

USO DEL DEDAL CENTRAL DEL REACTOR NUCLEAR TRIGA MARK III COMO UNA FUENTE INTENSA DE RADIACION GAMMA.

J.L. Iturbe, J. Serrano, J. Villarreal,
S. Bulbulian y C. Archundia*

Centro Nuclear de México

Instituto Nacional de Energía Nuclear

(recibido 19 de octubre, 1977)

RESUMEN

Se presenta el uso del reactor Triga Mark III del Centro Nuclear de México, una vez terminada su operación habitual, como una fuente intensa de radiación gamma que proporciona dosis mayores que 1 Mrad en un tiempo de irradiación de 10 minutos. Se examina la aceptable concordancia encontrada entre los valores experimentales de las dosis totales obtenidos mediante el dosímetro químico de ácido oxálico en solución acuosa, con los calculados teóricamente con base en la generación de la radiación gamma debida a los productos de fisión, considerando la atenuación dentro del núcleo del reactor. Asimismo, se discuten los requerimientos para obtener confiabilidad en los resultados.

ABSTRACT

The use of the reactor Triga Mark III of the Nuclear Centre of Mexico after shut-off as an intense gamma source is presented.

Doses higher than 1 Mrad in 10 minutes irradiation time were obtained as determined by the aqueous oxalic acid dosimeter. A comparison made of the experimental values with the theoretical ones based on the attenuated gamma flux due to the fission products were in acceptable agreement. Also the requirements needed to obtain reliable results are discussed.

1. INTRODUCCION

En este trabajo se presenta la posibilidad de usar el dedal central del reactor nuclear Triga Mark III del Centro Nuclear de México, una vez terminada su operación habitual, como una fuente intensa de radiación gamma que proporciona dosis mayores que 1 Mrad en tiempos cortos de irra

* Centro de Estudios Nucleares, Circuito Exterior, Ciudad Universitaria. Universidad Nacional Autónoma de México.

diación. Asimismo se comparan los valores experimentales obtenidos con los cálculos teóricos y se señala concordancia entre éstos.

La necesidad de realizar este trabajo tuvo su origen en un proyecto de investigación en Química Nuclear^(1,2) en el que se requerían irradiar con radiación gamma muestras de 100 mg de bromato de potasio marcado con ⁸⁰Br cuya vida media es de 17.6 minutos.

Como base en mediciones hechas del flujo gamma durante la operación de varios reactores de investigación como el Z O E en Chatillon y el EL-2 en Saclay, Francia^(3,4), el de agua pesada del Instituto Boris Kidrič en Yugoslavia⁽³⁾ y el heterogéneo enfriado y moderado con agua ligera DR2 en la Comisión de Energía Atómica Danesa^(6,9), se escogió el dosímetro químico de ácido oxálico en solución acuosa aereada para efectuar la dosimetría del flujo gamma del reactor Triga Mark III después de su operación.

Comparado con otros dosímetros existentes el ácido oxálico presenta las siguientes características^(3,5).

a) Tiene una mínima posibilidad de transformarse en un material radiactivo por interacción con los neutrones que se producen o que están presentes en el reactor.

b) La respuesta es independiente del espectro de energías gamma de la fuente usada.

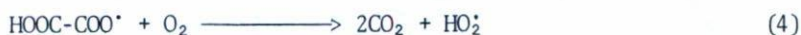
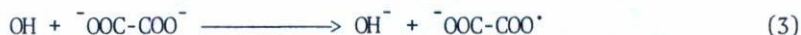
c) Dependiendo de que la concentración inicial del ácido oxálico se encuentre entre 0.025 y 0.6 molar, el intervalo de dosis absorbida medible queda comprendido entre 0.5 y 135 Mrad.

d) Es independiente de la razón de dosis hasta 2×10^8 rad/s cuando se utilizan concentraciones entre 0.025 y 0.050 molar y hasta 2×10^{10} rad/s para una concentración de 0.1 molar⁽⁷⁾.

f) No es sensible a las impurezas o a la luz, por lo que para su preparación pueden usarse los reactivos químicos comunes en un laboratorio sin necesidad de una purificación previa.

La descomposición radiolítica de las soluciones acuosas aereadas de ácido oxálico con concentraciones entre 0.025 y 0.6 molar forma productos estables tales como el hidrógeno, el peróxido de hidrógeno y el dióxido de carbono por cada molécula de ácido oxálico transformado, cuya presencia se ha determinado en el amplio intervalo de pH entre 1.3 y 13.

En estas condiciones el mecanismo involucrado puede representarse por las reacciones principales siguientes^(5,7-9).



La transformación del ácido oxálico en solución acuosa producida por la acción de la radiación gamma puede expresarse por el valor $G(\text{ácido oxálico}) = 4.9 \pm 0.4$ ^(3-5,8,9).

2. PARTE EXPERIMENTAL

Fuente de irradiación

La fuente de irradiación gamma fue el reactor Triga Mark III del que se muestra en la figura 1 un esquema de la distribución de los elementos combustibles en el núcleo y sus partes principales.

El círculo central A corresponde al denominado dedal central, donde se irradiaron las muestras y los círculos marcados con B representan al primer anillo de elementos combustibles, así como los círculos marcados con C. Los elementos combustibles están formados por una mezcla de 91.5%, en peso, de hidruro de zirconio con 8.5%, en peso, de uranio metálico enriquecido al 20% en uranio-235. En el segundo anillo el círculo C' representa una barra de control de grafito boratado que tiene seguidor de combustible y el C'' indica la barra de control con seguidor de aire.

En el tercer anillo existen otras barras de control D que tienen las mismas características de las barras señaladas como C'.

El círculo marcado con E corresponde al llamado tubo seco donde también se irradiaron muestras. Las secciones hexagonales y triangulares representan aquellos espacios que pueden ser usados para la irradiación

de muestras relativamente grandes, como serían aquellas muestras cilíndricas con un radio hasta de 6 cm, con sólo retirar los elementos combustibles que estén dentro de esas secciones.

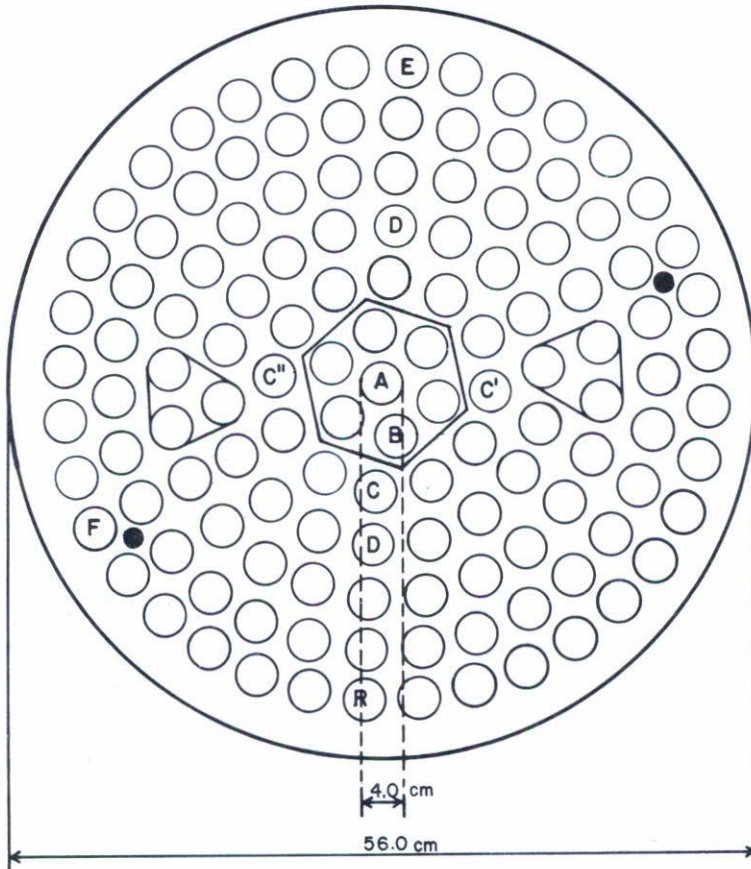


Fig. 1. Componentes del núcleo del reactor nuclear Triga Mark III.

- A) Dedal Central
- B) Elemento combustible
- C) Elemento combustible
- C') Barra de control con seguidor de combustible
- C'') Barra de control con seguidor de aire
- D) Barra de control con seguidor de combustible
- R) Barra de grafito
- E) Tubo seco
- F) Tubo neumático

Los puntos negros representan el alojamiento de las fuentes de neutrones.

Al interrumpir su funcionamiento, la potencia del reactor cae instantáneamente desde 1 MW hasta aproximadamente 100 KW, valor que posteriormente disminuye con gran rapidez en forma exponencial con el tiempo. La población de neutrones presente en estas condiciones es muy escasa y por lo tanto la probabilidad de interaccionar con el dosímetro de ácido oxálico introducido es mínima. Además, las secciones eficaces correspondientes a los elementos químicos carbono, oxígeno e hidrógeno que lo forman son lo suficientemente pequeñas⁽¹⁰⁾ para considerar inexistente la posibilidad de producir un material radiactivo por una reacción nuclear.

Dosímetro de ácido oxálico

Se seleccionó una concentración de 0.025 molar, ya que las dosis totales calculadas previamente en el dedal central correspondieron al intervalo de 0.5 a 6 Mrad. La preparación de la solución dosimétrica se hizo pesando 3.1517 g de ácido oxálico dihidratado de pureza grado analítico, disolviendo y aforando a 1000 ml con agua destilada. Esta solución es estable durante varios meses y no se altera por la influencia de la luz o del aire^(5,11).

Irradiación

Un volumen de 5 ml de la solución de ácido oxálico se colocó en una ampollita de vidrio de 5 ml de capacidad y paredes de 1 mm de espesor, ésta en una bolsa de polietileno que se selló al calor y finalmente se dispuso en un contenedor rígido de polietileno. De este modo, las muestras se introdujeron en el tubo de aluminio del dedal central mediante un cordón de fibra sintética "nylon" hasta situarlas en la parte media de las barras de combustible para lograr la máxima exposición de radiación gamma. En todos los experimentos el tiempo de irradiación fue de 10 minutos.

Procedimiento analítico

Las dosis totales se determinaron en alicuotas de 2 ml de la solu-

ción de ácido oxálico irradiado por el método de titulación con una solución de hidróxido de sodio, previamente valorada, usando fenolftaleína - como indicador de acuerdo con las técnicas ya establecidas^(5,11).

Este método de titulación es sencillo, el único problema es la eliminación cuantitativa del CO₂ producido por la descomposición del ácido oxálico por efecto de la radiación gamma, como se indica en la ecuación 4. Ya que la cantidad de ácido oxálico descompuesto se determina considerando básicamente la diferencia entre los volúmenes de hidróxido de sodio requeridos para neutralizar el ácido oxálico antes y después de la irradiación, la normalidad absoluta de la solución de hidróxido de sodio no tiene mucha importancia.

La eliminación cuantitativa del CO₂ se obtiene por simple calentamiento de la muestra irradiada antes de la titulación, la cual debe ser en frío para lograr una buena reproducibilidad como se comprobó con una serie de testigos. Los detalles de esta técnica y los cálculos necesarios para la obtención del valor final de la dosis se pueden consultar en el Apéndice 3 de una de las referencias citadas en este trabajo⁽⁵⁾.

Además, la confiabilidad de este método quedó demostrada al determinar la dosis en muestras acuosas aereadas de ácido oxálico que se habían irradiado con dosis conocidas de radiación gamma de ⁶⁰Co provenientes del Gammabeam 650 del Centro de Estudios Nucleares de la U.N.A.M. Esta fuente había sido calibrada previamente con el dosímetro de sulfato ferroso de Fricke y el ferroso cúprico de acuerdo con las técnicas descritas con anterioridad⁽¹²⁾.

La fluctuación de los valores obtenidos para las dosis comprendidas entre 2 y 3 Mrad fue de ± 0.106 Mrad que corresponde a un $\pm 3.8\%$ de los valores esperados.

3. RESULTADOS Y DISCUSION

En la figura 2 se presentan las curvas que muestran las dosis de radiación absorbidas por el dosímetro una vez que el reactor ha dejado de funcionar, donde cada punto corresponde a un sólo experimento en el que el dosímetro fue irradiado durante 10 minutos. Puede observarse que la dosis de radiación gamma decae rápidamente debido a la presencia de una alta concentración de radionúclidos de vida media corta producidos

por la fisión del ^{235}U , después llega a una región constante de aproximadamente 0.5 Mrad en la que la radiación gamma está dada principalmente por la suma de los decaimientos exponenciales de los radionúclidos de vida media mayor que los primeros. Es necesario hacer notar que estos últimos valores de dosis no son confiables, ya que la información obtenida de las referencias bibliográficas aquí citadas, indica la incertidumbre que existe hasta la fecha acerca de las dosis mínimas que este dosímetro pueda medir.

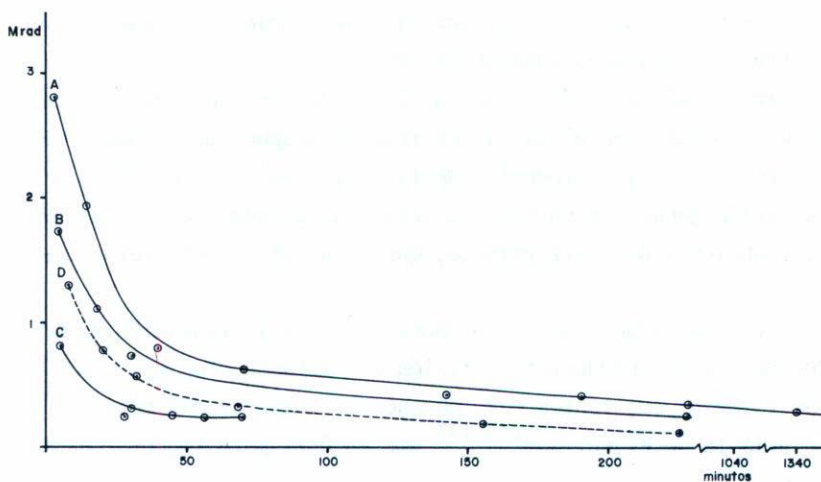


Fig. 2. Variación de la dosis de radiación gamma, en función del tiempo en el dedal central del reactor Triga Mark III después de su operación a 1.0 MW de potencia. Experimentalmente se obtuvieron las curvas A, B y C después de un tiempo de funcionamiento del reactor de:

- A) 2 horas
- B) 60 minutos
- C) 6 minutos
- D) Curva obtenida por cálculo con fórmulas semiempíricas para un tiempo de 2 horas de operación del reactor a 1.0 MW de potencia.

En la misma figura se presenta además, la influencia que tiene el tiempo de operación del reactor a 1.0 MW de potencia en las dosis totales obtenidas una vez que el reactor dejó de funcionar. La dosis máxima después de que el reactor funcionó durante 2 horas fue de 2.0 Mrad como se indica en la curva A, en cambio cuando el reactor estuvo en funciones 6 minutos la dosis máxima fue de 0.8 Mrad como puede verse en la curva C. Para las diferentes series de experimentos se obtuvieron valores de dosis totales que difirieron entre si hasta por un factor de 2, la no reproducibilidad de las medidas está relacionada con varios factores como son las dosis transitorias recibidas por las muestras durante su descenso y ascenso en el interior del núcleo del reactor, así como a otras dificultades experimentales.

Para el cálculo teórico de las dosis se consideró que la emisión gamma predominante en el núcleo del reactor después de su operación habitual, proviene de los productos de fisión. Sin embargo, otras fuentes de radiación gamma pueden ser las actividades inducidas en las estructuras del núcleo y del refrigerante, que en nuestro caso fueron despreciadas.

El cálculo exacto de la potencia debida a la radiación gamma PG - producida por los productos de fisión es bastante complejo, por lo que de las fórmulas existentes para obtener el valor de esa potencia gamma, se escogió la de Wigner-Way^(13,14) que es útil para tiempos mayores que 10 segundos:

$$PG = 0.0315 P \left[t^{-0.2} - (t + t_0)^{-0.2} \right] \quad (6)$$

donde P es la potencia de operación del reactor, en las mismas unidades que la potencia gamma PG; t es el tiempo transcurrido después de que cesó de operar el reactor, también en segundos.

El grupo dominante de fotones emitidos está en la región alrededor de 0.75 MeV⁽¹³⁾ y aunque algunos fotones son emitidos con energías alrededor de 3.0 MeV, éstos son más probables para tiempos de decaimiento menores que 10 segundos.

El flujo de energía ϕ_μ debido a los fotones de 0.75 MeV se calculó considerando, como se indica en la figura 3, que el punto P_1 se encuentra sobre el eje principal de un cilindro circular recto de radio R_0 y altura h , a las distancias h_1 y h_2 de cada uno de los extremos. Haciendo las consideraciones del caso señaladas en una de las referencias que se citan⁽¹³⁾, se llega a la siguiente ecuación:

$$\phi_\mu = \frac{S_V}{2\mu_S} \left[G(\mu_S h_1, b) + G(\mu_S h_2, b) \right] \quad (7)$$

donde la función $G(\mu_S h_1, b)$ está definida como:

$$G(\mu_S h_1, b) \equiv \int_0^b db' F(\tan^{-1} \frac{\mu_S h_1}{b'}, b') \quad (8)$$

Esta función se encuentra en forma gráfica en las referencias bibliográficas citadas^(13,16).

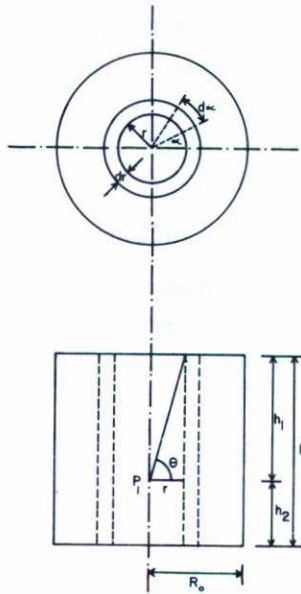


Fig. 3. Cortes transversal y longitudinal de un elemento combustible.

Otro factor importante dentro de la fuente es el de geometría o de construcción, conocido en el idioma inglés como "build-up". Si el punto de interés está suficientemente profundo dentro de una fuente de fotones (considerando que suficientemente profundo es probablemente del orden de la trayectoria libre media de un fotón de 0.75 MeV) de manera que los efectos de frontera sobre el flujo sean despreciables, entonces puede ser aplicable la regla para el medio infinito⁽¹³⁾. De aquí que el flujo colisionado dentro de una fuente cilíndrica sobre la línea de centro axial, incluyendo el factor de construcción, estará dado por la ecuación^(13,16):

$$\phi = \frac{S_V}{2} \sum_{n=1}^N \frac{A_n}{\mu_{S_n}} \left[G(\mu_{S_n} h_1, \mu_{S_n} R_0) + G(\mu_{S_n} h_2, \mu_{S_n} R_0) \right] \quad (9)$$

donde $\mu_{S_n} = \mu_S (1 + \alpha_n)$, A_n y α_n son variables que dependen de la energía de los fotones y se encuentran en forma gráfica para distintos materiales^(13,16).

Para el caso particular del reactor Triga Mark III, el radio del área activa R_0 es de 22 cm y su altura h de 38.1 cm, por lo que el volumen total es de 57932.2252 cm³. Del valor del coeficiente de atenuación $\mu_S/\rho = 0.072102$ cm²/g, se obtuvo el valor $\mu_S = 0.30041384$ cm⁻¹ para una densidad ρ de 4.1665 g/cm³.

Los valores calculados para el factor de construcción de la mezcla hidruro de zirconico-uranio fueron:

$$A_1 = 21.271, A_2 = -20.271, -\alpha_1 = 0.05024 \text{ y } \alpha_2 = 0.027518$$

Por la posición del dosímetro en el dedal central se consideró que $h_1 = h_2 = 19.05$ cm y por consiguiente:

$$\mu_{S_1} = 2.8532 \times 10^{-1} \text{ cm}^{-1}$$

$$\mu_{S_2} = 3.0868 \times 10^{-1} \text{ cm}^{-1}$$

$$\mu_{S_1} h_1 = 5.4352$$

$$\mu_{S_1} R_0 = 6.277$$

$$\mu_{S_2} h_2 = 5.8804$$

$$\mu_{S_2} R_0 = 6.791$$

$$G(5.4353, 6.277) = 1.0$$

$$G(5.8804, 6.791) = 1.0$$

Al operar el reactor durante 2 horas y escoger un tiempo t para considerar una razón de dosis constante promedio durante los 10 minutos de irradiación del dosímetro químico, el cálculo teórico de la potencia gamma generada se obtuvo por substitución del valor $P = 1$ MW en la ecuación 6. Estos valores y los de la magnitud de la fuente por unidad de volumen se encuentran en la Tabla 1.

Substituyendo los valores anteriores en la ecuación 9 se obtuvieron los correspondientes al flujo gamma, el cual se transformó en razón de dosis \dot{D} , expresada en roentgen/horas (R/h), mediante la ecuación^(13,15,16):

$$\dot{D} = k(E) E \phi(E) \quad (10)$$

Para el presente caso particular, en que la energía E de los fotones gamma es de 0.75 MeV, el factor de conversión $k(0.75)$ tiene un valor de 1.95×10^{-6} R/h⁽¹⁶⁾.

T A B L A I

t (s)	PG $(\frac{\text{MeV}}{\text{s}} \times 10^{16})$	S_V $(\frac{\text{MeV}}{\text{cm}^3 \cdot \text{s}} \times 10^{11})$
420	2.5828	4.4583
1200	1.5843	2.6484
1920	1.1600	2.0023
4080	0.6857	1.1836
8340	0.3779	0.6525
13680	0.2372	0.4095

Valores teóricos de la densidad de potencia gamma generada a diferentes tiempos por los productos de fisión, a la terminación de 2 horas de operación del reactor Triga Mark III.

El cálculo de la dosis total recibida por el dosímetro químico se efectuó tomando en cuenta los 10 minutos que estuvo expuesto al flujo γ .

Finalmente, haciendo la consideración de que para las dosis absorbidas en la mezcla agua y ácido oxálico⁽⁸⁾ del dosímetro químico utilizado, $1 R = 0.9796 \text{ rad}$, se llegó a los resultados que se muestran en la Tabla II.

T A B L A II

t (s)	\dot{D} $\left(\frac{R}{h} \times 10^6\right)$	D (Mrad)
420	7.7608	1.2671
1200	4.5867	0.7489
1920	3.4677	0.5662
4080	2.0449	0.3339
8340	1.130	0.1845
13680	0.7092	0.1158

Valores teóricos de la razón de dosis y la dosis total acumulada en los 10 minutos de irradiación obtenidos a diferentes tiempos después de 2 horas de operación del reactor Triga Mark III.

En la figura 2, las curvas A y D correspondieron a los datos experimentales y teóricos respectivamente, considerando que el reactor estuvo en operación 2 horas. Se observa una buena concordancia por lo que respecta a la forma de las curvas, la diferencia en cuanto al valor de dosis puede explicarse por haber considerado en los cálculos teóricos exclusivamente la contribución de la potencia γ debida a los productos de fisión, así como una razón de dosis constante mientras que la muestra estuvo expuesta a un espectro de razones de dosis.

4. CONCLUSIONES

Es posible utilizar el reactor Triga Mark III del Centro Nuclear de México, después de haber interrumpido el flujo de neutrones, como una fuente intensa de radiación gamma. Esta posibilidad está condicionada a que en cada uno de los experimentos de irradiación se determine simultáneamente la dosis absorbida. Para lograr esta finalidad la solución acuosa aerada de ácido oxálico es un dosímetro químico conveniente y confiable, fácil de preparar y de manejar.

Los datos teóricos obtenidos confirman lo adecuado de la elección del dosímetro químico para su uso en el reactor como un monitor de dosis gamma.

REFERENCIAS

1. Juan Serrano Gómez, Comportamiento del ^{80m}Br en cristales de bromato de potasio. Tesis de Licenciatura. Facultad de Química, UNAM (1976).
2. Juan Serrano G., Annealing phenomena following isomeric transition for ^{80m}Br labelled alkali bromates. 9th International Symposium on Hot Atom Chemistry, Blacksburg, Virginia, USA, Sept. (1977)18-23.
3. Ivan Draganić, Oxalic acid: the only aqueous dosimeter for in-pile use. *Nucleonics* 21, No.2(1963)33.
4. J. Sutton, I. Draganić y H. Hering, Técnicas de dosimetría de los neutrones térmicos y de la radiación en pilas. Actas de la Conferencia Internacional sobre la utilización de la energía atómica con fines pacíficos, Naciones Unidas, Ginebra XIV (1956) 181.
5. Niels W. Holm, Erling Bjergbakke, Knud Sehested and Ivan G. Draganić, Investigation of the oxalic-acid system for ^{60}Co dosimetry. *Risø Report No. 111*(1967).
6. J. Fenger, Szilard-Chalmers process in ammonium di-hydrogen phosphate as studies by electrophoresis and electron spin resonance techniques. *Risø Report No. 95*(1964)23.
7. I.G. Draganić and O. Gal, Radiation Chemistry of oxalic acid and oxalates. *Radiation Res. Rev.* 3(1971)167.
8. J.W.T. Spinks and R.J. Woods. An Introduction to Radiation Chemistry, 2nd. Edition, John Wiley and Sons Inc. (1976) Cap. 3,7,8.
9. J. Fenger, Measurements of γ -flux in a thermal column with an oxalic-acid dosimeter. *Risø Report No. 67*(1963).
10. C.M. Lederer, J.M. Hollander and I. Perlman, Tables of Isotopes, 6th Edition, John Wiley and Sons (1967).
11. Niels W. Holm, The oxalic acid dosimeter en Manual on Radiation Dosimetry, Niels W. Holm and R.J. Berry Editors, Marcel Dekker, New York (1970)337.
12. C. Archundia, R. Herrera e I. García Sosa, Efecto de un campo intenso de radiación gamma sobre el dosímetro ferroso-cúprico, *Rev. Mex. Fís.* 24 (1975) FA 127.

13. Reactor Shielding Design Manual, Theodore Rockwell Editor, McGraw Hill Book Co. (1956) Cap. 3, 10, 11.
14. John R. Lamarsh, Nuclear Reactor Theory, Addison Wesley Publishing Co. (1966) Cap. 3
15. S. Gladstone and A. Sesonske, Nuclear Reactor Engineering, Van Nostrand Co. London (1967) Cap. 9,10.
16. Antony Foderaro, Notas sobre Blindaje de Reactores, Comisión Federal de Electricidad, México, D.F.(1975).