

Análisis de activación neutrónica y actividad en el acero de la vasija de un reactor nuclear tipo BWR para su estudio sin riesgos radiológicos en microscopía y espectrometría

M. Moranchel^a, A. García Bórquez^a, and L. C. Longoria^b

^a*Instituto Politécnico Nacional, Escuela Superior de Física y Matemáticas, Departamento de Física, Unidad Profesional “Adolfo López Mateos”, México, D.F., México, e-mail: mmoranchel@ipn.mx; borquez@esfm.ipn.mx.*

^b*Division for Latin America, Department of Technical Cooperation, International Atomic Energy Agency, Room B1109 Wagramerstrasse 5, PO Box 100, A-1400, Vienna, Austria. e-mail: L.Longoria-Gandara@iaea.org*

Recibido el 20 de marzo de 2012; aceptado el 28 de junio de 2012

El material de la vasija de los reactores nucleares está sujeto a daños por irradiación, inducida por el bombardeo de neutrones provenientes desde el núcleo del reactor. Los neutrones se clasifican como rápidos y térmicos, los cuales producen efectos diferentes. Los neutrones rápidos causan daños al material por dislocación o desplazamiento de los átomos de su estructura cristalina mientras que el efecto de los neutrones térmicos es una transmutación nuclear que puede cambiar significativamente las propiedades del material. El tipo e intensidad de daño está en función de las características del material, del flujo de neutrones y de los modos de interacción de los neutrones con las estructuras atómicas del material, entre otras. En este trabajo, alusivo a la transmutación nuclear, se hace un análisis de activación neutrónica de todos los isótopos existentes en el acero de la vasija de un reactor nuclear tipo BWR (Boiling Water Reactor) obteniéndose una expresión analítica para la actividad del acero en función del porcentaje en peso de sus componentes atómicos y se estima teóricamente la actividad en una muestra testigo (del mismo material de la vasija) colocada en el seno del reactor nuclear, desde el inicio de su operación comercial (abril 1995) hasta agosto del 2010. Teóricamente se determinó que una muestra testigo de masa 0.56g (dimensiones $1 \times 1 \times 0.07 \text{ cm}^3$ o equivalente) no genera riesgos radiológicos durante la etapa de preparación, observación y análisis de la muestra en equipos de microscopía electrónica y de difracción de rayos X. Los resultados teóricos se comprobaron experimentalmente midiendo la actividad de la muestra de 0.56 g con espectrometría gamma, los niveles de exposición alrededor de la muestra y la dosis que induce a cuerpo entero y a extremidades mediante dosimetría termo-luminiscente (TLD). Derivado del análisis teórico, se exhiben nuevos elementos químicos en el acero de la vasija como resultado de los fenómenos de activación y de decaimiento radiactivo cuya presencia puede ser un factor fundamental de cambio de las propiedades de la vasija. Este trabajo es un preámbulo de la investigación de daños por irradiación neutrónica al acero de la vasija de reactores de agua en ebullición (BWR) usando técnicas de microscopía electrónica, de espectroscopia y de difracción de rayos X.

Descriptores: Activación; actividad; acero; neutrones.

The vessel material of nuclear reactors is subject to irradiation damage induced by the bombardment of neutrons coming from the reactor core. Neutrons are classified as fast and thermal, which produce different effects. Fast neutrons cause damage to the material by dislocation or displacement of atoms in the crystal structure, while the effect of thermal neutrons is a nuclear transmutation that can significantly change the properties of the material. The type and intensity of damage is based on the characteristics of the material, the flow of neutrons and the modes of interaction of neutrons with the atomic structures of the material, among others. This work, alluding to nuclear transmutation, makes an analysis of neutron activation of all isotopes in a steel boiling water nuclear reactor (BWR) vessel. An analytical expression is obtained in order to model the activity of steel, on the basis of the weight percentage of its atomic components. Its activity is theoretically estimated in a witness sample of the same material as that of the vessel, placed within the nuclear reactor since the beginning of its commercial operation in April 1995, up to August 2010. It was theoretically determined that the witness sample, with a 0.56 g mass ($1 \times 1 \times 0.07 \text{ cm}^3$ dimensions or equivalent) does not present a radiological risks during the stage of preparation, observation and analysis of it in electron microscopy and X-ray diffraction equipments. The theoretical results were checked experimentally by measuring the activity of the sample by means of gamma spectrometry, measurement of the exposure levels around the sample, as well as the induced level to whole body and limbs, using thermo-luminescent dosimetry (TLD). As a result of the theoretical analysis, new chemical elements are predicted, as a result of the activation phenomena and radioactive decay, whose presence can be a fundamental factor of change in the properties of the vessel. This work is a preamble to the investigation of the damage of neutron irradiation on the steel of the vessel of boiling water reactors (BWR) using electron microscopy, spectroscopy and X-ray diffraction techniques.

Keywords: Activation; activity; steel; neutrons.

PACS: 28.41.Qb; 28.20.Fc; 82.80.Jp

1. Introducción

El material de la vasija de los reactores nucleares está sujeto a daños por irradiación inducida por el bombardeo de neutro-

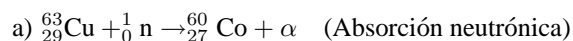
nes provenientes desde el núcleo del reactor. Los neutrones se clasifican como rápidos y térmicos, los cuales producen efectos diferentes [1]. Los neutrones rápidos causan daños al material por dislocación o desplazamiento de los átomos de

su estructura cristalina mientras que el efecto de los neutrones térmicos es una transmutación nuclear que puede cambiar significativamente las propiedades del material [2]. La transmutación nuclear puede dar origen a que el material se convierta en una fuente radiactiva de alto riesgo como en el caso de la vasija de los reactores nucleares, o bien, que se modifiquen las concentraciones atómicas del material dando lugar, en ambos casos, a un cambio significativo de sus propiedades físico-químicas. El tipo e intensidad de daño está en función de las características del material, del flujo de neutrones y de los modos de interacción de los neutrones con las estructuras atómicas del material, entre otras. En este trabajo, alusivo a la transmutación nuclear, se hace un análisis de activación de todos los isótopos existentes en el acero de la vasija de un reactor nuclear tipo BWR y se estima teóricamente la actividad en una muestra testigo (del mismo material de la vasija) colocada en el seno del reactor nuclear, desde el inicio de su operación comercial (abril 1995) hasta agosto del 2010. La estimación teórica de la actividad permitió determinar el tamaño o masa que debe tener la muestra testigo irradiada de manera que sea considerada, bajo la norma oficial mexicana NOM-039-NUCL-2011 [3], como una muestra radiactiva exenta de provocar riesgos radiológicos. Para los cálculos, el flujo de neutrones en la posición del testigo se cuantificó mediante el código DORT-4 y la composición química del acero de la vasija se determinó por microanálisis con un microscopio electrónico de electrones (TEM) marca JEOL, modelo A234, usando electrones de 200 keV de energía. Los resultados teóricos indican que una muestra testigo de 0.56 g de masa (equivalente a $1 \times 1 \times 0.07 \text{ cm}^3$ de dimensiones físicas) será una muestra radiactiva exenta de provocar daños radiológicos durante su preparación, observación y análisis en equipos de microscopía electrónica y de difracción de rayos X. Los resultados teóricos se comprobaron experimentalmente midiendo la actividad de la muestra con espectrometría gamma, midiendo los niveles de exposición alrededor de la muestra y la dosis que induce la muestra al cuerpo humano mediante dosimetría TLD. Derivado del análisis de los fenómenos de activación y de decaimiento radiactivo en el seno del acero de la vasija, se indica la presencia de nuevos elementos químicos que pueden ser un factor elemental en el cambio de las propiedades de la vasija. Este trabajo es un preámbulo de la investigación de daños por irradiación neutrónica al acero de la vasija de reactores de agua en ebullición (BWR) usando técnicas de microscopía electrónica [4,5] y de espectroscopia y difracción de rayos X [6].

2. Análisis de activación neutrónica y actividad inducida en materiales poli-atómicos por un flujo poli-energético de neutrones

Las reacciones nucleares, abajo indicadas, son un ejemplo de los procesos de absorción neutrónica y del decaimiento radiactivo que ocurren en muchos materiales cuando son irradiados con neutrones. Al proceso de convertir un material no

radiactivo en radiactivo por la incidencia de un flujo de neutrones se le conoce como activación neutrónica.



La actividad que adquiere el material depende de sus características isotópicas, de la energía del flujo de neutrones y del tiempo de irradiación, entre otros factores. Estas reacciones son, tan solo, un ejemplo real que ocurre en el interior del acero de la vasija del reactor BWR, de interés, puesto que dicho acero está conformado por isótopos de Fe, Ni, Mn, Mo, C, S, Si, Cr, Cu, etc. En esta sección se deduce una expresión para la actividad total generada, por activación neutrónica, en un material compuesto de muchos tipos de átomos cuando es expuesto a un flujo polienergético de neutrones, como el generado en un reactor nuclear. La deducción se inicia analizando la activación por neutrones monoenergéticos.

2.1. Activación por un flujo monoenergético de neutrones

Identifiquemos con j a alguna especie atómica de una muestra de masa m de material estable (actividad nula) y con i a cualquier isótopo de dicha especie. Sea n_{ij} el número de núcleos o isótopos de tipo ij activados en la muestra por la incidencia de una fluencia de neutrones, ϕ_E , de energía E , dado por [7]

$$n_{ij} = \sigma_{ij} \phi_E N_{ij} V \quad (1)$$

donde σ_{ij} es la sección eficaz microscópica de activación de los núcleos tipo ij por los neutrones de energía E , N_{ij} es la densidad atómica de isótopos de tipo ij (átomos/cm³) y V es el volumen de la muestra (cm³).

Puesto que [7]

$$N_{ij} = \frac{\gamma_{ij} \rho_j N_A}{100 M_j} \quad (2)$$

donde γ_{ij} es la abundancia del isótopo ij , ρ_j es la densidad física de la especie atómica j -ésima (g/cm³), M_j el peso atómico de la especie atómica j -ésima (g), N_A el número de Avogadro y dado que por cada isótopo activado ij aparece un nuevo nucleídoⁱ o isótopo, que denotaremos como $i'j'$, es fácil demostrar que

$$n_{i'j'} = 10^{-4} \Phi_E N_A \sigma_{ij} \gamma_{ij} w_j \chi \quad (3)$$

es el número de nucleídos del tipo $i'j'$ generados por la activación de una muestra de masa χ veces su peso molecular gramo, M , y que

$$R_{i'j'} = 10^{-4} \dot{\phi}_E N_A \sigma_{ij} \gamma_{ij} w_j \chi \quad (4)$$

es la rapidez de producción de nucleídos de tipo $i'j'$ generados por la activación de la muestra, donde $\dot{\phi}_E$ es el flujo

monoenergético de neutrones de energía E , ($n/cm^2 \cdot s$), sobre la muestra, sabiéndose que

$$m = \chi M \tag{5}$$

y que

$$100M = \sum_j (w_j M_j) \tag{6}$$

con w_j el porcentaje en peso de la especie atómica j -ésima en la muestra

Durante la activación de la muestra muchos de los nucleídos $n_{i',j'}$ resultan ser radiactivos. Si t_0 es el intervalo de tiempo de irradiación-activaciónⁱⁱ de la muestra y t' el intervalo de tiempo de decaimiento de la muestra post-irradiación, resulta sencillo demostrar que para un instante cualquiera $t = t_0 + t'$

$$A_{i',j'}(t) = 10^{-4} \dot{\phi}_E N_A \sigma_{ij} \gamma_{ij} w_j \chi \times \left(e^{-\lambda_{i',j'} t'} - e^{-\lambda_{i',j'} (t_0+t')} \right) \tag{7}$$

es la actividad de la muestra debido a los radionúclidos $n_{i',j'}$, cuando se considera constante la rapidez de producción $R_{i',j'}$ y que en $t = 0$ la concentración de radionúclidos es nula, siendo $\lambda_{i',j'}$ la constante de decaimiento de los radionúclidos $n_{i',j'}$.

La actividad total de la muestra al instante t estará dada por la expresión

$$A(t) = \sum_{i',j'} A_{i',j'}(t) \tag{8}$$

2.2. Activación por un flujo polienergético de neutrones

En un reactor nuclear el flujo de neutrones no es monoenergético, por el contrario, los neutrones conforman un espectro energético que va desde energía cero hasta millones de electrón-volt. En este caso, la rapidez de producción de nucleídos $n_{i',j'}$ en la muestra de masa m por activación debido al flujo polienergético de neutrones $\phi(E)$ está dada por

$$R_{i',j'} = 10^{-4} N_A \gamma_{ij} w_j \chi \int_0^\infty \sigma_{ij}(E) \phi(E) dE \tag{9}$$

donde

$$\phi(E) = \dot{\phi}(E) = \frac{d\phi(E)}{dt} \tag{10}$$

y la actividad de la muestra, al instante t , debido a radionúclidos de tipo i',j' estará dada por

$$A_{i',j'}(t) = 10^{-4} N_A \gamma_{ij} w_j \chi \left(e^{-\lambda_{i',j'} t'} - e^{-\lambda_{i',j'} (t_0-t')} \right) \times \int_0^\infty \sigma_{ij}(E) \phi(E) dE \tag{11}$$

Es común que, en el análisis de la difusión de neutrones dentro del reactor nuclear, el espectro energético de los neutrones sea dividido en N grupos (Método de difusión de grupos) conviniendo que al incrementar el número de grupo la energía disminuya desde el valor máximo (para el grupo uno) hasta cero (para el grupo N -ésimo). Denotando como g los diferentes grupos de energía, entonces, la rapidez de producción de nucleídos $R_{i',j'}$ y la actividad $A_{i',j'}(t)$, por la incidencia de un flujo polienergético de neutrones dividido en N grupos de energía estarán dadas por

$$R_{i',j'} = 10^{-4} N_A \gamma_{ij} w_j \chi \sum_{g=1}^N \sigma_{ij}^g \phi_g \tag{12}$$

$$A_{i',j'}(t) = 10^{-4} N_A \gamma_{ij} w_j \chi \times \left(e^{-\lambda_{i',j'} t'} - e^{-\lambda_{i',j'} (t_0-t')} \right) \sum_{g=1}^N \sigma_{ij}^g \phi_g \tag{13}$$

donde

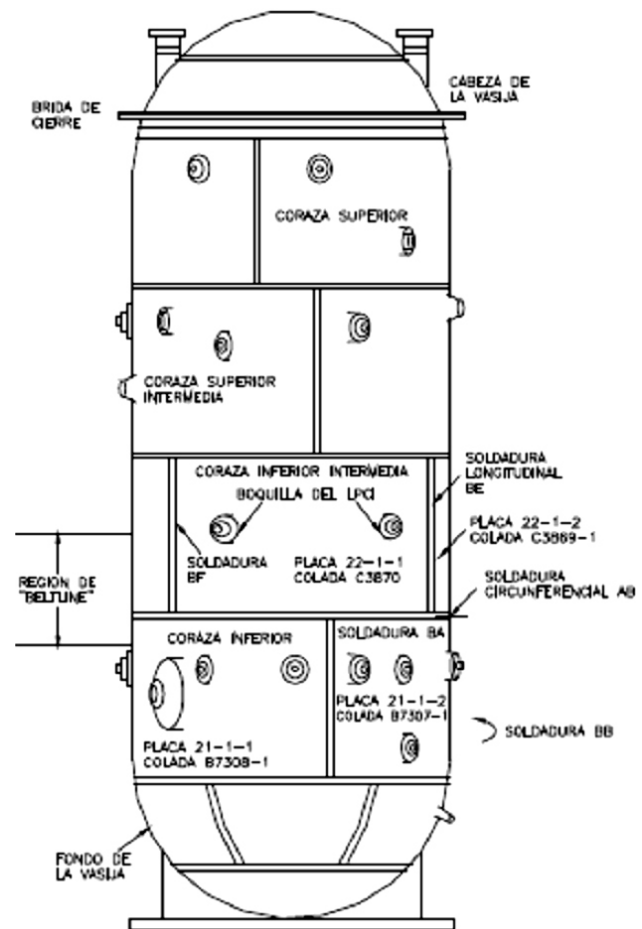


FIGURA 1. Se muestra la posición de la capsula de vigilancia C3869-1, en contacto con la pared interna (Placa 22-1-2) de la vasija del reactor BWR, la cual se extrajo durante la recarga de combustible del ciclo 6.

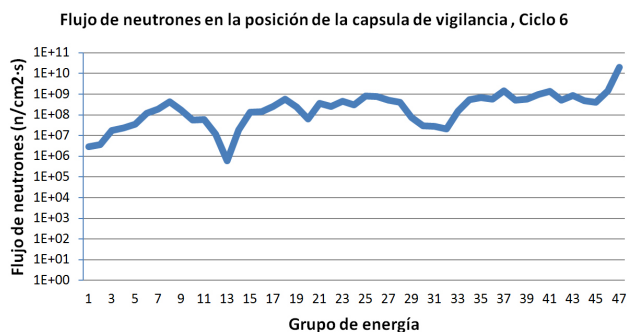


FIGURA 2. Flujo de neutrones en la posición de la capsula de vigilancia, Ciclo 6.

σ_{ij}^g : es la sección eficaz microscópica de activación de los núcleos ij debido al flujo de neutrones de energía del grupo g .
 ϕ_g : es el flujo de neutrones en el grupo de energía g .

3. Experimental

El reactor nuclear de agua en ebullición (BWR) de interés en este trabajo entró en operación comercial en abril de 1995. El material de la vasija de este reactor nuclear es una aleación de acero de bajo carbono, denominado como A533-B, clase 1 por la American Society for Testing and Materials (ASTM) [8]. Una muestra de acero base de diseñoⁱⁱⁱ de la vasija fue analizada con espectroscopia de rayos X de un microscopio electrónico de transmisión^{iv} (EDXS-TEM: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy - Transmission Electron Microscopy) obteniéndose que los componentes químicos (y su porcentaje en peso) del acero de la vasija son C (0.19%),

Al (0.12 %), Si (0.36 %), P (0.07 %), S (0.65 %), V (0.03 %), Cr (0.13 %), Mn (1.13 %), Fe (94.55 %), Ni (0.59 %), Cu (1.69 %) y Mo (0.49 %).

Capsulas de vigilancia, con probetas (en su interior) del mismo material de la vasija son colocadas en el seno del reactor nuclear en posiciones estratégicamente definidas y se extraen después de un cierto periodo de tiempo de operación del reactor para analizar la probeta y determinar las propiedades del material de la vasija a la fecha de extracción de la capsula. La capsula de vigilancia de nomenclatura C3869-1 (Fig. 1) se extrajo en abril 2003, durante la sexta recarga de combustible del reactor, para analizar la probeta después de ocho años de irradiación neutrónica (no discutido en este trabajo).

Con el código DORT-4, se calculó el flujo de neutrones en la posición de la capsula de vigilancia C3869-1^v, ($r = 255.27$ cm, $\theta = 30^\circ$, $z = 183.74$ cm), empleando 47 grupos de energía y, justamente, al instante de apagado del BWR para iniciar la sexta recarga de combustible (Ciclo 6). El flujo de neutrones calculado y los grupos de energía se muestran en Fig. 2 y en la Tabla I.

El análisis de activación del acero de la vasija se realizó en la posición de máximo daño neutrónico sobre la vasija (posición de la capsula de vigilancia) y después de ocho años de irradiación.

Se deduce:

$$\phi_{\text{Térmicos}} = 3.07 \times 10^9 \text{ n/cm}^2\text{s}$$

$$\phi_{\text{Epiter+Rapid}} = 3.46 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2\text{s}$$

TABLA. I Flujo de neutrones en la posición de la capsula de vigilancia C3869-1, Ciclo 6

Grupo	E_{sup}	E_{inf}	ϕ_g	Grupo	E_{sup}	E_{inf}	ϕ_g	Grupo	E_{sup}	E_{inf}	ϕ_g
(g)	(MeV)	(MeV)	(n/cm ² ·s)	(g)	(MeV)	(MeV)	(n/cm ² ·s)		(MeV)	(MeV)	(n/cm ² ·s)
1	19.64	14.19	2.83E+06	17	1.65	1.35	2.54E+08	33	2.19E-02	1.50E-02	1.54E+08
2	14.19	12.21	3.72E+06	18	1.35	1.00	5.76E+08	34	1.50E-02	7.10E-03	5.49E+08
3	12.21	10.00	1.73E+07	19	1.00	8.21E-01	2.43E+08	35	7.10E-03	3.36E-03	6.68E+08
4	10.00	8.61	2.31E+07	20	8.21E-01	7.43E-01	6.31E+07	36	3.36E-03	1.59E-03	5.87E+08
5	8.61	7.41	3.61E+07	21	7.43E-01	6.08E-01	3.55E+08	37	1.59E-03	4.54E-04	1.50E+09
6	7.41	6.07	1.21E+08	22	6.08E-01	4.98E-01	2.58E+08	38	4.54E-04	2.14E-04	5.24E+08
7	6.07	4.97	1.96E+08	23	4.98E-01	3.69E-01	4.55E+08	39	2.14E-04	1.01E-04	5.78E+08
8	4.97	3.68	4.28E+08	24	3.69E-01	2.98E-01	3.07E+08	40	1.01E-04	3.73E-05	9.71E+08
9	3.68	3.01	1.74E+08	25	2.98E-01	1.83E-01	8.35E+08	41	3.73E-05	1.07E-05	1.41E+09
10	3.01	2.73	5.59E+07	26	1.83E-01	1.11E-01	7.83E+08	42	1.07E-05	5.04E-06	5.19E+08
11	2.73	2.47	6.13E+07	27	1.11E-01	6.76E-02	5.28E+08	43	5.04E-06	1.86E-06	8.50E+08
12	2.47	2.37	1.20E+07	28	6.76E-02	4.09E-02	4.05E+08	44	1.86E-06	8.76E-07	4.88E+08
13	2.37	2.35	5.94E+05	29	4.09E-02	3.18E-02	7.38E+07	45	8.76E-07	4.14E-07	4.10E+08
14	2.35	2.23	1.84E+07	30	3.18E-02	2.61E-02	3.02E+07	46	4.14E-07	1.00E-07	1.44E+09
15	2.23	1.92	1.37E+08	31	2.61E-02	2.42E-02	2.87E+07	47	1.00E-07	0.00E+00	2.04E+10
16	1.92	1.65	1.42E+08	32	2.42E-02	2.19E-02	2.04E+07			ϕ_{Total}	3.77E+10

3.1. Actividad de una muestra del acero (A533-B) de la vasija de un BWR después de ocho años de irradiación neutrónica

Los isótopos estables de los componentes del acero pueden activarse según las reacciones nucleares (n, γ) , (n, p) , (n, d) , (n, t) , $(n, {}^3\text{He})$ y (n, α) con una probabilidad que depende del isótopo y la energía del neutrón absorbido. Radionúclidos como ${}^{28}\text{Al}$, ${}^{52}\text{V}$, ${}^{55}\text{Fe}$, ${}^{54}\text{Mn}$, ${}^{57}\text{Co}$, ${}^{60}\text{Co}$, ${}^{63}\text{Ni}$, ${}^{93}\text{Mo}$, ${}^{94}\text{Nb}$, y ${}^{97}\text{Zr}$, entre muchos otros, son generados por la absorción de neutrones tanto térmicos como epitérmicos y rápidos hasta energías del orden de 20 MeV. En este trabajo se estimó la actividad (para t correspondiente al 9 de agosto de 2010) de todos los radionúclidos generados por activación neutrónica de una muestra de acero A533-B de masa χ veces su peso molecular. La estimación se realizó haciendo uso de las Ecs. (8) y (13), con el flujo de neutrones, Fig. 2, calculado con el código DORT-4 en la posición de máximo daño y a ocho años de irradiación neutrónica, las secciones eficaces de activación tomadas de las bibliotecas JEF 2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2, BROND-2 y CENDL-2 [9,10] y de la base de datos de ENDF00 [11] para dos grupos de energía térmicos y rápidos (14 MeV: mayor probabilidad de activación) y los componentes químicos determinados con EDXS-TEM. El instante t_0 en la Ec. (13) concierne al instante de apagado del reactor del ciclo 6. Se espera que la actividad estimada y medida en una muestra testigo (de igual masa y a la fecha de cálculo) de la capsula de vigilancia C3869-1 sean congruentes

4. Resultados y discusión

Las Tablas II y III indican, en resumen, la actividad calculada de los radionúclidos más significativos que estarían presentes (al 9 de agosto del 2010) en muestras testigo de la capsula de vigilancia C3869-1 de masas 55.92 g y 0.5592 g, respectivamente.

Los cálculos indican que la actividad de la muestra de 0.5592 g (de dimensiones 1 cm×1 cm×0.72 mm si tiene una geometría en forma de paralelepípedo) está por debajo de la actividad de exención que marca la norma oficial mexicana NOM-039NUCL [3]. Entonces, una muestra testigo del reactor BWR de área $A=1\times 1\text{ cm}^2$ y espesor $\xi=0.7\text{ mm}$ (equivalente a 0.8 cm×0.8 cm×1 mm) no producirá ningún daño radiológico durante su manipulación en pruebas de microanálisis, microscopía y espectrometría. Este resultado es muy importante de considerar cuando se pretende seleccionar una muestra testigo real para analizarla bajo estas técnicas microscópicas. El saber que la muestra radiactiva seleccionada no genera daños a la salud es fundamental para los especialistas y microscopistas que la analicen, sobre todo para aquellos quienes el campo de estudio de las radiaciones ionizantes es desconocido

La Tabla IV indica la actividad total estimada por emisores alfa y beta, en la muestra de 0.5592 g, valores útiles para estimar los niveles de exposición alrededor de la muestra como se indica en la Tabla V.

TABLA II. Actividad estimada de los radionúclidos más significativos que estarían presentes en la muestra de acero A533-B de masa 55.92 g, al 9 de agosto de 2010.

Radio núclido	T1/2	Actividad (Bq) por tipo de reacción nuclear							Total		Actividad de exención NOM-039 [3] (Bq)	
		(n, γ)	(n,2n)	(n,p)	(n,d)	(n,t)	(n,He-3)	(n, α)	Bq	μCi		
Fe-55	2.7 y	3.00E+06	9.42E+07						1.08E+01	9.72E+07	2627.49	1.00E+06
Mn-54	312.3 d		4.36E+05	1.01E+06		1.40E+02				1.45E+06	39.14	1.00E+06
Co-60	5.27 y			1.13E+06	1.87E+03	6.15E-03	1.58E-15	2.5E+06		3.65E+06	98.70	1.00E+05
Ni-63	100.1 y	2.79E+05	5.36E+04	1.25E+04	1.37E+02	1.72E+02	1.23E+01		3.45E+05	9.33		1.00E+08

TABLA III. Para una muestra de masa $m = 0.5592\text{ g}$ ($\approx 560\text{mg}$) la actividad total estimada de todos los radionúclidos estarán por debajo de los límites de exención. Para esta masa, $X = 1e-2$

Radionúclido	T1/2	Actividad neta o total		Actividad de exen- ción NOM-039 (Bq)	Dimensión física de la muestra de acero	
		μCi	Bq		Muestra de área A y espesor ξ	Muestra circular de radio r y espesor ξ
Fe-55	2.7 y	26.28	9.72E+05	1.00E+06	$m = 0.56\text{ g}$ para $X=1e-2$	$r = 1.5\text{ mm}$ muestra para TEM
Mn-54	312.3 d	0.39	1.45E+04	1.00E+06	$\rho = 7.87\text{ g/cm}^3$ muestra PR	$\xi = 100\mu\text{m}$
Co-60	5.27 y	0.99	3.65E+04	1.00E+05	$A = 1\times 1\text{ cm}^2$	$\rho = 7.87\text{ g/cm}^3$
Ni-63	100.1 y	0.09	3.45E+03	1.00E+08	se tiene: $\xi = 0.712\text{ mm}$ $= 712\mu\text{m}$	se tiene: $m = 5.56\text{ mg}$ & $X = 1e-4$

TABLA IV. Actividad total estimada por tipo de emisor (muestra de acero A533-B: m=0.56 g)

Actividad gamma (A_γ):	1.378	$\mu\text{Ci} = 5.10\text{E}+04$ Bq
Actividad beta (A_β):	0.093	$\mu\text{Ci} = 3.45\text{E}+03$ Bq

4.1. Estimación de la rapidez de exposición y de la dosis equivalente que proporcionaría la muestra de acero A533-B, empleando Rad Pro Calculator, para los emisores gamma

La Tabla V^{vi} muestra la exposición y la dosis equivalente que recibiría la persona que manipule la muestra testigo de 0.5592 g a diferentes distancias, debido a los emisores gamma que son los más penetrantes y de mayor riesgo radiológico. La estimación se realizó con Rad Pro Calculator [12], un software diseñado para la estimación de rapidez de exposición y de dosis equivalente de una gran cantidad de emisores gamma conociendo la actividad de la fuente. Durante el proceso de preparación de la muestra, para su posterior observación en los diferentes microscopios, estará muy cerca de las manos y extremidades de la persona que la prepare y la dosis que reciba a extremidades (distancia muestra-extremidades de 1 cm aproximadamente) es la de mayor importancia, a diferencia de que cuando sea transportada, trasladada u observada en los microscopios, la contribución de dosis a cuerpo entero es la de mayor atención (distancia muestra-observador de 10 cm aproximadamente). La Tabla VI muestra el tiempo máximo que el especialista o microscopista puede estar cerca de la muestra radiactiva sin sobrepasar los límites anuales de dosis equivalente establecidos por el Reglamento General de Seguridad Radiológica [13] vigente en México. De la Tabla VI se observa que será posible manipular la muestra por 389 horas en un año sin riesgo alguno a extremidades. Este tiempo es extremadamente grande pues se requieren tiempos breves de preparación (alrededor de unos 30 min por sesión y un total de 4 sesiones anuales). De igual manera, los resultados indican que es posible estar cerca de la muestra por alrededor de 38971 horas anuales, sin riesgo alguno, haciendo constar plena seguridad radiológica durante su transportación, manipulación y observación microscópica puesto que un año tienen tan solo 8760 horas.

A pesar de que la muestra no presenta grandes riesgos radiológicos deben tomarse todas las medidas de seguridad durante su manipulación, transporte, observación y resguardo,

tales como, resguardar la muestra en un contenedor de plomo y en un lugar seguro, usar guantes de cirujano para evitar el contacto directo durante su preparación y manipulación, sujetarla con pinzas metálicas al extraerla del contenedor y al colocarla en el interior de la cámara de los microscopios o del difractor de rayos X, etc.

4.2. Mediciones de la actividad y exposición de la muestra de acero A533-B de 0.56g aproximadamente

4.2.1. Espectrometría gamma de la muestra

En el laboratorio secundario de patrones del Departamento de Metrología de Radiaciones Ionizantes del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (ININ) se midió la actividad de la muestra de acero al día 9 de agosto de 2009, empleando espectrometría gamma. Se realizaron 5 medidas en el detector de GeHp No. 2, a una distancia fuente-detector de $20.162 \text{ cm} \pm 0.062\%$ y se determinó la actividad utilizando los valores de eficiencia de patrones de referencia marca Areva, 1) ^{54}Mn N/S 50033 Eficiencia = $9.81\text{e}-04 \text{ c}\gamma^{-1}$ para la energía de 834.84 keV de fecha de calibración 2010-01-28 y 2) ^{60}Co N/S 20166 Eficiencia = $7.36\text{e}-04 \text{ c}\gamma^{-1}$ para la energía de 1173.24 keV y $6.6336\text{e}-04 \text{ c}\gamma^{-1}$ para la energía de 1332.52 keV, fecha de calibración 2010-03-22. Procedimiento utilizado: P.LPR-01 "Calibración y uso de detectores de Germanio" Rev. 4. Trazabilidad: Al Patrón Nacional de Actividad, Detector de GeHp PMN-ININ-02. Los resultados de la espectrometría gamma se indican en la Tabla VII.

Estos valores de actividad obtenidos por espectrometría gamma están muy por debajo de los límites anuales dados por la norma oficial mexicana NOM-039-NUCL, demostrándose experimentalmente la exención de la muestra testigo de masa 0.56 g, estimada teóricamente. El valor de actividad teórica (36.5 kBq) del Co-60 está por arriba del rango experimental obtenido ($23.14 \text{ kBq} \pm 2.2\%$); la razón se debe a que el Co-60 se genera en su mayoría por las reacciones (n, p) y (n, α) con neutrones rápidos y por considerar la sección eficaz de activación máxima de 14 MeV para todos los neutrones de grupo, conduciendo a obtener un valor sobreestimado. Lo mismo sucede con el Mn-54 que se genera en su mayoría por las reacciones (n, p) y ($n, 2n$) con neutrones rápidos.

4.2.2. Dosimetría TLD, muestra testigo como fuente de radiación

Otra prueba de seguridad radiológica y de comprobación de los resultados estimados teóricamente fue medir la dosis

TABLA V. Estimación de la rapidez de exposición y de la dosis equivalente que proporcionaría la muestra de acero (m = 0.5592 g).

Radio núclido	E_γ (emisor)	Actividad neta o total		Rapidez Exposición (mR/h)					Rapidez Dosis equivalente: H (mSv/h)					
		Bq	μCi	1 cm	1.5 cm	3 cm	5 cm	10 cm	0.1 cm	1 cm	1.5 cm	3 cm	5 cm	10 cm
Mn-54	835 keV	1.45E+04	0.39	1.82	0.81	0.20	0.07	0.02	1.60	1.60E-02	7.09E-03	1.77E-03	6.39E-04	1.60E-04
Co-60	1.25 Mev	3.65E+04	0.99	12.81	5.70	1.42	0.51	0.13	11.24	1.12E-01	4.99E-02	1.25E-02	4.49E-03	1.12E-03
Total		5.10E+04	1.378	14.63	6.51	1.62	0.58	0.15	12.84	1.28E-01	5.70E-02	1.43E-02	5.13E-03	1.28E-03

TABLA VI. Estimación del tiempo anual de manipulación de la muestra testigo sin riesgo radiológico.

Horas permitidas	
1 cm	10 cm
Límite de anual de dosis equivalente POE (RGSR)	
Extremidades: 500 mSV	Cuerpo entero: 50 mSV
Lim Anual/ \hat{H} = 389 h/año	Lim Anual/ \hat{H} = 38971 h/año

TABLA VII. Resultados de la espectrometría gamma de la muestra testigo de masa 0.56 g.

Identificación de la muestra	Actividad a la fecha de referencia: 9 de agosto de 2010, 12:00h	
Acero A533-B	Co-60	Mn-54
	23.14 kBq \pm 2.2 %	0.37 kBq \pm 3.6 %

TABLA VIII. Medición de dosis equivalente que proporcionaría la muestra testigo de 0.56 g (medida con un TLD).

	mrem	mrem/h	mSv/h	μ Sv/h
Beta	0	0	0	0
Neutrones	0	0	0	0
Gamma	1720.50	17.92	1.79E-01	179.2

equivalente que la muestra testigo generaría a cuerpo humano (extremidades) usando un dosímetro termoluminiscente (TLD) tipo UD-802AS de la marca Panasonic por su baja dependencia energética y alta sensibilidad a la radiación, por su respuesta a la radiación cercana a la del cuerpo humano en un amplio rango de energías de rayos X, fotones y rayos beta, con filtros especiales para la dosimetría de neutrones y por su capacidad de estimar dosis en piel. El detector TLD se colocó durante 96 horas en contacto con la muestra de acero. Las ventanas descubiertas del detector estuvieron en contacto con una de las caras de la muestra a fin de que la radiación (betas y gammas) emitida por la muestra pudiese incidir sobre el material detector. La dosis equivalente, medida con un sistema Estándar Panasonic ED-802 (después de 200 pruebas de lectura), se indica en la segunda columna de la Tabla VIII.

Los resultados de medición por esta técnica indican que 1) no hay dosis equivalente por betas, 2) no hay dosis equivalente por neutrones (resulta lógico puesto que no hay fuente de neutrones en la muestra de acero) y 3) la dosis equivalente de emisores gamma, 1.79E-01 mSv/h, resulta ser muy cercano a lo estimado a una distancia de 1 cm de la muestra (Tabla V, extremidades), 1.28E-01 mSv/h. Esto demuestra experimentalmente la validez de los resultados teóricos (Tabla V) estimados a partir de la actividad calculada con las expresiones (8) y (13) así como, nuevamente, la exención de la muestra testigo de 0.56 g.

TABLA IX. Nuevos elementos químicos e incremento en la concentración de elementos existentes en el acero como resultado de la activación neutrónica y el decaimiento radiactivo de los radionúclidos que se originan. El Mn y el Cr se incrementan en mayor proporción que otros.

Nuevos	Nomenclatura	Importancia +	Existentes	Concentración +
Cobalto	Co	+	C	
Helio	He	+	Al	
Magnesio	Mg		Si	
Estroncio	Zr		P	
Neobio	Nb		S	
Boro	B		V	+
Titanio	Ti		Cr	++
Cloro	Cl		Mn	++
Zing	Zn		Fe	
Berilio	Be		Ni	+
Ytrio	Y		Cu	
Tecnesio	Tc		Mo	+
Rhuterio	Ru			

4.2.3. Nivel de radiación alrededor de la muestra testigo de 0.56 g

Se empleó un detector Eberline RM, modelo RM14SA y N/S 555, con fecha de calibración 2010-04-05, propiedad del Departamento de Protección Radiológica del ININ. El nivel de radiación medido con el detector cuantifica la contribución gamma emitida por fuente, debido a que las betas fueron frenadas por la delgada ventana de acrílico del detector. Se realizaron alrededor de 10 mediciones a contacto de la muestra y a 10 cm de la misma. El promedio de las lecturas son: 6 mR/h a contacto, 0.8 mR/h a 5 cm y 0.1 mR/h a 10 cm de la muestra. Considerando el diámetro efectivo del detector alrededor de 3 cm, implica que la lectura a contacto de la muestra equivale a tener la muestra a una distancia de 1.5 cm del punto efectivo de medición del detector. Estas medidas obtenidas de 6 mR/h, 0.8 mR/h y 0.1 mR/h a 1.5 cm, 5 cm y 10 cm, respectivamente, tienen gran concordancia con 6.1 mR/h, 0.58 mR/h y 0.15 mR/h calculados con Rad Pro Calculator (Tabla V) a las distancias señaladas, comprobando nuevamente la validez de los resultados de actividad estimados con las expresiones (8) y (13).

4.2.4. Nuevos elementos químicos en el acero de la vasija por irradiación neutrónica

La Tabla IX señala los nuevos elementos químicos y aquellos existentes en el acero que incrementan su concentración

por las diversas reacciones nucleares y por el decaimiento radiactivo de los radionúclidos que se generan. De los nuevos elementos que se producen el Co y el He son los de mayor importancia, el primero porque los nucleídos de Co-60 que se generan, Tabla I, le proporciona categóricamente la propiedad de radiactivo al acero, y el segundo porque en grandes concentraciones aparece en estado gaseoso que puede generar burbujas en el acero. De los elementos existentes en la aleación y que incrementan en mayor proporción su concentración son el Mn y el Cr, ambos de importancia, puesto que el Mn-54 es otro contribuyente a la radiactividad del acero y el Cr por favorecer la fragilización del acero al incrementar en cierta medida su concentración [14].

5. Conclusiones

Se ha determinado una expresión analítica para estimar la actividad generada en una muestra debido a la activación neutrónica, en función del porcentaje en peso de sus componentes atómicos y del flujo polienergético de neutrones a la que se expone. La aproximación de los valores estimados con dicha expresión a los que valores reales dependerá en gran medida de las secciones eficaces de activación que se consideren para cada grupo de energía de los neutrones. Se estimó la actividad para una muestra testigo irradiada en el seno de un reactor nuclear BWR durante cerca de ocho años de irradiación y se contrastó con las mediciones experimentales de actividad, exposición y dosis equivalente cuando la muestra testigo es de 0.56 gr (dimensiones $1 \times 1 \times 0.07 \text{ cm}^3$), obteniéndose gran concordancia en los resultados. Además, se determinó que con estas dimensiones la muestra es radiológicamente segura, es decir, exenta de generar daños a la salud, en apego a la legislación mexicana en materia nuclear y radiológica, al grado de poder manipularla por más de 380 horas en un año sin provocar daños a extremidades y mucho menos a cuerpo entero. Esta última conclusión es de importancia fundamental para especialistas en microscopía que pretendan preparar y analizar la muestra irradiada, sobre todo para aquellos quienes el campo de estudio de las radiaciones ionizantes

es desconocido. Sin embargo, deben tomarse todas las medidas de seguridad radiológica como usar guantes de cirujano al manipular la muestra, usar pinzas metálicas para sujetarla y almacenarla en el interior de un contenedor de plomo, entre otras. Por otro lado, las reacciones nucleares de activación y de decaimiento radiactivo en el material de la vasija generan nuevos elementos químicos como Co, He, Ti, Nb, Tc, Zn, etc., siendo de importancia relevante el Co y el He, el primero porque los nucleídos de Co-60 que se generan le proporciona categóricamente la propiedad de radiactivo al acero, y el segundo porque en grandes concentraciones aparece en estado gaseoso que puede generar burbujas en el acero. Elementos químicos como Mn y Cr incrementan su concentración por las diversas reacciones nucleares y requieren sustancial atención porque tienden a favorecer la fragilización del acero al incrementar en cierta medida su concentración [14]. El desarrollo descrito en este trabajo es aplicable no solo a materiales de reactores nucleares sino a cualquier material que sea activado neutrónicamente y que se pretenda analizar post-irradiación. Se han descrito algunas pruebas de seguridad que deberán realizarse con el material irradiado antes de realizar cualquier análisis o tratamiento con el material. En muchos casos, sobre todo en la fabricación de fuentes radiactivas es necesario estimar el tiempo de irradiación neutrónica sobre un material químicamente conocido para obtener una actividad específica. Las expresiones (8) y (13) resultan útiles en casos de tener un material poli-atómico activado por fuentes poli-energéticas.

Agradecimientos

Se agradece al Instituto Politécnico Nacional y al Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares en sus áreas de Metalografía, Microscopía, Ciencias Nucleares, Metrología y Protección Radiológica por ofrecer todas las facilidades para la presente investigación así como a la empresa Calidad XXI por su apoyo en la realización de la dosimetría termoluminiscente.

- i. Excepto en las reacciones nucleares (n,n) puesto que el nucleído no cambia.
- ii. Durante el periodo de activación las nuevas especies nucleares son, a su vez, activadas y los radionúclidos se producen y mueren generando cadenas radiactivas.
- iii. Tomada del lote de acero con el cual se diseñó la vasija, es decir, se trata de una muestra del mismo material con el cual se construyó la vasija y que a la fecha nunca ha sido irradiada.
- iv. Marca JEOL modelo A234 usando electrones de 200keV, propiedad del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, México.
- v. La capsula C3869-1 permaneció dentro del reactor en una po-

sición que permite analizar y estimar el mayor daño neutrónico en la vasija

- vi. Los valores mostrados se calcularon empleando el Rad Pro Calculator mostrado en la página de internet www.radprocalculator.com/Gamma.aspx
- 1. J. F. Harvey, *Theory and Design of Modern Pressure Vessels*, second edition, (Van Nostrand Reinhold Company, New York, London, 1974).
- 2. H. Ullmaier, W. Schilling, *Radiation Damage in Metallic Reactor Materials*, IAEA-SMR-46/105, (1980).
- 3. Norma Oficial Mexicana, *Especificaciones para la Exención de Fuentes de Radiación Ionizante y Practicas que las Utilicen*, NOM-039-NUCL-2011, México.

4. Golstein, *Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis*, second edition, (Plenum Press-New York and London, 1992).
5. P. E. Champness, *Electron Diffraction in Transmission Electron Microscope*, (University of Manchester UK. BIOS Scientific Publisher, 2001).
6. R. D. Cullity, *Elements of X-ray diffraction*, (Addison Wesley, 1967).
7. John L. Lamarsh, *Introduction to Nuclear Engineering*, (Addison Wesley, Second edition, 1977).
8. American Society For Testing and Materials (ASTM), *Standard Specifications for Pressure Vessel Plates, Alloy Steel, Quenched and Tempered, Manganese-Molybdenum and Manganese-Molybdenum-Nickel*, A 533/A 533M -93, June 15, 1993
9. <http://atom.kaeri.re.kr/ton/nuc7.html>
10. JEF Report 14, NEA-OECD, (1994)
11. <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endf00.jsp>
12. www.radprocalculator.com/Gamma.aspx
13. Reglamento General de Seguridad Radiológica, México, (1988).
14. Metals Handbook Committee, *Metals Handbook*, (Edition, The American Society for Metals, USA. 1948).