividad de ¹⁵²-Eu y ⁶⁰-Co normalizada de estos. En las **Figuras 10-11** se presenta la evolución de estos isótopos en el resto de testigos (2-5,7,9-11) en función de la profundidad del muro, datos normalizados.

Se observa que los valores más elevados se encuentran en los primeros centímetros de hormigón, hasta la profundidad de 30 cm. Este comportamiento difiere de las referencias encontradas para otros ciclotrones [1,2,3], y del análisis realizado previamente, donde la presencia de radionucleidos incrementaba con la profundidad, siendo máxima en una profundidad de 20-30 cm y disminuyendo a mayores profundidades. La diferencia se debe a la implementación del moderador de neutrones de polietileno boratado en los últimos 7 años de operación, localizado en la zona de los blancos y con espesor de 20 cm, el cual termalizó los neutrones secundarios generados en los blancos. Los neutrones, al llegar a las paredes del búnker, habrían perdido gran parte de su energía y, siendo térmicos, pudieron interactuar con las primeras capas del hormigón. Si no existiese el moderador, perderían energía en los primeros centímetros de profundidad del muro hasta llegar a ser térmicos, tras varias colisiones, a cierta profundidad del hormigón donde finalmente interaccionarían y activarían las capas más profundas [4-5].

CONCLUSIONES

EEAIE estudió los puntos óptimos para la extracción de testigos de hormigón en base al histórico de la instalación, referencias similares y cálculos matemáticos con modelos Monte Carlo usando código MCNP6.2 [8]. Se extrajeron 10 de los 11 testigos de hormigón inicialmente definidos, los cuales fueron seccionados para ser caracterizados a varias profundidades. Así se determinó la concentración de actividad total presentada normalizada y la profundidad de activación de las paredes del búnker.

Tras los resultados obtenidos, se concluye que los valores reportados son inferiores a los niveles establecidos por la IS-05, **Tabla I**, con elevado margen. Estos resultados son congruentes con la estimación obtenida mediante cálculos con MCNP respecto a la zona con mayor fluencia de neutrones. Por otro lado, se observa que la mayor presencia de radionucleidos de ⁶⁰-Co y ¹⁵²-Eu se presenta en el muro lateral del ciclotrón (Pared A), Testigo 1, obteniéndose los valores más elevados en los primeros centímetros de hormigón.

Con este trabajo, EEAIE demuestra su capacidad tecnológica para el desarrollo de trabajos de esta índole, presentando los resultados obtenidos sobre el estado radiológico actual del ciclotrón PETtrace para proceder a su extracción.

REFERENCIAS

- [1] Vichi S., Infantino A., Zagni F., Cicoria G., Mostacci D., Marengo M., (2020). Activation studies for the decommissioning of PET cyclotron bunkers by means of Monte Carlo simulations, *Radiation Physics and Chemistry*, RPC 108966, Doi 10.1016/j.radphyschem.2020.108966.
- [2] Wagatsuma Kei, Ishiwata Kiichi, Nobuhara Fumiyoshi, Koumura Iwane, Masayuki Kunigi, Oda Keiichi, Miwa Kenta, Ishii Kenji and Toyohara Jun. (2019). Pre-discard estimation of radioactive materials in positron emission tomography cyclotron system and concrete walls of cyclotron vault. *Med. Phys.* 46 (5) 2457/11.
- [3] Carroll L.R., (2001), Predicting long-lived, neutron activation of concrete in a cyclotron vault. *American Institute of Physics AIP Conference Proceedings* 576, 301, doi:10.1063/1.1395309.
- [4] Masumoto K., Toyoda A., Eda K., Izumi Y., Shibata T. (2003). Evaluation of radioactivity in accelerator building and its application to decontamination work. *Journal of Radioanalytical and Nuclear chemistry*, Col. 225, No. 3: 465-469.
- [5] Matsumura H., Toyoda A., Masamoto K., Yoshida G., Yagishita T., Nakabayashi T., Sasaki H., Matsumura K., Yamaya Y and Miyazaki Y. (2018). In-situ determination of residual specific activity in activated concrete walls of PET-cyclotron room. *IOP Conf. Series: Journal of Physics: Conf. series* 1046, 012016. Doi:10.1088/1742-6596/1046/1/012016.
- [6] Fang Po-Wen, Wang Kuan-Wen, Hsieh Ying-I, Huang Ju-Chuan and Sheu Rong-Jiun, (2022). Characteristics of neutron production and concrete activation in cyclotron vaults for self-shielded and non-shielded facilities. *Radiation Physics and Chemistry*, 21:110448. Doi/10.1016/j.radphyschem.2022.110448.
- [7] Méndez Villafañe, R., Martí-Climent J M., Peñuelas I., Vega-Carrillo H.R. and Barquero R. (2005). Study of the neutron field in the vicinity of an unshielded PET Cyclotron. *Physics in Medicine and biology* 50:5141-5152.
- [8] MCNP6, (2017) Manual User LA-UR-17-29981
- [9] Benavente J.A. Vega-Carrillo H.R., Lacerda M.A.S., Fonseca T.C.F., Faria F.P. (2015). Neutron Spectra due ¹³N production in PET cyclotron. *Applied Radiation and Isotope*, 99: 20-24.
- [10] Carroll, L.R. (2002), Estimating the radiation source term for PET isotope targets. In: *Proceedings of the 9th International Workshop on Targetry and Target Chemistry*, Turkey Finland.
- [11] Vega Carrillo, H.R. (2001). Neutron Energy Spectra inside a PET cyclotron vault room. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 463: 375-386.
- [12] GENIE 2000 Spectroscopy Software, operations, CANBERRA, 2006.
- [13] Instrucción del CSN IS-05, de 26 de febrero de 2003, del Consejo de Seguridad Nuclear, por la que se definen los valores de exención para nucleidos según se establece en las tablas A y B del anexo I del Real Decreto 1836/1999. ■