



## EVALUACION COMPUTACIONAL DE LOS ENLACES DE LA ESTRUCTURA CRISTALINA DEL TOPACIO PRE-IRRADIACION CON NEUTRONES DEL REACTOR RP-10

Javier Gómez<sup>a</sup>, Luis Flores<sup>a</sup>, Hans Nowak<sup>a</sup>, Gerardo Lázaro<sup>b</sup>, Mariano Vela<sup>b</sup>, José Solís<sup>b,c</sup>

<sup>a</sup> Instituto de Investigación de Física, Facultad de Ciencias Físicas  
Universidad Nacional Mayor de San Marcos, Apartado postal 14-0149, Lima 14, Perú.

<sup>b</sup> Instituto Peruano de Energía Nuclear – IPEN, Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú.

<sup>c</sup> Universidad Nacional de Ingeniería - UNI, Av. Túpac Amaru Cdra. 9, Lima 25, Perú

---

### Resumen

Se evaluó mediante el método de cálculo TB-LMTO-ASA la densidad de carga, DOS y la estructura de bandas de los diferentes componentes del Topacio, con el objetivo de estudiar los enlaces de su estructura cristalina, que al ser irradiados posteriormente con neutrones en el núcleo del reactor RP-10 son los causantes del daño por la irradiación.

**Palabras claves:** Densidad de Carga, DOS, topacio, estructura cristalina.

---

### Abstract

It was evaluated by means of the method of calculate TB-LMTO-ASA the loading density, TWO and the structure of bands of the different components from the Topaz, with the objective to study enlaces of its crystalline structure, that to the being radiated later with neutrons in the nucleus of reactor RP-10 is the causes of the damage by the irradiation.

**Key Words:** Loading density, TWO, topaz, crystalline structure.

---

### 1. Introducción

En el presente trabajo se realizó un modelamiento de la Estructura Cristalina del Topacio [2,3] y posteriormente se calculó la densidad de carga atómica mediante el código de cálculo TB-LMTO-ASA [4] analizando la Estructura de Bandas y la Densidad de Estados (DOS) de cada elemento que compone el Topacio, y de acuerdo a la Distribución de energía de neutrones existente en el núcleo del reactor RP-10, se evaluó el fenómeno de interacción que en ella ocurre.

### 2. Marco Teórico

#### a. Enlaces Moleculares

Es una fuerza intensa de atracción que mantiene juntos los átomos en las moléculas y en las estructuras cristalinas. En este trabajo se evaluará tres tipos de enlaces: Enlace Covalente. Es el enlace par de electrones (**localizados**), particularmente de química orgánica. Es un enlace fuerte, comparable con la intensidad del enlace en los cristales iónicos, a pesar del hecho que el enlace covalente actúa entre átomos neutros. Enlace Iónico. Están formados por iones

positivos y negativos. Los iones se ordenan de tal modo que la atracción de Coulomb entre iones de signo opuesto es más fuerte que la repulsión de Coulomb entre iones del mismo signo, este enlace es el resulta de la interacción electrostática entre iones con cargas opuestas. Enlace Metálico. Los metales se caracterizan por una conductividad eléctrica alta, y un gran número de electrones deben estar libres (**delocalizados** ó no ligados a sus átomos propios), para moverse en el metal. Los electrones susceptibles de moverse se llaman electrones de conducción. En algunos metales la interacción de los núcleos iónicos con los electrones de conducción proporciona siempre una gran contribución a la energía de enlace pero, en comparación con el átomo libre, la principal característica del enlace metálico es la disminución en la energía cinética de los electrones de valencia en el metal. En la evaluación de los enlaces del Topacio se utilizará la leyenda que se muestra en la Fig. 1.

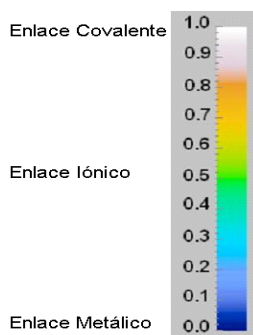


Fig. 1. Leyenda de representación de los tres tipos de enlace de acuerdo a la densidad de carga del Topacio

### b. Espectro Neutrónico

Los neutrones de fisión poseen una energía promedio de 2 MeV, estos son moderados hasta degradar su energía a valores muy pequeños (0.025 eV). En un reactor de investigación como el RP-10 el espectro de neutrones se considera constituido por tres componentes, los llamados neutrones térmicos, epitérmicos (intermedios) y rápidos cuya dependencia con la energía es bien diferenciada según la Fig. 2.

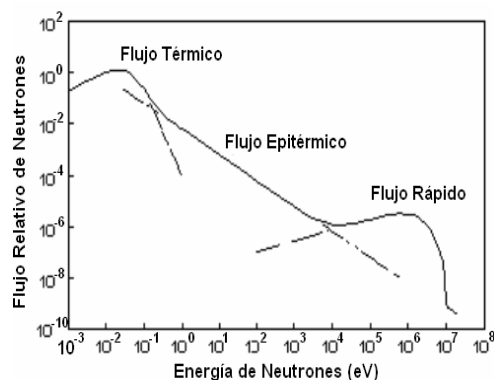


Fig. 2. Distribución típica de la energía de los neutrones en el núcleo de un reactor nuclear

### c. El Código LMTO-ASA

El paquete *LMTO-ASA* esta formado por un grupo de programas entrelazados [4], que realizan el cálculo de las constantes de estructura, bandas de energía, densidad de estado y densidad de carga. Para que el paquete realice el cálculo en el caso de estructuras abiertas, éste debe colocar esferas intersticiales sin núcleo, en los espacios vacíos de la celda unitaria, tratando el problema como una celda compacta. El paquete *TB-LMTO-ASA* se encuentra en un directorio principal y consiste de 4 grupos de programas que son:

- i. Programas para construir y chequear los datos en el archivo CTRL.

**lmhart.run:** genera potenciales de Hartree atómico y busca el radio MT.

**lmovl.run:** calcula y muestra las esferas solapadas.

**lmes.run:** busca esferas intersticiales.

**lmctl.run:** reescribe el archivo CTRL conforme a los parámetros en el CTRL original e inserta nuevos valores.

- ii. Programas para calcular las constantes de estructura y el cálculo autoconsistente.

**lmstr.run:** genera las constantes de estructura.

**lm.run:** es el programa principal LMTO lleva a cabo las iteraciones autoconsistentes.

- iii. Programas para calcular los datos que serán visualizados.

**lmbnd.run:** genera las bandas de estructura para ser ploteado.

**lmdos.run:** genera la densidad de estado para ser ploteado.

**lm.run:** genera archivos de la densidad de carga para luego ser ploteados. (Este es el mismo del grupo *ii* pero con diferente opción.)

- iv. Programas de visualización.

**gnubnd.run:** visualiza las bandas de estructura.

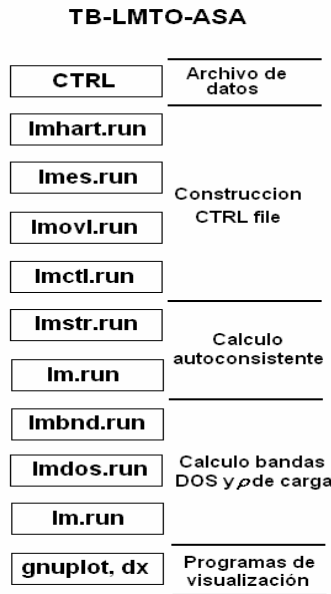
**gnudos.run:** visualiza la densidad de estados.

**gnucharge.run:** visualiza las densidades de carga y la ELF.

**Data explorer (dx).** (programa adicional)

Diagrama de Flujo del Programa TB-LMTO-ASA

Todos los programas se encuentran en el directorio principal. El paquete LMTO se resume en el siguiente diagrama de flujo:



**3. Resultados**

Se determino mediante la medición con monitores de oro la distribución del flujo de neutrones en el reactor RP-10, tal como se muestra en la Fig. 3

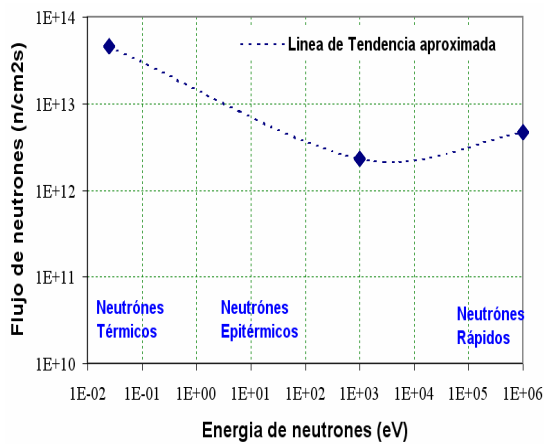


Fig. 3. Distribución del flujo de neutrones en el reactor RP-10

Los valores de la medición en detalle son: los neutrones térmicos tienen un promedio de 4,64x10<sup>13</sup> (1,30%) n/cm<sup>2</sup>s, los neutrones epitérmicos 2,30x10<sup>12</sup> (3,10%) n/cm<sup>2</sup>s y los

neutrones rápidos 6,44x10<sup>12</sup> (5,13%) n/cm<sup>2</sup>s. Todos estas mediciones están dadas para una potencia de operación del reactor de 10MW. El topacio es un fluorsilicato de aluminio con formula química, escrita como Al<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>(F,OH)<sub>2</sub>, esto indica la sustitución parcial isomórfica de la sustitución de los iones de fluor (F<sup>-</sup>) por grupos de hidroxilo (OH<sup>-</sup>). La concentración de F<sup>-</sup>/OH<sup>-</sup> puede variar dependiendo del origen del cristal de Topacio [6]. Debido a ello se realizó el cálculo de la estructura de bandas del Topacio en dos tipos de celdas.

- (A) Estructura cristalina del Topacio con iones de F<sup>-</sup> al 100% y grupos de OH<sup>-</sup> al 0%, y
- (B) Estructura cristalina del Topacio con iones de F<sup>-</sup> al 0% y grupos de OH<sup>-</sup> al 100%

En la Fig. 4, se muestra las posiciones de los átomos, con una densidad de carga aproximada a 0,043eV, de la estructura cristalina del Topacio del tipo (A). El color indica la localización de los electrones. Se nota que en este caso existen regiones azules (buena conductividad), pero no estan conectados, es decir *es un aislante*.

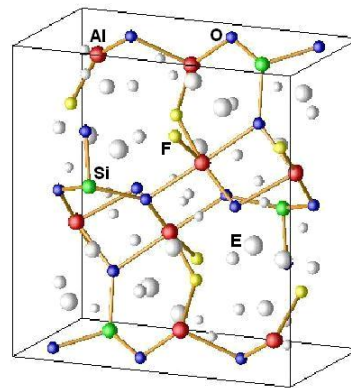


Fig. 4. Posición de los elementos del Topacio de Tipo (A) con una densidad de carga de 0.043

En la Fig. 5, se muestra las posiciones de los átomos, con la misma densidad de carga aproximada a 0,043eV, de la estructura cristalina del Topacio del tipo (B). Se notan regiones de carga que estan conectadas, es decir que *es un metal*.

La densidad de carga que se muestran en las Fig. 4 y 5, solo son de los electrones de valencia, se quitó la densidad de los electrones de coraza. En la Fig. 6 (a), la celda del topacio del tipo (A), el

enlace entre los átomos de oxígeno y silicio tiene una densidad de carga aproximada a 0,043; además que en el enlace la carga esta delocalizada, teniendo un comportamiento del tipo metálico, pero sin embargo los átomos están aislados por no tener conecciones con el resto.

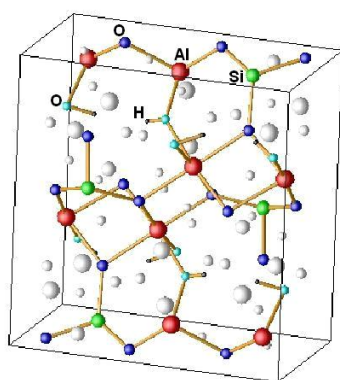


Fig. 5. Posición de los elementos del Topacio de Tipo (B) con una densidad de carga de 0.043

Mientras que en la Fig. 6 (b), se observa enlaces con mayor delocalización por lo que su comportamiento es mas metálico que en el caso anterior. Además que los átomos de aluminio no se conectan con ningun otro átomo y presentan electrones delocalizados, de igual forma el silicio.

En la Fig. 7.(a) se observa que las cargas están localizadas y además no existe coneccion con el resto de los átomos determinándose que es un aislante, pero en la Fig. 7.(b) existe un enlace con los átomos de oxígenos, además, los átomos de aluminio y silicio presentan cargas delocalizadas y sin coneccion a otros átomos.

Haciendo un análisis, del  $\rho$  total (Fig. 8 y 9), los átomos de silicio y aluminio tienen electrones delocalizados pero al mismo tiempo estan aislados, es decir, no hay coneccion.

En el topacio del tipo (A) (a), la coneccion se da entre oxígenos y silicios, mientras que en el topacio del tipo (B) (b), la coneccion se da para los oxígenos. El Aluminio en el Topacio del tipo (A) (Fig. 10.a), se encuentra aislado su enlace es del tipo aislante (tiene una banda prohibida de 1,78eV).

Todo lo contrario ocurre con el Topacio del tipo (B) (Fig. 10.b), donde se observa que tiene un comportamiento metálico, pero con pocos estados de energía. El Silicio en los casos del tipo de topacio (A) ó (B) tiene un comportamiento aislante (Fig. 11.a y 11.b), con una banda prohibida de 2,17eV de energía y pocos estados de energía. Los Oxígenos (O1, O2 y O3) del tipo (A) tiene un comportamiento aislante (Fig. 12.a, 13.a y 14.a), con una banda prohibida de 1,67eV. Mientras que el de tipo (B) se comportan como conductor por una ligera densidad de estado que crusa la Energía de Fermi. (Fig. 12.b, 13.b y 14.b).

El Fluor del Topacio del tipo (A) presenta una banda prohibida de 2,02eV, comportandose como aislante (Fig. 15.a), mientras que el Topacio del tipo (B) la gran contribución a su estado conductor se debe a la molécula de OH<sup>-</sup>, en donde las bandas de energía pasan la Energía de Fermi. (Fig. 15.b).

#### 4. Conclusiones

En conclusion a lo evaluado, el Topacio que tiene los enlaces mas debiles en el de tipo (A), esto me indica que si los irradiamos con neutrones en el núcleo del reactor RP-10 el cristal sufrira daños por interaccion con los neutrones al romper algunos enlaces.

La radiación de neutrones, que es una radiación indirectamente ionizante, al interaccionar con el Topacio tipo (A) le causa defectos, por tal motivo y de acuerdo a la distribución del flujo de neutrones en función de la energía (Fig. 3), los neutrones adecuados para producir estos daños, son los que están en el rango de los Epitérmicos.

Para energías mayores, que es el rango de los neutrones Rápidos, el daño causado al cristal de Topacio no se produce debido a que su probabilidad de interacción con los componentes del Topacio del tipo (A) (Si, F y O), es muy baja. Para el caso del Aluminio se necesita energías del orden de 6,8MeV a 11,1MeV [6], que el RP-10 produce cantidades mínimas.

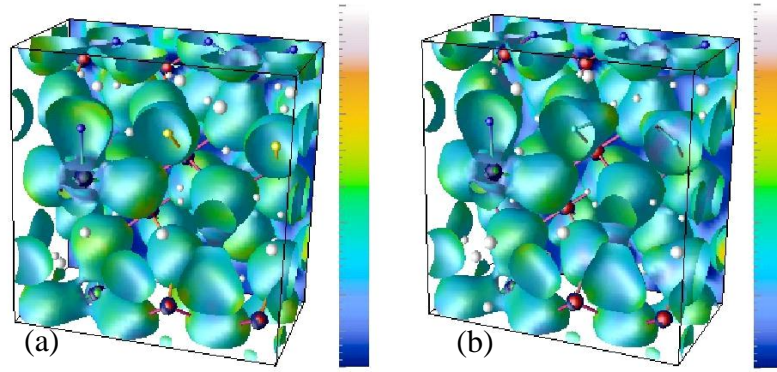


Fig. 6. Densidad de carga de valencia ( $\rho_v=0.043$ ), de la estructura de Topacio del (a) Tipo (A) y del (a) Tipo (B).

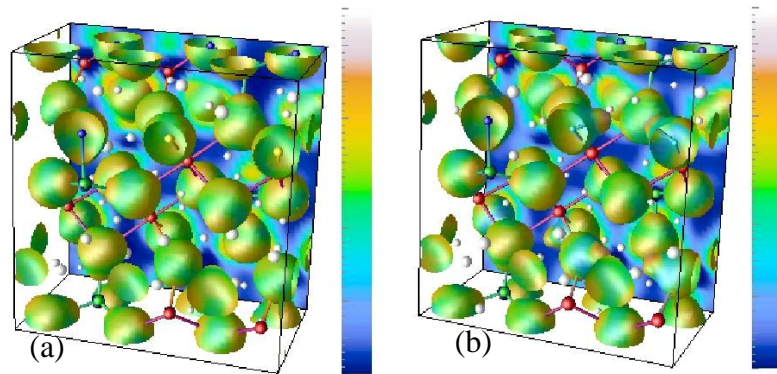


Fig. 7. Densidad de carga de valencia ( $\rho_v=0.09$ ), de la estructura de Topacio del (a) Tipo (A) y del (a) Tipo (B).

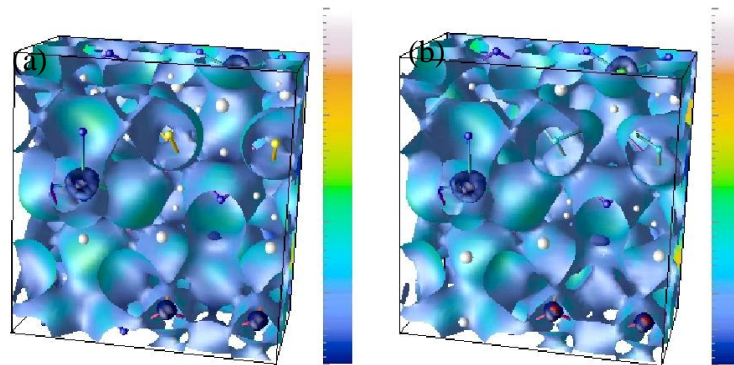


Fig. 8. Densidad de carga de valencia ( $\rho_v=0.026$ ), de la estructura de Topacio del (a) Tipo (A) y del (b) ( $\rho_v=0.028$ ) Tipo (B).

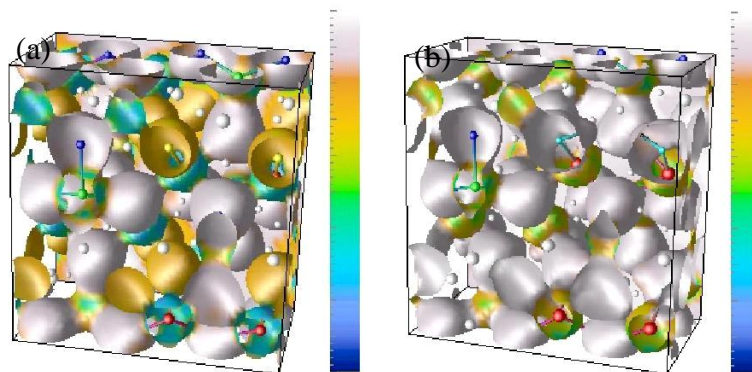


Fig. 9. Densidad de carga total ( $\rho=\rho_c+\rho_v=0.12$ ), de la estructura de Topacio del (a) ( $\rho=\rho_c+\rho_v=0.18$ ) Tipo (A) y del (b) Tipo (B).

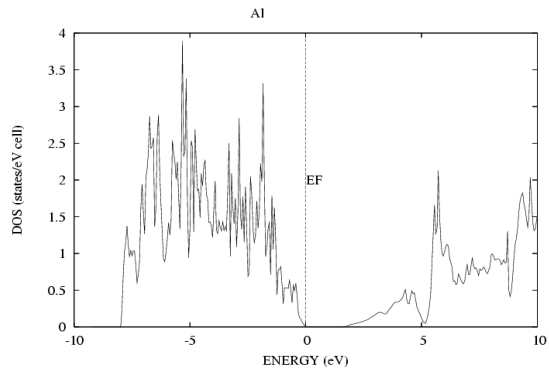


Fig. 10a. Densidad de Estado del Aluminio en Topacio tipo (A)..

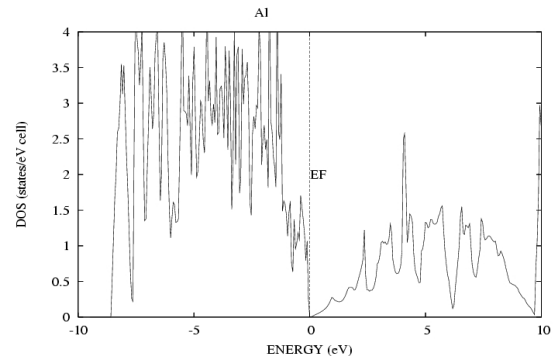


Fig. 10b. Densidad de Estado del Aluminio en Topacio del tipo (B).

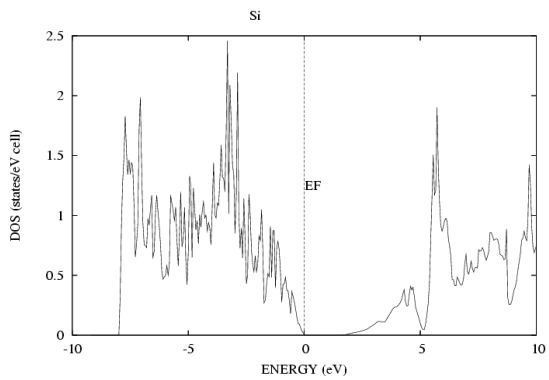


Fig. 11a. Densidad de Estado del Silicio en Topacio del tipo (A).

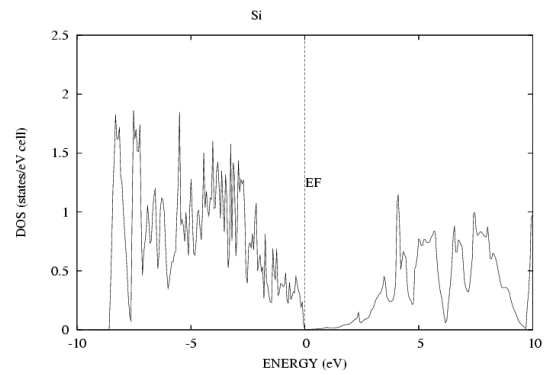


Fig. 11b. Densidad de Estado del Silicio en el Topacio del tipo (B).

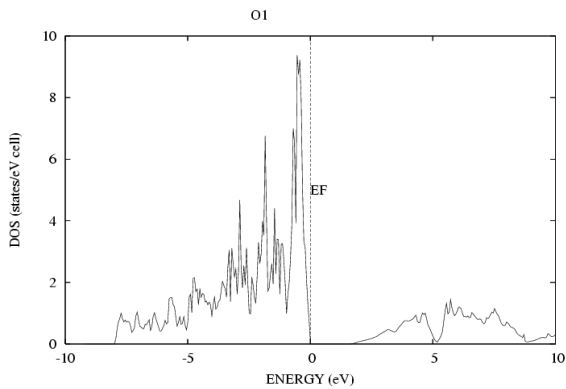


Fig. 12a. Densidad de Estado del O1 en el Topacio del tipo (A).

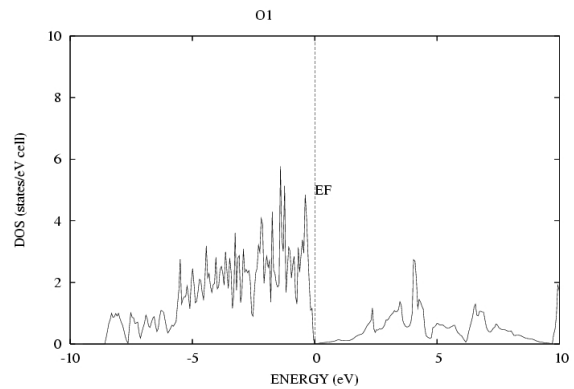


Fig. 12b. Densidad de Estado del O1 en el Topacio del tipo (B).

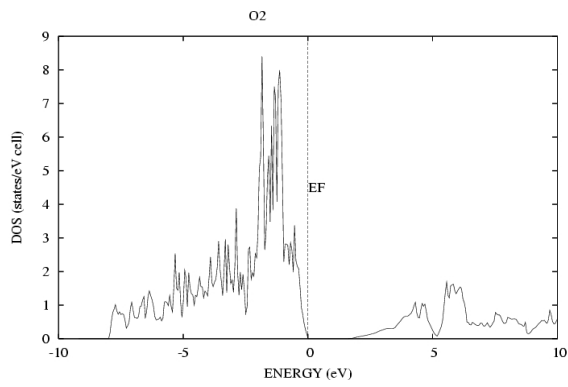


Fig. 13a. Densidad de Estado del O2 en el Topacio del tipo (A).

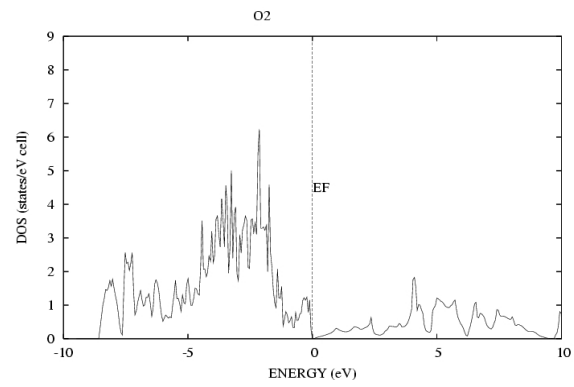


Fig. 13b. Densidad de Estado del O2 en el Topacio del tipo (B).

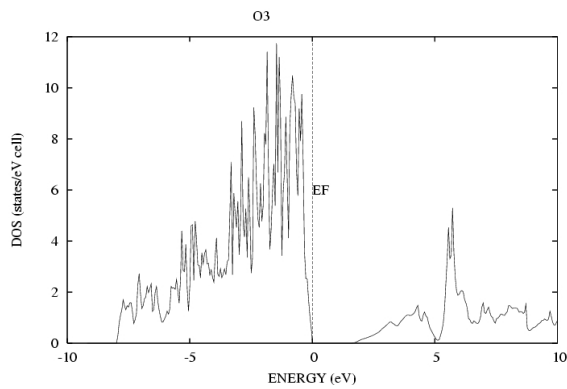


Fig. 14a. Densidad de Estado del O3 en el Topacio del tipo (A).

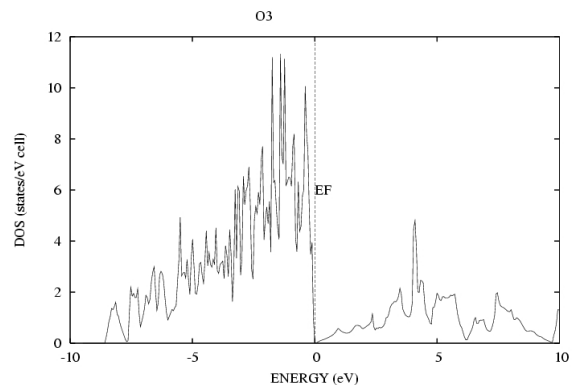


Fig. 14b. Densidad de Estado del O3 en el Topacio del tipo (B).

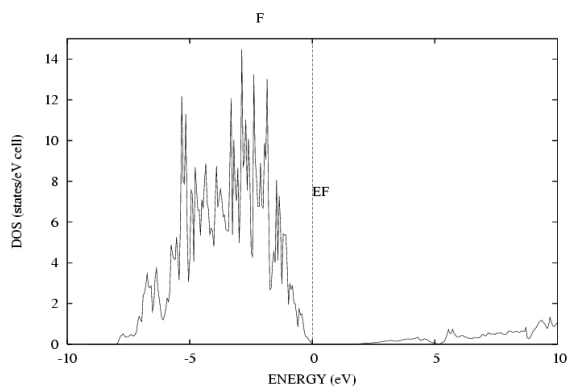


Fig. 15a. Densidad de Estado del Fluor en el Topacio del tipo (A).

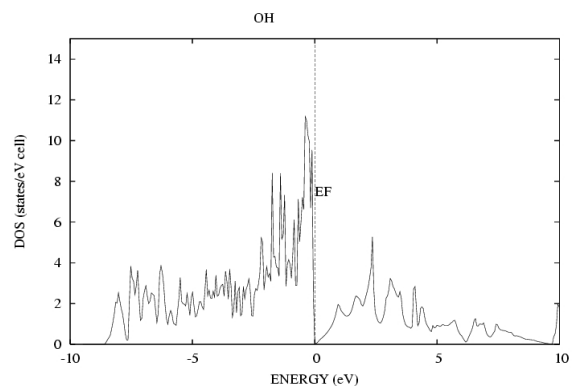


Fig. 15b. Densidad de Estado del Hidróxido (OH) en el Topacio del tipo (B).

## Referencias

- [1]. Wang Ying, Gu Yong-Bao. "Research on radiation-induced color change of white topaz". *Radiation Physics and Chemistry* 63 pp. 223-225 (2002).
- [2]. V. Ivanov, E. Belokonema, J. Protas. "Multipole Analysis of Electron Density in Topaz using X-ray Diffraction Data". *Acta Cryst.* B54, pp. 774-781 (1998).
- [3]. "Topaz mineral data". <http://webmineral.com/data/topaz.shtml> .
- [4]. O. Japsen, O. K. Andersen. "The STTUGART TB-LMTO Program". *Max Plank institut fur Festkorperforschung*. D-70569 Stuttgart, Germany.
- [5]. C. Castagnet, H. C. Rocca. "Inducao de cor, por irradiacao em cristais de Topazio. CNEN/SP. Sao Paulo- Brasil". *IPEN-264*, pp. 05-26 (1989).
- [6]. C. Marques, L. Santos, A. N. Falcao, R. C. Silva, E. Alves. "Luminescence studies in color centres produced in natural topaz". *Journal of Luminescence* 87-89. pp. 583-585 (2000).
- [7]. Eduardo Gurdenali Yukihiro. "Devandando a core a termoluminescencia do topazio: um estudo dos defectos". *Teses Brasil* (2000).