

Universidad Autónoma de San Luis Potosí

ESCUELA DE CIENCIAS QUÍMICAS



DOSIMETRIA DE LA RADIACION GAMMA DEL
REACTOR NUCLEAR TRIGA - MARK III DEL
CENTRO NUCLEAR DE MEXICO

TRABAJO RECEPCIONAL

QUE PARA OBTENER EL TITULO DE
INGENIERO QUÍMICO
P R E S E N T A

JORG

OCHEA

PEREZ

SAN LUIS POTOSÍ S.L.P.

ENERO DE 1980

T
QC795
02
c.1



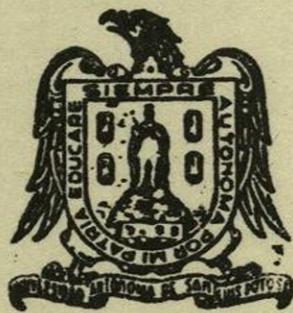
1080076427

J. Q.
1980
026d

1Q
026d
1980

Universidad Autónoma de San Luis Potosí

ESCUELA DE CIENCIAS QUÍMICAS



**DOSIMETRIA DE LA RADIACION GAMMA DEL
REACTOR NUCLEAR TRIGA - MARK III DEL
CENTRO NUCLEAR DE MEXICO**

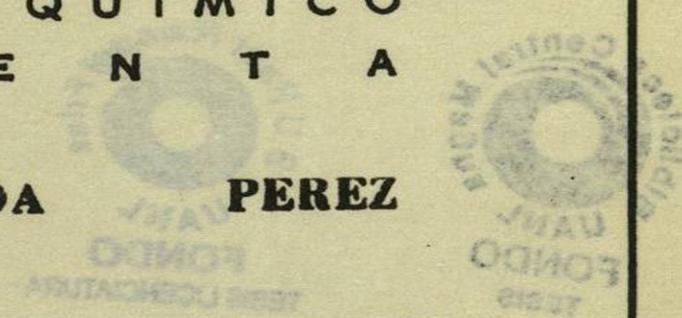
**TRABAJO RECEPCIONAL
QUE PARA OBTENER EL TITULO DE
INGENIERO QUÍMICO
P R E S E N T A**

JORGE

OCHOA

PEREZ

SAN LUIS POTOSI S.L.P.



ENERO DE 1980

A los S.E.,
a Israel y a
mis hermanos
Hugo, Miguel,
Gerardo, Noé
y Gilberto.

T
ACTGS
02



A los S.E.,
a Israel y a
mis hermanos
Hugo, Miguel,
Gerardo, Noé
y Gilberto.

**A mis padres,
quienes siempre
se han esforzado
por mi bienestar**

Este trabajo fué dirigido por la Dra. Silvia Bulbulian, Gerente de Apoyo Científico, del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (anteriormente, Instituto Nacional de Energía Nuclear). Se realizó en el laboratorio de Química Nuclear, en el Centro Nuclear de México, y forma parte de uno de los proyectos de investigación de dicha gerencia.

Para la realización del presente, se contó con la ayuda económica de una beca del CONACYT, el apoyo de la Coordinación Técnico Científica y de la Comisión Mixta de Capacitación, Adiestramiento y Especialización del anterior I.N.E.N. y con la cooperación de personal del Centro Nuclear.

AGRADECIMIENTOS:

A la Dra. Silvia Bulbulian, por toda su ayuda y dedicación en la elaboración del presente trabajo.

Al CONACYT, por su ayuda económica.

A la Coordinación Técnico Científica y a la Comisión Mixta de Adiestramiento, Capacitación y Especialización de dicho instituto, por su atención y apoyo al presente.

Al Dr. Iván G. Draganić, por sus amables recomendaciones, durante su estancia en México.

A Jorge Lizalde, por su atención e interés al presente.

A Cristina Rodríguez, por su ayuda y por sus dibujos.

Al Sr. Roberto Campos, por sus fotografías.

Al personal de Operación del Reactor TRIGA-Mark III, por su cooperatividad para efectuar las irradiaciones.

A mis excompañeros del laboratorio de Química Nuclear, por la gran amistad y apoyo que siempre me brindaron.

A los profesores de la Escuela de Física de la U.A.S.L.P., en especial al M. en C. Joaquín Sada A. y a los Doctores Joel Cisneros P. y Francisco Mejia L.

A los profesores de la Escuela de Ciencias Químicas no-nominados para mi examen recepcional: Ing. José Gómez R., Ing. Rogelio A. Colunga R., M. en C. Gustavo Toranzo N., M. en C. Jesús Navarro C. e Ing. Ma. Guadalupe Urizar N., titulares, e Ing. José Luis Rojas G. y M. en C. Alfredo Villalba, invitados.

Y a todas aquellas personas que de cualquier forma colaboraron en la realización del presente trabajo.

C O N T E N I D O .

	Página
INTRODUCCION	1
I. GENERALIDADES	
1.1) INTERACCION DE LA RADIACION CON LA MATERIA	4
1.2) REACCIONES NUCLEARES	10
1.21) Fisión nuclear	12
1.3) REACTORES NUCLEARES	17
II. REACTOR NUCLEAR TRIGA-MARK III	
2.1) INTRODUCCION	24
2.2) DESCRIPCION DEL REACTOR TRIGA-MARK III	
2.21) Características generales de diseño	25
2.22) Características del núcleo	26
2.23) Instalaciones para irradiación en los extremos de la piscina	32
2.24) Sistema de refrigeración y purificación de agua	34
III. DOSIMETRIA DE LA RADIACION IONIZANTE	43
3.1) METODOS DOSIMETRICOS	
3.11) Dosimetría química	44
3.12) Dosimetría por calorimetría	48
IV. DOSIMETRO DE ACIDO OXALICO SOLIDO	50
V. PARTE EXPERIMENTAL	54
5.1) METODO EXPERIMENTAL	
5.11) Material y equipo	54
5.12) Preparación de los dosímetros de ácido oxálico dihidratado	55
5.13) Tratamiento del ácido oxálico irradiado	58
5.2) CALIBRACION DE LOS DOSIMETROS DE ACIDO OXALICO	58
VI. RESULTADOS Y CONCLUSIONES	62
APENDICE A: UNIDADES Y FACTORES DE CONVERSION	69
APENDICE B: CONCEPTOS BASICOS EMPLEADOS	71
REFERENCIAS	73

LISTA DE ILUSTRACIONES

	Página
Figura 1. Reactor nuclear TRIGA-Mark III	36
Figura 2. Núcleo del reactor TRIGA-Mark III	37
Figura 3. Modelo a escala del reactor TRIGA-Mark III	38
Figura 4. Corte transversal del reactor TRIGA-Mark III	39
Figura 5. Distribución de los espacios para irradiación y de los elementos constituyentes del núcleo del reactor TRIGA-Mark III	40
Figura 6. Elemento combustible-moderador usado en el reactor TRIGA-Mark III	41
Figura 7. Estructura exterior y circuito de enfriamiento del reactor TRIGA-Mark III	42
Figura 8. Cápsulas de irradiación y botella de cuarzo usadas en el tubo seco del núcleo del reactor	57
Figura 9. Cápsula de irradiación y vaso de cuarzo usado en el SIFCA del núcleo del reactor	57
Figura 10. Descomposición del ácido oxálico dihidratado en el núcleo del reactor TRIGA-Mark III	63

INTRODUCCION

El reactor nuclear TRIGA-Mark III del Centro Nuclear de México* se utiliza para desarrollar investigaciones científicas, para producir radionucleidos, para enseñanza y entrenamiento de personal en el manejo de reactores nucleares y para diversos estudios de Física e Ingeniería. En él se producen numerosas reacciones nucleares que originan un campo mixto de radiación muy intenso en las posiciones del núcleo donde se irradian las muestras experimentales. Los materiales expuestos a dicho campo de radiación sufren alteraciones físicas y químicas por su interacción con las radiaciones ionizantes, principalmente con los fotones gamma y neutrones, por lo que el conocimiento de la dosis** de radiación gamma resulta de fundamental importancia para varias áreas de investigación. Por ejemplo, en el área de la Ingeniería Nuclear este parámetro es necesario para calcular la cantidad de calor producida por la radiación gamma en los materiales del reactor y para determinar la estabilidad radiolítica de refrigerantes y moderadores; en el área de la Química es importante para conocer su influencia sobre los cambios químicos originados por las transformaciones nucleares producidas en las muestras que se exponen al campo de radiación del reactor.

*El Centro Nuclear de México se encuentra en Salazar, Edo. de México, en el Km 36.5 de la carretera México-Toluca.

**En general, el término "dosis de radiación" se refiere a la cantidad de energía de la radiación que puede ser absorbida por cada unidad de masa del material expuesto al campo de radiación ionizante.

La dosimetría química permite determinar la dosis de radiación por medio de la medición del cambio químico que sufren ciertos compuestos en un campo de radiación ionizante. I.G. Draganić y sus colaboradores realizaron los primeros estudios sobre el uso de dosímetros químicos para medir la dosis de radiación ionizante de alta energía⁽¹⁾. Ellos encontraron que las soluciones de ácido oxálico son muy adecuadas para la dosimetría de la radiación gamma en el núcleo de algunos reactores nucleares de investigación, si el rango de dosis medido es de 1.6 a 160 Mrad⁽²⁾. En 1971 O.S. Gal e I. Draganić encontraron que se puede medir un rango más amplio, de 100 a 1000 Mrad, por el uso de ácido oxálico sólido⁽²¹⁾.

El objetivo de este trabajo es medir la razón de dosis* de radiación gamma en las diferentes posiciones para irradiación en el núcleo del reactor TRIGA-Mark III durante su operación normal, a 1 Mw de potencia, utilizando cristales de ácido oxálico dihidratado. La descomposición del ácido oxálico, producida por los efectos de la interacción de las radiaciones ionizantes, permite tener una medida indirecta de la dosis de radiación gamma.

En el capítulo I se exponen los conceptos generales necesarios para la comprensión del funcionamiento del reactor nuclear y de los dosímetros utilizados en el presente trabajo.

*Se utiliza la expresión "razón de dosis" para referirse a la dosis de radiación que absorbe un material en una unidad de tiempo.

En la sección 1.1 se explican los efectos de la interacción de la radiación ionizante con la materia, en la sección 1.2 se hace una breve descripción de las características de las reacciones nucleares, en especial las de la fisión nuclear, y en la sección 1.3 se exponen los principios básicos de un reactor nuclear.

El capítulo II contiene una descripción detallada del reactor nuclear TRIGA-Mark III.

En el capítulo III se describen los principales métodos de medición de la dosis de radiación ionizante, en especial la dosimetría química y la dosimetría por calorimetría, de sumo interés para el presente trabajo.

En el capítulo IV se exponen las características del dosímetro de ácido oxálico sólido.

El capítulo V contiene la descripción del método experimental y la calibración de los dosímetros de ácido oxálico empleados.

En el capítulo VI se presentan los resultados obtenidos y las conclusiones a que conduce el presente trabajo.

Por último, se incluyen dos apéndices, con las unidades y conceptos básicos empleados, y las referencias bibliográficas. La nomenclatura que se usa es la comúnmente utilizada en los textos de química y física^(3,4).

Una parte de este trabajo se presentó en el XXI Congreso Nacional de Investigación en Física, celebrado en la Cd. de Puebla del 27 de noviembre al 1º de diciembre de 1978⁽⁵⁾.

CAPITULO I

GENERALIDADES

Los elementos están constituidos de isótopos, es decir, de nucleidos que poseen igual número de protones pero diferente número de neutrones. Cuando dos nucleidos poseen idéntico número de protones y de neutrones pero se encuentran en diferente estado de energía, se denominan isómeros nucleares. Simbólicamente, los nucleidos se representan como ${}^A_Z X_N$, donde X es el símbolo químico del elemento al que pertenece, A es su número másico, Z es su número atómico y N es el número de neutrones ($N = A - Z$).

En la naturaleza la mayoría de los nucleidos son estables, sin embargo existe un pequeño porcentaje de nucleidos inestables que tienen propiedades radiactivas, es decir, emiten radiaciones en forma espontánea, a los cuales se les llama nucleidos radiactivos, o radionucleidos, naturales. Los radionucleidos también se pueden producir artificialmente, lo que ha hecho posible que actualmente se cuente con más de novecientos radionucleidos artificiales diferentes que, con un periodo de decaimiento también distinto, emiten radiaciones alfa, beta o gamma.

1.1) INTERACCION DE LA RADIACION CON LA MATERIA.

Las radiaciones emitidas por un radionucleido se pueden clasificar en radiaciones directa o indirectamente ionizantes(6).

En las radiaciones directamente ionizantes se incluyen todas las partículas cargadas tales como las partículas alfa, beta y iones pesados que posean suficiente energía cinética para producir ionizaciones al interaccionar con los electrones atómicos. En cada interacción ocurre una transferencia de energía y la partícula incidente pierde una pequeña fracción de su energía cinética. Si el electrón gana una energía mayor que la energía de ligadura, el exceso de energía lo expulsará del átomo, ionizándolo; pero si gana una cantidad de energía menor, sólo pasará a un nivel de energía superior, o excitado, del que regresará casi inmediatamente, emitiendo uno o varios fotones con una energía total igual a la diferencia de energía entre los dos niveles.

Las radiaciones indirectamente ionizantes pueden interaccionar con los núcleos o con los electrones atómicos y producir radiaciones ionizantes secundarias, como sucede, por ejemplo, con los neutrones y fotones X y gamma.

Los principales procesos de interacción de los fotones X y gamma son los siguientes:

a) Absorción fotoeléctrica. Por este proceso, los fotones con energía inferior a 0.1 MeV pueden cederle toda su energía a un electrón de un átomo cuyo número atómico sea elevado. El electrón es expulsado del átomo con una energía cinética igual a la diferencia entre la energía del fotón incidente y la energía de enlace del electrón. El electrón expulsado, o fotoelectrón, deja un espacio vacante que puede ser

ocupado por otro electrón que provenga de una capa más energética, lo que da lugar a la emisión de un fotón χ , que a su vez también puede sufrir una absorción fotoeléctrica.

b) Dispersión Compton. Los fotones cuya energía esté comprendida entre 0.1 y 1.0 MeV interaccionan principalmente con los electrones libres por medio de este proceso. El fotón incidente desaparece y se crea un segundo fotón de energía igual a la energía del fotón inicial menos la energía cédida al electrón.

c) Producción de pares. Los fotones con energía superior a 1.02 MeV pueden producir pares electrón-positrón al pasar por la vecindad de un núcleo pesado. Dicha energía equivale a la masa en reposo del par producido, según la relación de equivalencia entre la masa y la energía de Einstein:

$$2 m_e c^2 = 1.02 \text{ MeV}$$

donde $2 m_e$ es la masa en reposo del par producido y c es la velocidad de la luz en el vacío. La energía cinética del par producido es igual a la energía del fotón original menos los 1.02 MeV transformados a masa.

Los neutrones, por ser eléctricamente neutros, poseen la propiedad de interaccionar directamente con el núcleo atómico, ya que no son afectados por las cargas de los electrones orbitales ni por la carga del núcleo. En consecuencia, el proceso de interacción depende principalmente de la energía del neutrón incidente.

Los neutrones se han clasificado en función de su ener-

gía cinética con diferentes criterios, siendo más comúnmente empleada la clasificación siguiente^(6,7):

- i) neutrones fríos. Se les llama así a los neutrones que poseen una energía cinética menor que 0.025 eV;
- ii) neutrones térmicos. Así se les llama a los neutrones que se encuentran en equilibrio térmico con el medio ambiente, a 20.4 °C. Su energía promedio es de 0.025 eV y su velocidad media es de 2200 m/s;
- iii) neutrones epitérmicos. Son los neutrones con energía comprendida entre 0.025 y 0.4 eV;
- iv) neutrones lentos. Generalmente se considera a los neutrones lentos dentro de un rango de energía de 0.4 a 1 eV;
- v) neutrones intermedios. Los neutrones intermedios poseen energías desde 1.0 eV hasta 0.1 MeV;
- vi) neutrones rápidos. Los neutrones rápidos poseen una energía desde 0.1 MeV hasta cerca de 17 MeV. Estos neutrones se producen en las reacciones nucleares de fisión, como se verá en la sección 1.21; y
- vii) neutrones relativistas. Los neutrones que poseen una energía cinética mayor que 17 MeV se denominan "relativistas" porque sufren los efectos que predice la teoría de la relatividad especial, como consecuencia de su gran velocidad, comparable con la de la luz.

Durante la interacción de cualquier radiación ionizante con un sólido cristalino, ésta puede transferirle a los átomos del medio la cantidad de movimiento suficiente para desplazarlos de su posición original. Cada átomo desplazado pue

de poseer suficiente energía para desplazar, a su vez, a otros átomos, lo que origina espacios vacantes, átomos intersticiales* y otras imperfecciones reticulares a lo largo del recorrido de la radiación incidente.

Según la hipótesis de la "espiga térmica"^(8,9), el átomo con el que interacciona una partícula ionizante disipa su energía a lo largo de su trayecto, donde sufre colisiones con los átomos del medio, originando cortas trayectorias secundarias en forma de espiga y la producción súbita de un calentamiento elevado de esa región del material, de ahí su nombre. Esta zona distorsionada puede alcanzar temperaturas del orden de 10^3 °K durante un lapso de 10^{-10} segundos, lo que puede originar que una región pequeña del material se funda. Conforme se disipa la energía, el material se enfriá, la región fundida se vuelve a solidificar y se produce un reagrupamiento de los átomos de la red cristalina; pero una fracción de estos quedará desplazada respecto a su lugar primitivo, ya que es muy pequeña la probabilidad de que todos los átomos retornen a su posición original. A la región del material donde se encuentran los átomos desplazados, como consecuencia de las numerosas colisiones que ahí se produjeron, se le denomina "zona de desplazamientos"⁽⁹⁾.

Si, posteriormente, el sólido irradiado se calienta, se pueden eliminar algunas regiones vacantes e intersticiales, siempre y cuando la temperatura persista lo suficiente.

*El término intersticial se emplea para indicar que un átomo o ión se encuentra colocado entre los emplazamientos normales de una red cristalina.

La mayoría de los efectos de la interacción de la radiación ionizante con la materia que se mencionaron anteriormente, conducen a la radiólisis o rotura no selectiva de enlaces químicos en las moléculas de la sustancia irradiada. La cantidad de daño, o de cambio químico, depende de la naturaleza del material irradiado y de la clase y energía de la radiación. En general, todos los sistemas químicos expuestos a la radiación ionizante sufren cambios hasta alcanzar el equilibrio termodinámico. Estos cambios presentan las tres etapas siguientes⁽⁸⁾:

1^a Etapa física. Esta etapa consiste en la disipación de la energía absorbida por el sistema. Su duración es del orden de 10^{-15} segundos y depende de la energía y del coeficiente de transferencia lineal de energía* de la radiación incidente, de la distribución de las moléculas afectadas y de las especies formadas durante las interacciones.

2^a Etapa fisicoquímica. Durante esta etapa se establece el equilibrio térmico del sistema. Su duración es del orden de 10^{-12} segundos y depende del período de vibración molecular, durante el cual se pueda reacomodar internamente la molécula. Durante esta etapa las moléculas con átomos excitados disipan su exceso de energía, provocando roturas de enlaces químicos, conversiones internas** y transferencia de energía a

*Ver el apéndice B.

**La conversión interna es un proceso de interacción de un núcleo excitado con un electrón de las capas electrónicas internas. Al desexcitarse el núcleo se emite dicho electrón, con una energía cinética igual a la diferencia entre la energía cedida por el núcleo y la energía de ligadura del electrón expulsado.

las moléculas colindantes. En esta etapa, los electrones liberados durante la etapa física reducen su energía hasta niveles estables, como consecuencia de las numerosas colisiones con el medio.

3^a Etapa química. En esta etapa los iones formados en las etapas anteriores reaccionan químicamente y los productos se difunden en el medio. Esto conduce al establecimiento del equilibrio químico en un lapso del orden de 10^{-8} segundos, dependiendo de las constantes de velocidad de reacción y de los coeficientes de difusión de las especies reactivas, por lo que, si el sistema es muy denso, la cinética de difusión gobierna esta etapa.

Los productos de la radiólisis se localizan cerca de la trayectoria de las partículas ionizantes, debido a la relativa brevedad de la etapa física.

Cuando los cambios químicos de la radiólisis están bien determinados, se pueden utilizar para la dosimetría de las radiaciones ionizantes, como se verá en el capítulo III.

1.2) REACCIONES NUCLEARES.

Cuando un núcleo atómico interacciona con una partícula elemental, con un fotón de alta energía o con otro núcleo, puede ocurrir un reagrupamiento de los nucleones y originarse una reacción nuclear, es decir, un proceso nuclear que da por resultado la formación de uno o más núcleos atómicos diferentes y la emisión de radiaciones ionizantes.

Las reacciones nucleares de mayor interés son las que se efectúan entre el núcleo de un átomo pesado y una partícula ligera, tal como un neutrón, protón, deuterón, una partícula alfa o un fotón gamma, aunque también son de interés las reacciones nucleares inducidas por iones de litio, berilio, boro o carbono⁽³⁾.

La notación de las reacciones nucleares es análoga a la de las reacciones químicas. En la parte izquierda de la ecuación se escriben los símbolos de las partículas que reaccionan y en el lado derecho los productos de la reacción. Una reacción del tipo $X + \underline{x} \longrightarrow (\underline{Xx})^* \longrightarrow Y + Y$ indica que una partícula incidente \underline{x} es absorbida por un núcleo X que sirve de blanco, resultando un núcleo compuesto excitado $(\underline{Xx})^*$ que, en un período que fluctúa entre 10^{-16} y 10^{-12} s, se estabiliza emitiendo uno o varios fotones gamma o nucleones Y , resultando un nuevo nucleido $Y^{(10)}$. Esta reacción se puede escribir en la forma abreviada $X(\underline{x}, Y)Y$, donde \underline{x} y Y se sustituyen por los símbolos n, p, d, e, γ , α , w, \bar{p} , \bar{e} para representar un neutrón, un protón, un deuterón, un electrón, un fotón gamma, un fotón X, un mesón pi, un antiproton o una partícula alfa, respectivamente.

En todas las reacciones nucleares donde no haya creación ni aniquilación de nucleones se debe conservar el número total de éstos, además de otras propiedades tales como la carga eléctrica, la cantidad de masa-energía, el momento lineal y angular, la estadística y los números cuánticos que caracterizan cada partícula, de acuerdo con los conceptos actuales de mecánica cuántica.

1.21) Fisión nuclear.

La fisión nuclear es un proceso de desintegración en el cual un núcleo pesado se parte en dos núcleos de masas comparativamente cercanas*. Este es un proceso que en forma natural se presenta con muy poca frecuencia y sólo en algunos nucleidos pesados. El radionucleido natural con mayor velocidad de fisión espontánea es el ^{238}U , sin embargo en un gramo de ^{238}U sólo ocurren 25 fisiones/h, mientras que su emisión de partículas alfa por decaimiento radiactivo es cerca de 10^7 veces mayor. El método usual para producir fisiones artificialmente es excitar los núcleos de átomos pesados con neutrones o con partículas ligeras de energía media o alta**.

Según el modelo nuclear de la "gota líquida" (3,4,30), cuando un núcleo captura un neutrón se forma un núcleo compuesto excitado que sufre deformaciones en su configuración, lo que origina que todos los nucleones vibren. Si la energía de excitación es baja, las oscilaciones en torno a la forma esférica original son pequeñas, de modo que en su máxima deformación el núcleo adopta una forma elipsoidal y la energía de excitación se libera en forma de uno, o varios, fotones gamma, resultando solamente un proceso de captura radiativa

*También hay evidencias de la división de un núcleo pesado en tres núcleos de masa similar, o en dos núcleos de masa comparable y una partícula alfa, pero estas fisiones ternarias, en comparación con las binarias, se producen en una proporción muy pequeña.

**Se ha considerado arbitrariamente a una energía cinética de 50 MeV como el límite entre las partículas de energía cinética media y alta (referencia No. 30).

o reacción $(n,\gamma)^*$; pero si la energía de excitación es lo suficientemente grande, las oscilaciones pueden ser de tal magnitud que el núcleo, en el momento de su máxima deformación, adopte una forma semejante a la de un cacahuate y la repulsión eléctrica sea mayor que las fuerzas nucleares que unen a los nucleones. En el instante en que las fuerzas de repulsión eléctrica superan a las fuerzas de atracción nuclear se produce la fisión del núcleo. El umbral, o energía mínima de activación, necesario para la fisión de un núcleo pesado es de 4 a 6 MeV.

El ^{235}U se fisiona por la captura de un neutrón térmico, siguiendo el esquema representado por la ecuación siguiente:

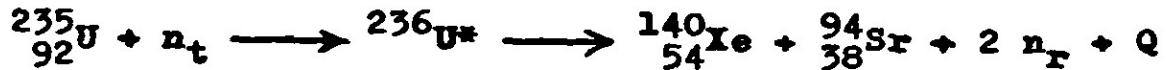


donde n_t es el neutrón térmico capturado por el ^{235}U , $^{236}\text{U}^*$ es el núcleo compuesto excitado, X y Y son los fragmentos de fisión, Q es la energía desprendida en la reacción y los 2 o 3 n_r son neutrones rápidos que desprenden los productos de fisión inmediatamente después de formarse. Cada fragmento de fisión emite 1 o 2 neutrones, denominados "neutrones inmediatos", en un espectro de energía de 0.05 a 17 MeV, resultando un promedio de 2.44 neutrones por cada fisión.

La fisión del ^{235}U produce muchos nucleidos diferentes, de los cuales la mayoría son radiactivos, con decaimiento β^- .

*La reacción (n,γ) es el proceso de desexcitación nuclear más probable, pero también pueden ocurrir otras reacciones nucleares; por ejemplo, las reacciones exoérgicas (n,α) o (n,p) o las reacciones endoérgicas $(n,2n)$ o $(n,3n)$.

Principalmente se forman nucleidos con un número atómico entre 30 y 63 y un número másico respectivo entre 72 y 162, de los cuales predominan los nucleidos con un número másico cercano a 95 y a 139, como los de los ejemplos siguientes:



La energía desprendida en la reacción de fisión se distribuye entre los fragmentos de fisión y entre los productos del decaimiento radiactivo de dichos fragmentos. El balance promedio de la energía desprendida en cada fisión es el siguiente*:

	MeV
Energía cinética de los fragmentos ligeros	100
Energía cinética de los fragmentos pesados	68.5
Energía cinética de los neutrones inmediatos	5
Fotones gamma inmediatos	7.5
Energía del decaimiento de los productos de fisión:	
partículas beta	8
fotones gamma	7
antineutrinos	12
	<hr/>
Energía total	208 MeV

La energía total de 208 MeV/fisión no se detecta en la práctica, porque los antineutrinos que se producen en el

*De Keppin, G.R., Physics of Nuclear Kinetics, Addison-Wesley, Reading, Mass, 1965.

decaimiento β^- de los productos de fisión se escapan de todo medio material sin sufrir casi ninguna interacción*. Sin embargo, la energía aprovechable en una reacción de fisión es del orden de 10^7 veces mayor que la de una reacción química exotérmica.

De manera similar, la fisión del ^{239}Pu generalmente se produce por la captura de un neutrón térmico y la fisión del ^{238}U y del ^{232}Th por la captura de un neutrón rápido, con una energía del orden de 1 MeV. Asimismo, cuando un núcleo pesado absorbe un fotón gamma puede excitarse lo suficiente para fragmentarse en forma similar a la fisión que se produce por la captura neutrónica; a este proceso se le denomina fotofisión y ocurre con frecuencia en los reactores nucleares.

Si un núcleo de masa atómica media, o mayor, interacciona con un fotón, o con una partícula, de alta energía, puede dividirse en varios fragmentos nucleares ligeros, como partículas alfa, protones y neutrones, y un fragmento más pesado; a este proceso se le denomina espalación. Por ejemplo, bombardeando un blanco de ^{63}Cu con neutrones con energía en un

*Se ha demostrado experimentalmente que, en un reactor nuclear, los antineutrinos ($\bar{\nu}$) originados en el decaimiento β^- de los productos de fisión pueden ser capturados por los protones de una sustancia rica en hidrógeno, produciéndose neutrones y positrones por la reacción $\bar{\nu} + p^+ \longrightarrow n + e^+$; pero en este proceso la sección eficaz de interacción es mucho muy pequeña, del orden de 10^{-43} cm^2 , por lo que dicha reacción ocurre con muy poca frecuencia y la mayor parte de los neutrinos escapan al cosmos (ver el apéndice B).

rango de 300 a 400 MeV, se ha producido una gran cantidad de partículas ligeras y una serie de núcleos atómicos más pesados, desde el ^{45}Ti hasta el ^{64}Cu . La notación de las reacciones de espalación es similar a la de las demás reacciones nucleares; por ejemplo, la reacción



se escribe en la forma abreviada $^{63}\text{Cu}(n,\alpha p 7n)^{52}\text{Fe}$.

Los neutrones desprendidos en cada fisión nuclear pueden sufrir numerosas colisiones con los átomos del medio, hasta reducir su energía cinética lo suficiente para que sean capturados por otros nucleidos visibles; de esta manera es posible que se produzca una reacción en cadena.

Si en cada evento de fisión existe más de un neutrón que origine una nueva fisión, el número de estas crece exponencialmente, resultando una reacción en cadena divergente, como sucede en las explosiones de las bombas nucleares; pero si, en promedio, sólo un neutrón produce una nueva fisión, resulta una reacción en cadena uniforme que se puede mantener bajo control, como sucede en un reactor nuclear.

1.3) REACTORES NUCLEARES.

Un reactor nuclear contiene material fisible en cantidad y distribución adecuada para que se pueda originar y mantener una reacción de fisión en cadena, en forma controlada y segura. El primer reactor nuclear, llamado "Pila atómica" o "Pila de uranio", fué construido por Enrico Fermi y sus colaboradores en 1942, en la Universidad de Chicago, E.U.A.

Los reactores nucleares pueden estar diseñados para que la reacción de fisión en cadena sea inducida por neutrones térmicos, intermedios o rápidos, dependiendo del material fisible que utilicen y del empleo a que estén destinados. De acuerdo con la energía de dichos neutrones, los reactores nucleares se clasifican en reactores térmicos, intermedios y rápidos.

Los reactores nucleares generalmente están constituidos de los materiales siguientes:

a) combustible nuclear. Se le denomina combustible nuclear al material donde se desarrollan las reacciones de fisión. En este material se encuentran presentes principalmente dos tipos de nucleidos pesados: los nucleidos fisibles y los nucleidos fertiles. Los nucleidos fisibles son la fuente de los neutrones que mantienen la reacción de fisión en cadena y de la energía desprendida por el reactor. El único nucleido fisible que existe en forma natural es el ^{235}U y constituye el 0.71% del uranio natural; el ^{238}U y el ^{234}U constituyen el 99.28% y el 0.006% restante, respectivamente. Estos nu-

cleidos no fisi~~bles~~ reciben el nombre de nucleidos fértils y prácticamente no sufren reacciones de fisión, pero pueden capturar un neutrón rápido y transformarse en nucleidos fisi~~bles~~; por ejemplo, el ^{238}U , por la captura de un neutrón, se puede transmutar en ^{239}Pu fisible y el ^{232}Th fértil, que es la única forma de torio natural, puede transmutarse en ^{233}U fisible:

b) moderador. El moderador es un material que se utiliza en los reactores térmicos e intermedios para reducir la velocidad de los neutrones producidos en las reacciones nucleares de fisión. El moderador debe poseer un número másico pequeño, una sección eficaz* de dispersión de neutrones grande y una sección eficaz de captura de neutrones pequeña. Como ejemplo de buenos moderadores se puede citar al agua, ya sea ligera o pesada, al grafito y al berilio;

c) refrigerante. El refrigerante es el fluido que se utiliza para extraer del reactor la energía liberada en las reacciones de fisión. Los refrigerantes que más se utilizan son el agua ligera y pesada, gases inertes a gran presión y metales de bajo punto de fusión;

d) reflector. El material reflector, generalmente agua y grafito, se encuentra situado alrededor del combustible nuclear, con la finalidad de que los neutrones producidos en las reacciones de fisión permanezcan en el núcleo del reactor, para mantener la reacción de fisión en cadena a una potencia constante;

*Ver el apéndice B.

e) elementos de control. Los elementos de control están constituidos por materiales absorbentes de neutrones* que limitan y regulan la intensidad de la reacción de fisión en cadena —es decir, el número de fisiones por unidad de tiempo— pudiéndose, cuando es necesario, detenerla completamente. Para esto se utiliza principalmente cadmio, boro o indio; y

f) blindaje. Todos los reactores nucleares requieren de un blindaje adecuado para impedir que las radiaciones ionizantes que se producen en las reacciones de fisión y en el decaimiento radiactivo de los productos de fisión, puedan llegar al exterior y afectar, tanto al personal como al medio ambiente. Para esto se utiliza una serie de cubiertas de acero y de concreto de alta densidad y gran espesor.

El conjunto formado por el combustible nuclear, el moderador y los elementos de control constituye el núcleo del reactor.

En la actualidad hay una multitud de reactores nucleares instalados en todo el mundo. Cada uno de ellos posee características diferentes, sin embargo, y de acuerdo a la constitución de su núcleo, es posible clasificarlos en dos grupos:

a) reactores heterogéneos, en los cuales el combustible nuclear y el moderador se encuentran separados. En este tipo de reactores el material fisible generalmente se deposita en

*Un material absorbente de neutrones posee una sección eficaz de captura de neutrones muy elevada (ver el apéndice B).

en vainas cilíndricas de circonio o de acero inoxidable, muy bien selladas para evitar la difusión de los productos de fisión. Estas vainas se colocan en determinadas formas geométricas, para formar una estructura de tipo celular en la que el moderador rodea cada una de ellas. Estos reactores son relativamente económicos y pueden utilizar uranio natural como combustible nuclear; y

b) reactores homogéneos. En este tipo de reactores el material fisible y el moderador están mezclados homogéneamente, por lo general, en forma de soluciones de nitrato o sulfato de uranilo en agua ligera o pesada. También son fáciles de controlar y poseen una amplia aceptación como reactores para investigación.

Si cada evento de fisión provoca, en promedio, la fisión de otro núcleo, se produce una reacción en cadena uniforme y se dice que el reactor opera en estado crítico; si el número de fisiones provocadas es inferior o superior a la unidad, el reactor se encontrará en estado subcrítico o hipercrítico, respectivamente. Las condiciones de criticidad dependen principalmente de la masa del combustible nuclear, de su disposición y la del moderador, y del grado de penetración de los elementos de control en el interior del núcleo. Obviamente, el reactor debe permanecer en estado crítico durante su operación normal.

En Ingeniería Nuclear se utiliza el concepto de reactividad del reactor para expresar la desviación de su estado crítico. Cada reactor nuclear opera con una reactividad cuya magnitud, ligeramente superior a cero*, debe permanecer constante cuando el reactor se encuentra en estado crítico. Si la reactividad del reactor disminuye o aumenta, la criticidad también se reducirá o crecerá, respectivamente⁽¹²⁾.

En un reactor nuclear se produce energía en forma proporcional al número de núcleos que se fisionan por unidad de tiempo. La velocidad de fisión, multiplicada por la energía liberada en cada fisión, da la energía total producida por unidad de tiempo; esta velocidad de producción de energía recibe el nombre de potencia. Para mantener el nivel de potencia en un valor deseado se utilizan diferentes tipos de elementos de control, con diferente valor del coeficiente de reactividad y accionados por mecanismos distintos.

De acuerdo a su función, los elementos de control se clasifican como sigue^(9,12):

a) **elementos de seguridad.** Estos elementos sirven para detener rápidamente la operación del reactor, en caso de urgencia;

b) **elementos de compensación.** Los elementos de compensación se emplean para ajustar la reactividad a largo plazo y

*Si no hubiese consumo de combustible nuclear, la reactividad del reactor en estado crítico sería igual a cero; el valor un poco mayor que cero es para compensar dicho consumo.

compensar la desaparición paulatina del combustible nuclear y la acumulación de los productos de fisión y venenos nucleares*;

- c) elementos de regulación. Como su nombre lo indica, por medio de estos elementos es posible regular continuamente la potencia del reactor, así como aumentarla o disminuirla;
- d) elementos de control fino. Estos elementos sirven para ajustar el nivel de potencia a un valor deseado, efectuando pequeñas y precisas variaciones en la reactividad del reactor;
- e) elementos transitorios. Estos elementos de control los usan algunos reactores de investigación, como el TRIGA-Mark III, para efectuar pulsaciones durante su operación. También pueden ser usados como elementos de seguridad durante la operación normal.

Los reactores nucleares se utilizan principalmente como fuente de neutrones y como fuente de energía. Los reactores generadores de energía, o reactores de potencia, se utilizan para producir energía eléctrica, tanto para su uso en ciudades e industrias como para la propulsión de submarinos y naves espaciales. Los reactores construidos para realizar investigaciones científicas, como el TRIGA-Mark III, están diseñados para tener fácil acceso al interior del núcleo y a

*Los venenos nucleares son los productos de fisión que no son fisibles ni fértils y que poseen una gran sección eficaz de absorción de neutrones, por lo que contribuyen a disminuir la reactividad del sistema. Los principales venenos que se producen en un reactor son el ^{149}Sm y el ^{135}Xe .

diversas posiciones experimentales, para poder irradiar materiales diferentes, por lo que constituyen una herramienta sumamente versátil para desarrollar investigación nuclear básica y tecnológica, para la producción de radionucleidos y para enseñanza y entrenamiento.

Algunos reactores rápidos están diseñados para que se produzcan materiales fisibles a partir de materiales fértils; estos reactores se conocen como reactores convertidores y ofrecen grandes perspectivas para un mejor aprovechamiento de los combustibles nucleares, ya que producen más combustible nuclear que el que consumen.

C A P I T U L O I I

REACTOR NUCLEAR TRIGA-MARK III

2.1) INTRODUCCION.

El reactor nuclear TRIGA-Mark III es un reactor homogéneo de piscina, enfriado con agua y moderado con hidruro de circonio y agua. Fue diseñado por la compañía Gulf General Atomic Ltd. para utilizar un tipo de combustible nuclear consistente en uranio enriquecido* al 20% y mezclado con circonio e hidruro de circonio, que en adelante se le denominará combustible-moderador. Este reactor se opera normalmente con una potencia de 1 Mw y puede ser pulsado para liberar, en forma súbita, una cantidad de energía del orden de 23 Mw·s; el pulso tiene un máximo de aproximadamente 1500 Mw y una duración (en la semialtura máxima) de una centésima de segundo. Este reactor también se puede operar con inserciones de reactividad en forma transitoria para alcanzar, casi instantáneamente, un nivel de potencia entre 300 y 1000 Kw.

En el núcleo del reactor se dispone de neutrones térmicos con un flujo del orden de 10^{13} n/cm²s** durante su operación a 1 Mw de potencia y con un flujo del orden de 10^{16} n/cm²s durante su operación pulsada^(13,14).

*El uranio enriquecido es aquel que contiene ^{235}U en cualquier porcentaje mayor que el 0.71% presente en el uranio natural.

**n/cm²s = neutrones/centímetro cuadrado-segundo.

Una característica sobresaliente del reactor TRIGA-Mark III es su comprobada seguridad, debido a que si aumenta la temperatura de los materiales constituyentes del núcleo, su alto coeficiente de reactividad negativo hace que el nivel de potencia regrese inmediata y automáticamente al nivel de operación normal. Sus demás características están expresadas en su nombre, TRIGA, por las iniciales en inglés de las palabras Training (entrenamiento), Research (investigación), Isotope production (producción de isótopos) y General Atomic.

2.2) DESCRIPCION DEL REACTOR TRIGA-MARK III.

2.21) Características generales de diseño.

El reactor TRIGA-Mark III contiene un tanque abierto (o piscina) lleno de agua desmineralizada (ver la figura 1 y el número 14 de la figura 3). Este tanque mide 7.62 m de longitud, 3.05 m de ancho máximo y 7.62 m de profundidad, y tiene un recubrimiento interior de aluminio con espesores variables entre 0.95 y 1.9 cm. La piscina está rodeada por un blindaje de concreto, con un espesor de 3.35 m en la parte inferior y de 0.91 m en la parte superior. El blindaje proporcionado por el concreto es tal que la razón de dosis en la superficie exterior, con el reactor trabajando a su máxima potencia, es inferior a 0.1 mrem/h.

La vasija de la piscina del reactor está empotrada sobre un soporte de concreto, de 1.5 m de espesor, con el propósito de evitar que la radiación ionizante emitida por el

núcleo del reactor pueda llegar al suelo y provoque que sus elementos se radiactiven. El blindaje de la parte superior del reactor lo proporciona el agua de la piscina. La razón de exposición en la superficie del agua es muy baja, de 10 a 45 mR/h, lo que equivale a una razón de dosis inferior a 2 mrem/h en la plataforma que rodea la parte superior de la piscina. Durante la operación del reactor a cualquier nivel de potencia, aún durante la operación pulsada, es posible observar con una completa seguridad el interior de la piscina y los dispositivos experimentales que rodean al núcleo.

El núcleo del reactor está soportado por una estructura que parte de un puente colocado sobre la piscina (figura 1 y número 12 de la figura 3). Esta estructura permite mover el núcleo de un extremo a otro de la piscina y poder operarlo en cualquier lugar situado cerca del fondo de la piscina.

2.22) Características del núcleo.

El núcleo del reactor es una estructura de tipo celular formada por elementos combustible-moderador, elementos de control, elementos de grafito y una fuente de neutrones que se utiliza para iniciar la reacción de fisión en cadena. Los componentes del núcleo están colocados entre dos placas de aluminio en forma de parrilla perforada y rodeados por un soporte cilíndrico de aluminio, cuyo aspecto exterior se puede observar en la figura 2. Las parrillas de aluminio miden 55.4 cm de diámetro y tienen 126 orificios de 3.82 cm de diámetro, distribuidos en seis círculos concéntricos alrededor

de un orificio central (figura 5). Entre el espacio que separa estos elementos circula agua de la piscina por convección natural.

Actualmente el núcleo está constituido de 85 elementos combustible-moderador, 4 elementos de control, 34 elementos reflectores de grafito, una fuente de neutrones de americio-berilio y cuatro instalaciones apropiadas para irradiar mate riales pequeños, de diámetro menor de 3.4 cm. En la figura 5 se muestra la distribución de estos componentes y de las ins talaciones para irradiación denominadas "dedal central", "tu bo seco", "SINCA" y "SIFCA". A continuación se describen las partes constituyentes del núcleo:

i) Elementos combustible-moderador. Los elementos combustible-moderador usados en el reactor TRIGA-Mark III consisten en una mezcla homogénea de uranio enriquecido al 20%, circonio e hidruro de circonio, donde la relación atómica entre el hidrógeno y el circonio, H/Zr, es igual a 1.68. La porción activa de cada elemento combustible-moderador mide 38.1 cm de longitud y 3.63 cm de diámetro, y contiene aproximadamente 38 g de ^{235}U , cuando está nuevo. En la figura 6 se muesta la forma de estos elementos. En el extremo inferior de la parte activa de cada elemento existe una barra de grafito de 8.74 cm de longitud y 3.63 cm de diámetro, y en el extremo superior hay otra barra de las mismas características. Es tas barras de grafito sirven como reflectores de los neutrones que se dirigen hacia los extremos superior e inferior de la parte activa de estos elementos. El sistema formado por

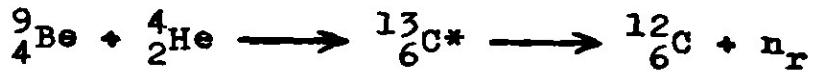
la mezcla del combustible nuclear, el moderador y las dos barras de grafito está cubierto por una barra de acero inoxidable de 0.5 mm de espesor. La vaina está sellada herméticamente para evitar la salida de los productos de fisión y las reacciones químicas de estos elementos con el refrigerante.

ii) Elementos de control. Para regular la operación del reactor, en el núcleo están colocados 4 elementos de control, en la forma que se muestra en la figura 5. De estos cuatro elementos, uno es de control fino, otro es de regulación, otro es de seguridad y el otro es transitorio. Las características de estos elementos se mencionaron en la sección 1.3 (p. 21). Tanto el elemento de seguridad como el de control fino y el de regulación están contenidos en vainas de acero inoxidable de 110 cm de longitud y 3 cm de diámetro. Sus extremos son de grafito, de 16.5 cm de longitud; la parte central consta de dos secciones: una sección, de 38 cm de longitud, es de grafito impregnado con carburo de boro en polvo y la otra, de la misma longitud, es una sustancia denominada "seguidor de combustible", que no es más que una mezcla de uranio enriquecido al 20% con hidruro de circonio, similar a la de los elementos combustible-moderador, pero que solamente contiene 32 g de ^{235}U cuando se encuentra nueva. El elemento transitorio consiste en una barra de grafito boratado, colocada en la parte superior de una vaina de aluminio de 94 cm de longitud y 3.2 cm de diámetro; la parte inferior del interior de la vaina solamente contiene aire.

Dependiendo de los requerimientos para el control de la potencia, los cuatro elementos se pueden desplazar verticalmente una longitud hasta de 38 cm. El desplazamiento del elemento transitorio se efectúa en la mayor brevedad posible, neumáticamente, y el de los otros tres se realiza paulatinamente, por medios mecánicos.

iii) Elementos de grafito. Los elementos de grafito están en el anillo exterior del núcleo, rodeando todos los elementos combustible-moderador (figura 5) para reducir, junto con el agua de la piscina, el escape de neutrones en la dirección radial. Estos elementos son de la misma forma y dimensiones que los elementos combustible-moderador, pero contienen, en el lugar del material activo de estos últimos, una barra de grafito.

iv) Fuente de neutrones de americio-berilio. Esta fuente proporciona un flujo de neutrones, del orden de 10^6 n/cm²s, que resulta suficiente para iniciar la reacción de fisión en cadena. El ²⁴¹Am emite partículas alfa que al interaccionar con los nucleidos de ⁹Be dan lugar a la reacción nuclear



donde n_r es un neutrón rápido producido en cada evento.

v) Dedal central. El dedal central es un tubo de aluminio de 3.38 cm de diámetro interior, situado en la posición central del núcleo, como se muestra en la figura 5. A esta posición llega un flujo aproximado de 4.6×10^{13} n_r/cm^2 s y de 3.1×10^{13} n_t/cm^2 s, junto con una exposición bastante elevada

de radiación gamma, beta y neutrinos, principalmente. Debido a su situación geométrica dentro del núcleo, esta es la posición en donde existe el mayor flujo de radiación ionizante.

vi) Tubo seco. El tubo seco es un tubo de aluminio de 3.38 cm de diámetro interior, colocado en el mismo círculo de la estructura celular donde se encuentran los elementos de grafito (figura 5). Este tubo está sellado herméticamente para evitar la presencia de agua en su parte interior. En esta posición hay un flujo de aproximadamente $10^{13} n_{\gamma}/cm^2s$ y un flujo similar de neutrones térmicos. En esta posición es posible irradiar materiales que posean un diámetro menor a 3.35 cm y una longitud hasta de 38 cm.

En el dedal central y en el tubo seco normalmente se irradian muestras pequeñas, colocadas en cápsulas de irradiación de polietileno o de aluminio, similares a las que se muestran en las figuras 8 y 9 del capítulo V.

vii) SINCA. El SINCA, acrónimo de Sistema de Irradiación Neumático de Cápsulas, es un dispositivo que parte del núcleo a una ramificación con terminales en tres laboratorios. La terminal del núcleo se encuentra colocada en el mismo anillo en donde se encuentran los elementos de grafito y el tubo seco, como se muestra en la figura 5. En este sistema es posible irradiar muestras hasta de 1.25 cm de diámetro y 10 cm de longitud, colocadas en cápsulas de irradiación denominadas "lanzaderas" (o "rabbits", en inglés) y transportarlas neumáticamente de cualquier terminal al núcleo en un lapso de 6 a 8 segundos, lo que permite efectuar investigaciones con

radionucleidos de vida media del orden de segundos. En esta posición hay un flujo de radiación ionizante similar al que existe en el tubo seco.

viii) SIFCA. El SIFCA, acrónimo de Sistema de Irradiación Fijo de Cápsulas, es una estructura semicircular de aluminio, colocada en la parte exterior del núcleo, como se indica en la figura 5. Esta estructura contiene 15 orificios de 3.38 cm de diámetro, para colocar cápsulas de irradiación como la que se muestra en la figura 9 del capítulo V. En este dispositivo hay un flujo de aproximadamente $2 \times 10^{12} n_r/cm^2s$ y de $5 \times 10^{12} n_t/cm^2s$; este flujo es considerablemente menor que el presente en las demás posiciones mencionadas, debido a la presencia de los elementos de grafito entre este dispositivo y los elementos combustible-moderador.

En cualquiera de los cuatro sistemas de irradiación que se mencionaron anteriormente, las cápsulas de irradiación se pueden insertar o extraer en cualquier momento. También es posible irradiar muestras de grandes dimensiones dentro del agua de la piscina, en las cercanías del núcleo, pero hay el inconveniente de que en esta posición el flujo de neutrones es mucho menor que en las otras posiciones.

La parrilla superior del núcleo está diseñada de tal forma que es posible quitar el dedal central y los 6 elementos combustible-moderador que lo circundan, para que quede libre una sección hexagonal donde se pueden irradiar muestras hasta de 11 cm de diámetro. Esta parrilla también tiene

dos secciones en forma triangular donde se pueden quitar hasta tres elementos combustible-moderador para irradiar materiales con un diámetro de 6 cm; el flujo de neutrones en esta posición es relativamente elevado, del orden de 10^{13} neutrones/cm²s. En la figura 5 se muestra la configuración de la sección hexagonal y la de las dos secciones triangulares. Tanto la parrilla superior como la inferior tienen orificios donde se pueden insertar laminillas de materiales como el oro, para medir el flujo de neutrones. Uno de los isótopos del oro, el ¹⁹⁷Au, se utiliza para medir el flujo total de neutrones. Para medir el flujo de neutrones rápidos también se utiliza dicho isótopo, pero la laminilla se cubre con una capa delgada de cadmio, ya que el cadmio absorbe más del 90% del flujo total de neutrones térmicos incidentes⁽¹⁵⁾.

2.23) Instalaciones para irradiación en los extremos de la piscina.

En el reactor TRIGA-Mark III existen instalaciones en los dos extremos de la piscina con diferentes características, para irradiar materiales de diferente tamaño.

En un extremo de la piscina hay dos columnas térmicas, una horizontal y otra vertical, junto a un espacio hueco de 90 X 90 X 100 cm³ (ver los números 3, 4 y 5 de la figura 3). Dichas columnas térmicas consisten en bloques de grafito para reducir la velocidad de la mayor parte de los neutrones incidentes. En el extremo superior de la columna térmica

vertical hay un tapón de concreto de perfil escalonado, a través del cual se obtiene un flujo aproximado de 1.6×10^5 n_r/cm^2s y de 2×10^7 n_t/cm^2s (15). El acceso y blindaje del espacio hueco y de la columna térmica horizontal lo proporciona una puerta de concreto que se desplaza mecánicamente sobre rieles. Dentro de esta puerta de concreto está insertada una columna térmica frontal, en donde hay un flujo aproximado de 5.5×10^5 n_r/cm^2s y de 3.7×10^7 n_t/cm^2s . También hay dos columnas térmicas laterales, de 15 cm de diámetro, que se intersectan con el espacio hueco adyacente a la columna térmica horizontal. En estas columnas térmicas laterales hay un flujo aproximado de 2.6×10^5 n_r/cm^2s y de 4×10^6 n_t/cm^2s (15). Además hay 4 tubos de haces de neutrones colocados entre la periferia del núcleo y la pared exterior del reactor y dos tubos de haces de neutrones que cruzan el reactor en forma tangencial al núcleo. Los tubos de haces de neutrones radiales al núcleo tienen 15 cm de diámetro y los tubos tangenciales son de 20 cm de diámetro; en estos "puertos" de neutrones hay un flujo del orden de 10^7 n_r/cm^2s y del orden de 10^8 n_t/cm^2s (figura 4).

En el otro extremo de la piscina está un cuarto de exposición de 2.75 m de alto, 3.05 m de ancho y 3.65 m de largo (figuras 3 y 4). Este cuarto está rodeado de concreto boratado, excepto hacia la pared en contacto con la piscina. Dicha pared tiene una deformación hacia el interior del cuarto, como se puede observar en la figura 3, para colocar el núcleo más cerca de los materiales a irradiar dentro del cuarto. El

acceso a este cuarto es por medio de una puerta de concreto que se desplaza sobre rieles mediante un motor eléctrico. Para poder introducir cables eléctricos u otros servicios que se necesiten en el interior del cuarto, hay dos conductos al exterior. También hay tuberías de agua para enfriar el concreto y evitarle esfuerzos excesivos por el calentamiento que produce la energía de las radiaciones absorbidas.

2.24) Sistema de refrigeración y purificación de agua.

El núcleo del reactor se enfriá por convección natural del agua desmineralizada de la piscina. Por medio de un circuito primario de enfriamiento se mantiene el agua de la piscina a la temperatura ambiente (aproximadamente a 20 °C). El agua de la piscina se bombea a través de un filtro, de un desmineralizador de lecho mixto y de un intercambiador de calor de 1 Mw, para finalmente regresarla a la piscina. En este circuito, que se muestra en la figura 7, se utilizan instrumentos para medir la conductividad del agua y la caída de presión a través del filtro. El desmineralizador se utiliza con la finalidad de mantener la conductividad del agua en un nivel bajo, así como para disminuir la radiactividad del agua por la eliminación de casi todas las partículas e impurezas solubles, para minimizar la corrosión de los materiales constituyentes del reactor y para mantener la claridad óptica del agua y poder observar con nitidez el interior de la piscina.

Por medio de un circuito secundario de enfriamiento se extrae el calor transferido al circuito primario. El circuito secundario consiste en una torre de enfriamiento, conectada al circuito primario por medio de una tubería de acero al carbón, de 15 cm de diámetro.

Sobre el puente del reactor se encuentra montada una bomba para extraer agua de la piscina y descargarla directamente sobre el núcleo. La turbulencia, así provocada, sirve para disminuir la formación del ^{16}N en el agua que atraviesa al núcleo, con lo que se reduce la dosis de radiación gamma en la superficie de la piscina.

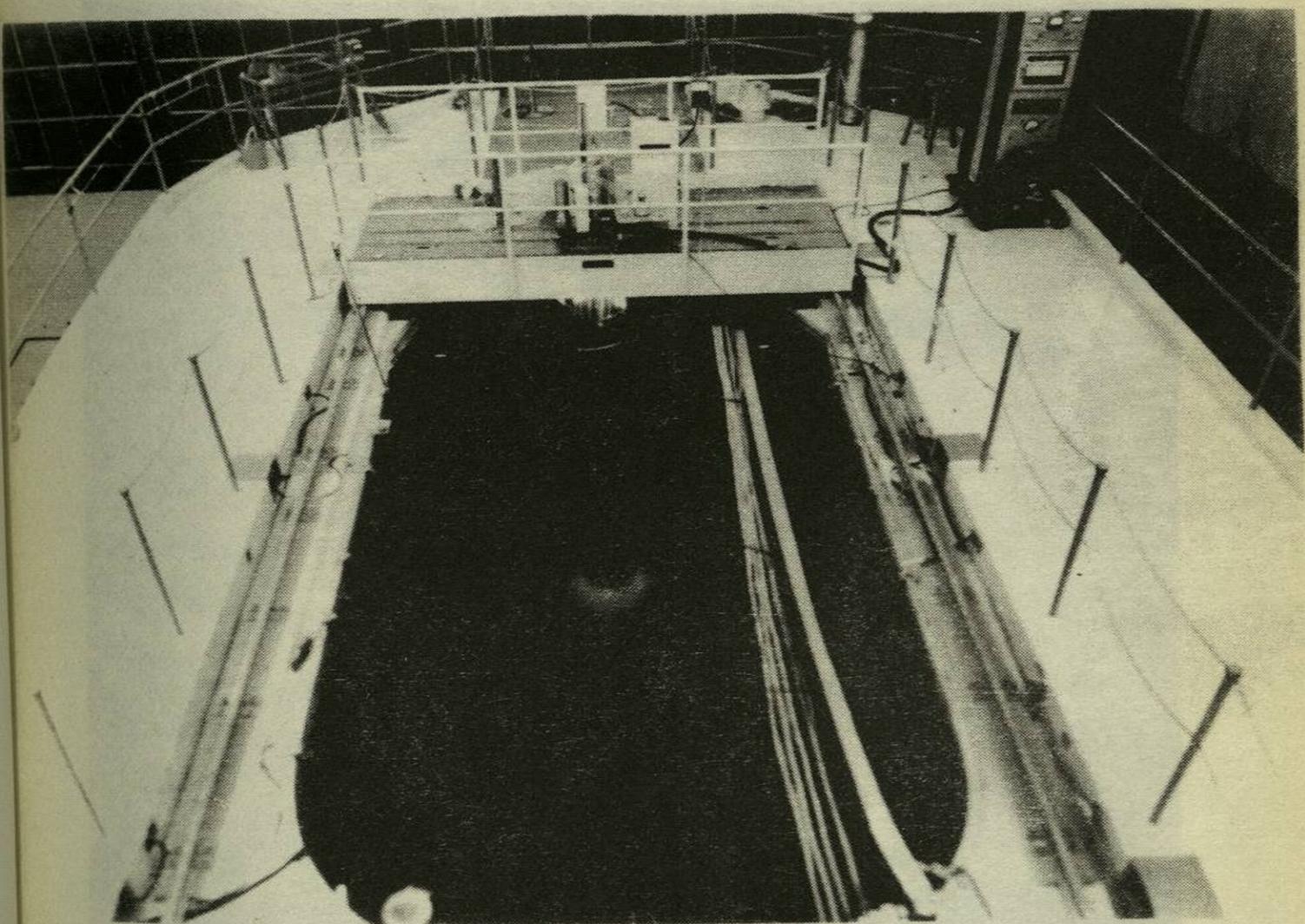


Figura 1. Reactor nuclear TRIGA-Mark III.

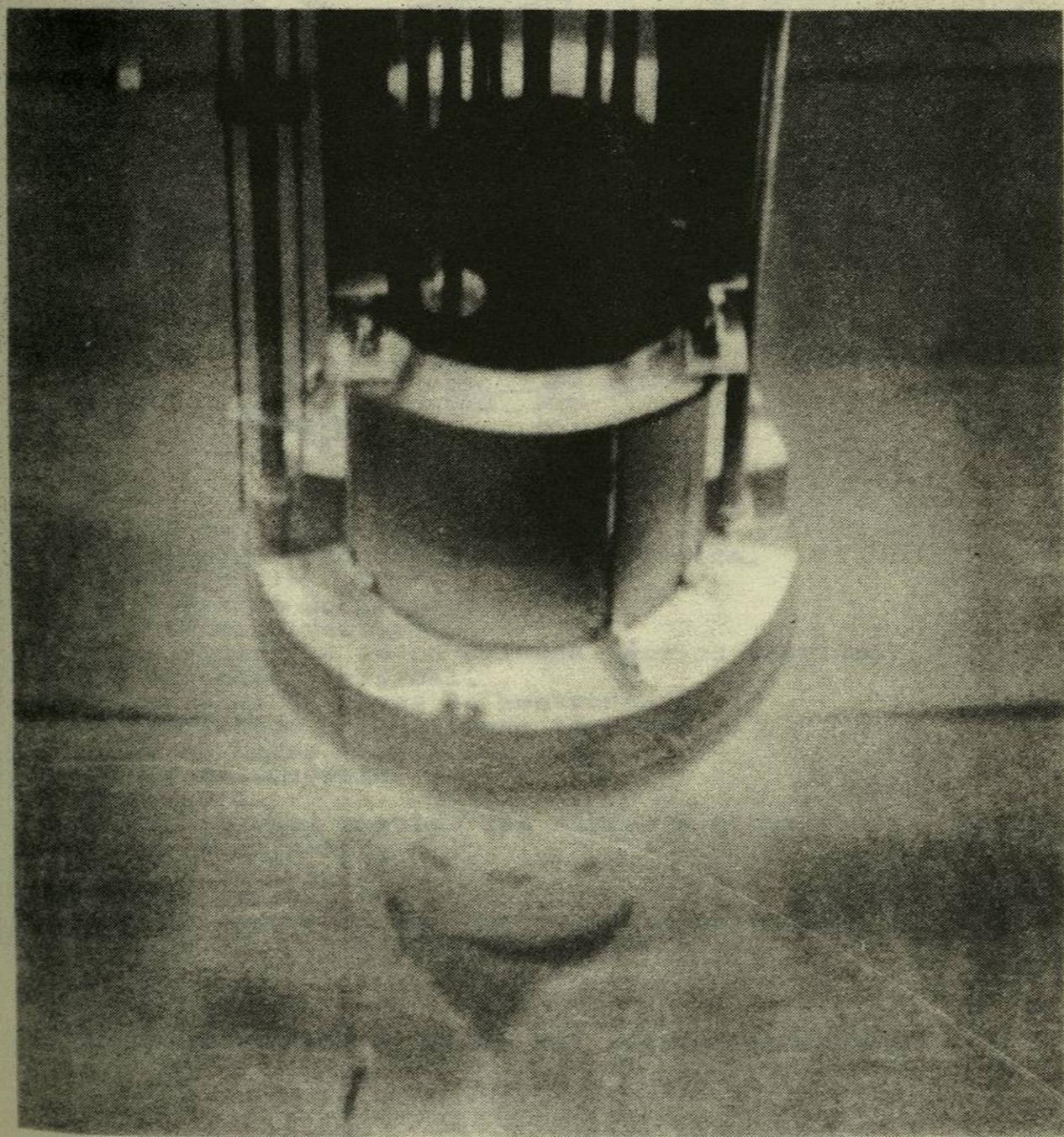
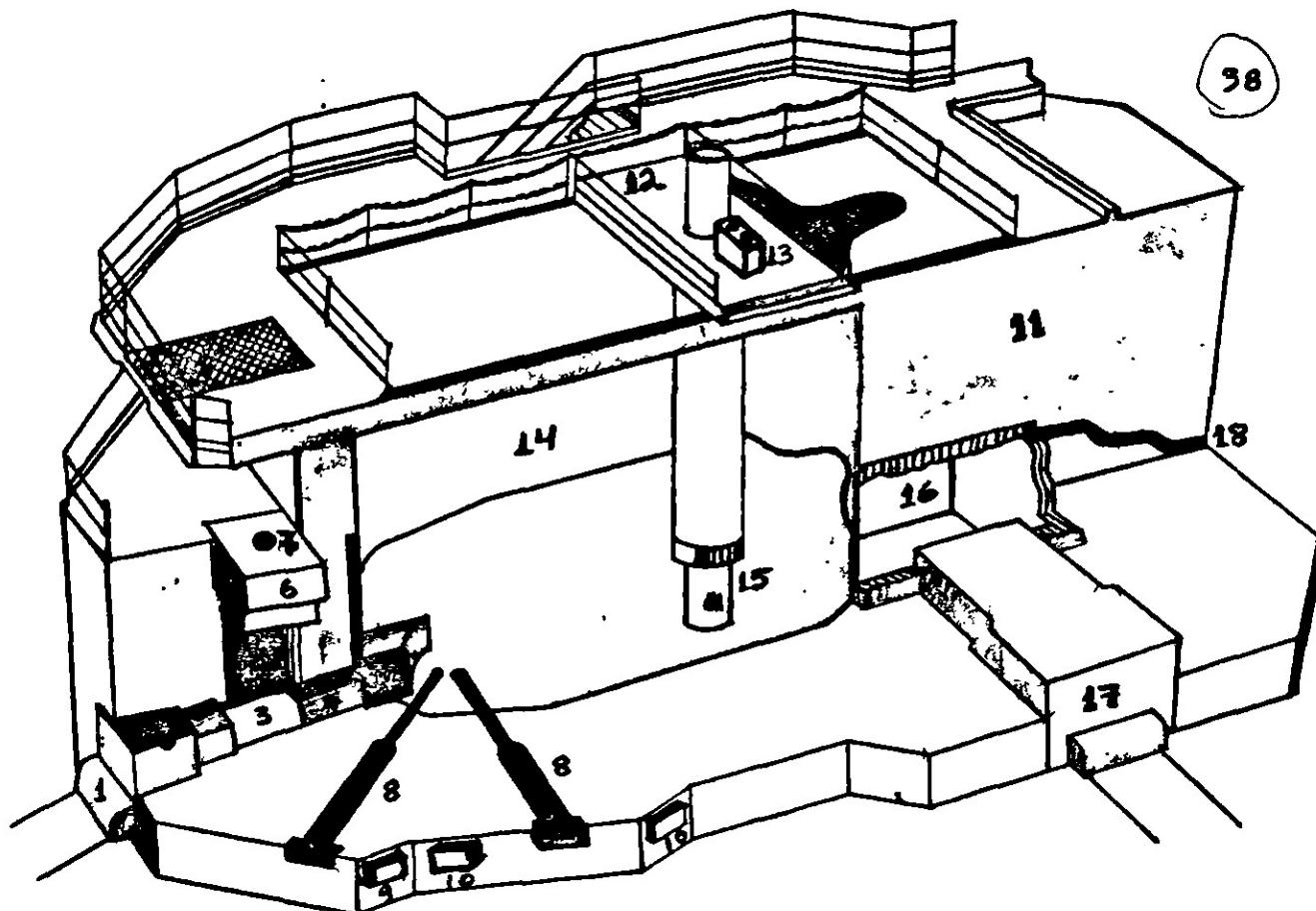
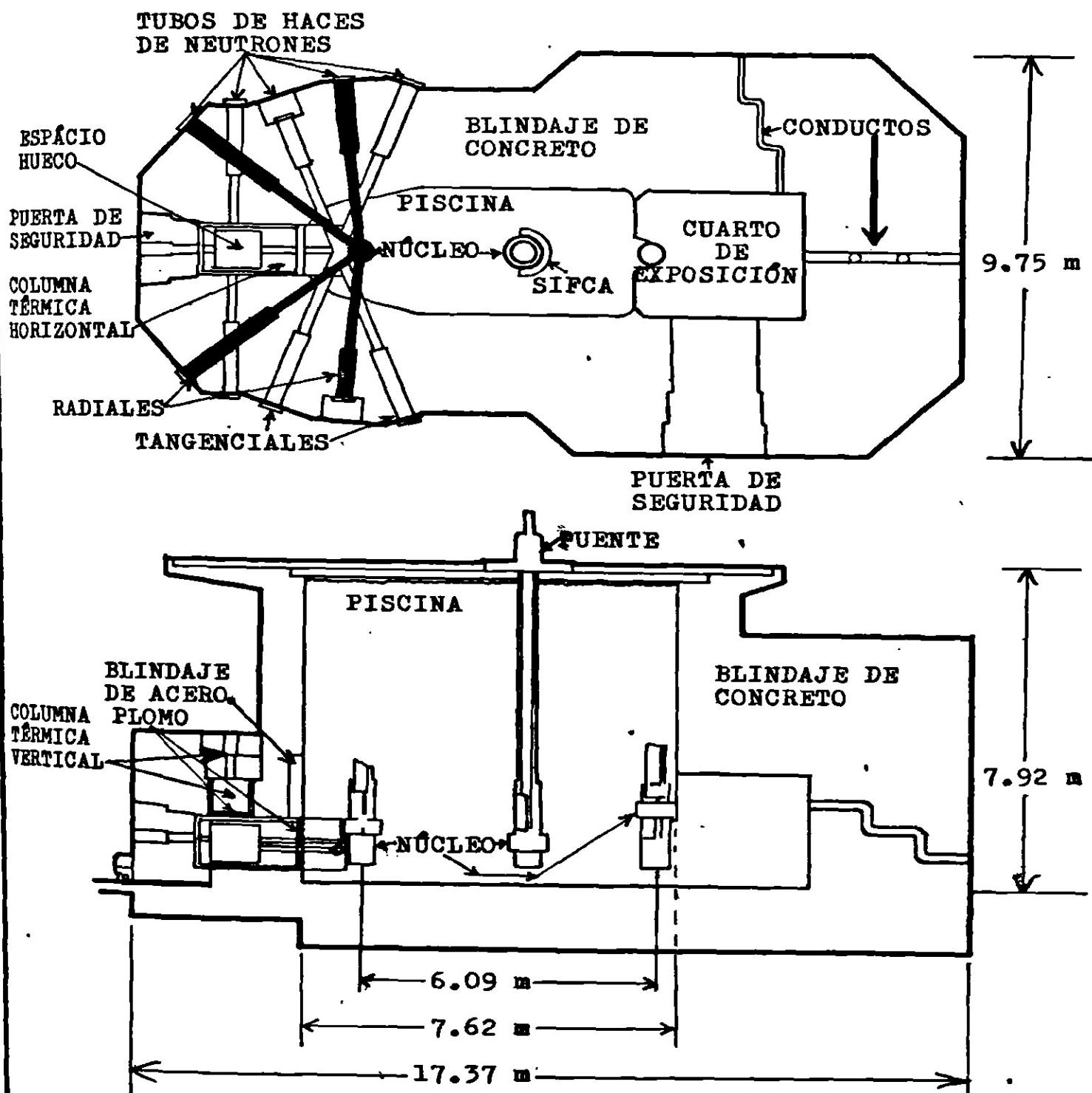


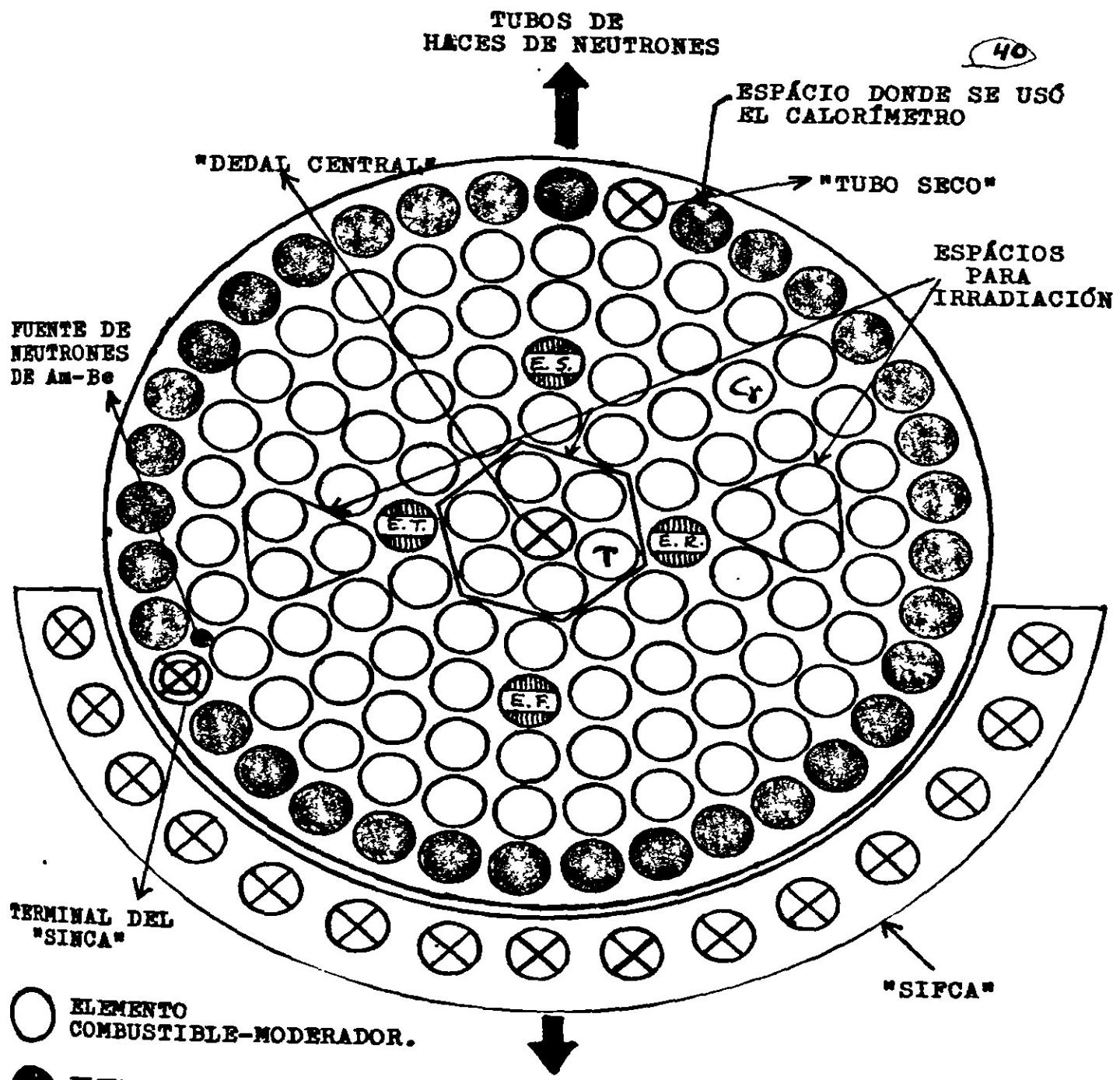
Figura 2. Núcleo del reactor
TRIGA-Mark III.



1. Durmiente del puerto de acceso.
2. Puerta de seguridad de la columna térmica.
3. Espacio hueco de 0.5 m.
4. Columna térmica horizontal.
5. Columna térmica vertical.
6. Tapón de seguridad de la columna térmica vertical.
7. Puerto de acceso vertical.
8. Tubos radiales de haces de neutrones.
9. Puerto de acceso a la columna térmica.
10. Puerto de haces tangenciales.
11. Blindaje de concreto.
12. Puente móvil.
13. Interruptor para regular las barras o elementos de control.
14. Piscina del reactor.
15. Núcleo del reactor.
16. Cuarto de exposición.
17. Puerta de seguridad del cuarto de exposición.
18. Conductos para accesorios experimentales.

Figura 3. Modelo a escala del reactor TRIGA-Mark III.





- E.S. = Elemento de seguridad.
 E.F. = Elemento de control fino.
 E.R. = Elemento de regulación.
 E.T. = Elemento transitorio.
 C_γ = Cámara para medición de la radiación gamma.
 T = Elemento combustible-moderador instrumentado con un termopar.

Figura 5. Distribución de los espacios para irradiación y de los elementos constituyentes del núcleo del reactor TRIGA-Mark III.

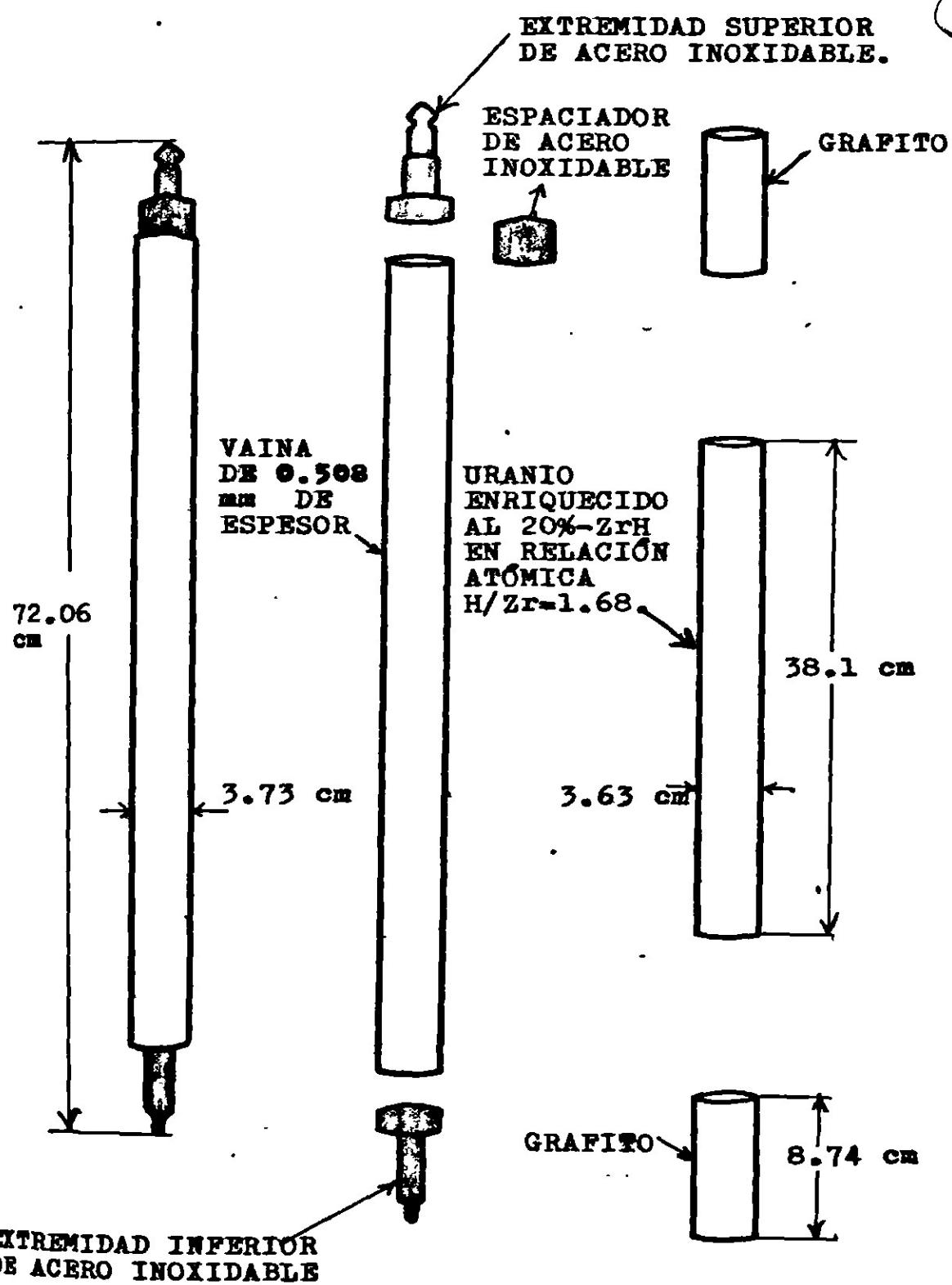


Figura 6. Elemento combustible-moderador usado en el reactor TRIGA-Mark III.

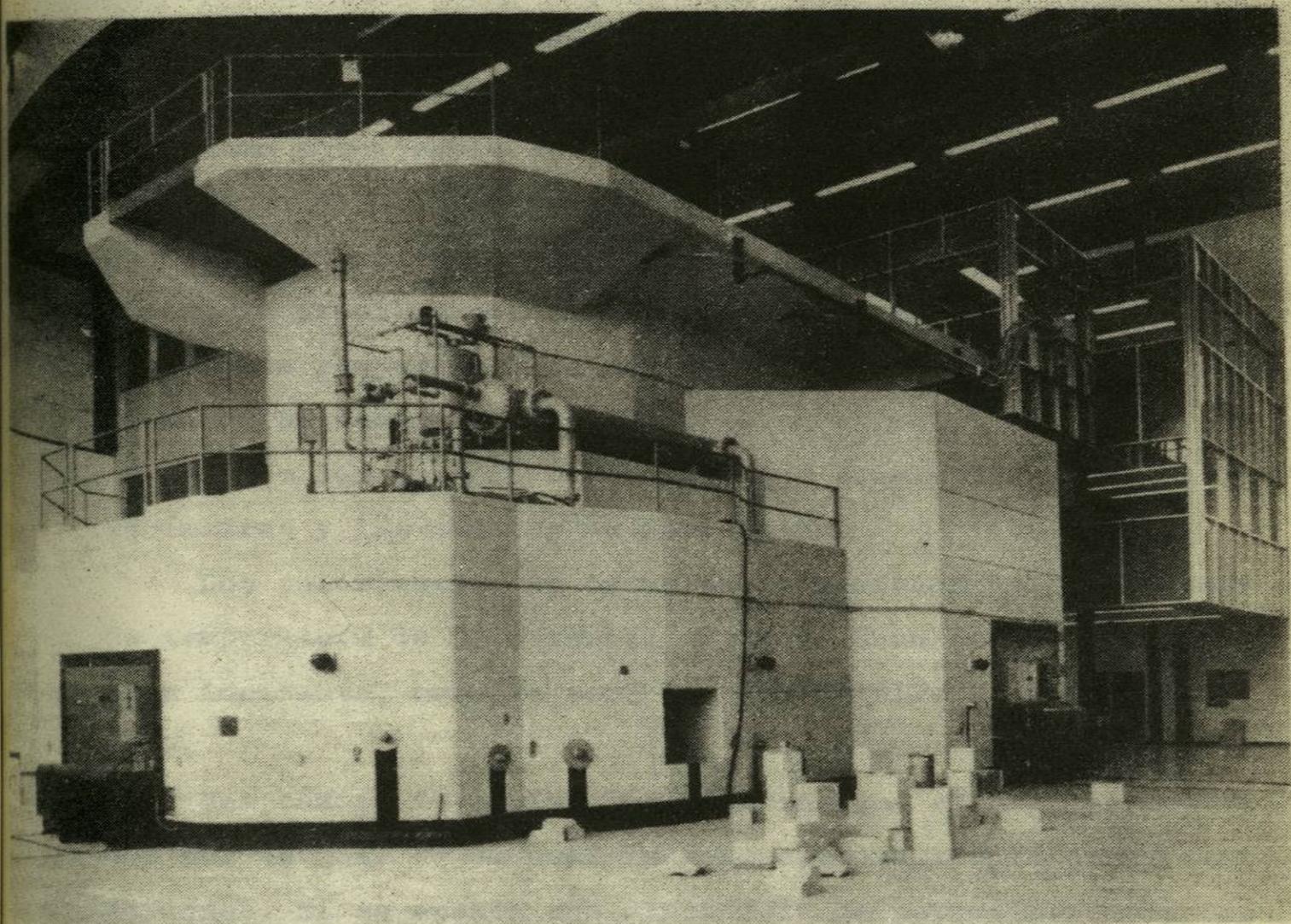


Figura 7. Estructura exterior y circuito de enfriamiento del reactor TRIGA-Mark III.

C A P I T U L O I I I

DOSIMETRIA DE LA RADIACION IONIZANTE

3.1) METODOS DOSIMETRICOS.

Las técnicas de medición de la dosis de radiación ionizante se pueden dividir en absolutas y secundarias^(16,17). Los métodos absolutos permiten determinar la dosis en forma directa, por algún cambio físico que se pueda medir fácilmente, como por ejemplo la ionización producida en un gas o el incremento de temperatura de un material. Los métodos absolutos a menudo no son adecuados para su uso rutinario, por lo que en la práctica es conveniente usar dosímetros secundarios, cuya respuesta a la radiación sea conocida por comparación con un dosímetro absoluto.

Entre los principales dosímetros absolutos están los calorímetros y las cámaras de ionización.

Los calorímetros se basan en la medición del incremento de temperatura de un material expuesto a un campo de radiación ionizante, como se verá con más detalle en la sección 3.12.

Una cámara de ionización contiene dos electrodos separados por un gas, en el cual la radiación incidente causa ionizaciones. Si se aplica una diferencia de potencial entre los electrodos, los iones formados son atraídos hacia ellos, generándose una corriente eléctrica que se puede medir fácilmente. La dosis absorbida se puede calcular midiendo esta corriente generada, siempre y cuando se conozca el espectro de

energía de la radiación incidente.

Entre los dosímetros secundarios se encuentran los dosímetros termoluminiscentes y los dosímetros químicos.

La dosimetría termoluminiscente se basa en la propiedad que tiene la mayoría de los sólidos cristalinos de emitir fonones por efecto de la interacción de las radiaciones nucleares y de la luz ultravioleta con los electrones de la red de el cristal. La cantidad de luz emitida por la sustancia termoluminiscente es proporcional a la dosis de radiación. Para la dosimetría de la radiación gamma generalmente se usan los cristales de fluoruro de litio, borato de calcio o fluoruro de calcio.

En el presente trabajo se utilizó la dosimetría química y la calorimetría, por lo que su fundamento se describe con mayor amplitud en los dos incisos siguientes.

3.11) Dosimetría química.

La dosimetría química está basada en la determinación de la cantidad de cambio químico que se produce en un sistema cuando se expone a la radiación ionizante. Cualquier cambio químico que se conozca bien, tanto desde el punto de vista cualitativo como del cuantitativo, puede servir como base para un dosímetro químico. La magnitud del cambio químico de pende, principalmente, de la energía absorbida por el sistema químico durante la irradiación y de las características del campo de radiación.

Se han estudiado numerosos sistemas químicos con el propósito de utilizarlos en dosimetría de radiaciones, pero solamente algunos han sido útiles, ya que es necesario que tengan una respuesta lineal en un rango de dosis amplio y que sean de manejo fácil. Aún no se ha encontrado ningún sistema químico que pueda ser usado en cualquier campo de radiación ionizante o en cualquier rango de dosis, pero hay algunos compuestos químicos muy adecuados para la dosimetría de determinados campos de radiación ionizante, como se verá más adelante.

Entre los dosímetros químicos más conocidos está el dosímetro de Fricke, desarrollado por Fricke y Morse entre los años de 1927 y 1929. Este dosímetro se basa en la valoración del ión férrico que se forma al irradiar una solución acuosa de sulfato ferroso⁽¹⁸⁾. Este dosímetro es de gran exactitud y se recomienda para medir la dosis de radiación gamma de una energía en un rango de 0.1 a 10 MeV, en un intervalo de dosis de 2×10^3 a 4×10^4 rad con una razón de dosis entre 20 y 10^9 rad/s, como la dosis de un irradiador gamma de ^{60}Co . No se puede usar este dosímetro en el núcleo de un reactor nuclear, porque ahí los neutrones activarían los átomos de hierro y de azufre presentes en la solución.

Se han estudiado otros compuestos químicos con la finalidad de utilizarlos como dosímetros en reactores nucleares, encontrándose que los dosímetros de ácido oxálico, tanto sólido como en solución acuosa, satisfacen ampliamente la mayor

parte de los requerimientos⁽¹⁸⁻²⁴⁾ y son útiles para efectuar mediciones de la dosis en un amplio rango (desde 1.6 Mrad, para el ácido oxálico en solución acuosa, hasta 1000 Mrad, para el ácido oxálico sólido).

La dosimetría química se emplea principalmente en tres casos: para evaluar dosis mayores a las que se pueden medir por medio de cámaras de ionización; para calibrar dosímetros comerciales, como algunas películas de polímeros o vidrio; y para los experimentos donde se requiera exactitud en el cono cimiento de la dosis de radiación y no sea posible utilizar un dosímetro primario.

Para que un sistema químico pueda ser usado como dosímetro de la radiación emitida por un reactor nuclear, debe poseer las características siguientes:

1º debe tener una composición química tal que la radiación ionizante no le induzca radiactividad a ninguno de sus átomos;

2º su mecanismo de funcionamiento debe ser bien conocido;

3º la descomposición radiolítica producida por la radiación no debe ser afectada por el incremento de la temperatura durante la irradiación;

4º debe ser estable bajo las condiciones normales de trabajo, es decir, estable a la exposición a la luz, aire y demás factores del medio ambiente;

5º debe ser fácil de preparar e insensible a las pequeñas

concentraciones de impurezas que contienen los reactivos químicos comerciales; y

6º debe de ser barato, simple de usar y que no requiera de instrumental analítico complejo.

Además de dichas características, la respuesta del dosímetro deberá ser:

- i) proporcional a la dosis de radiación en un amplio rango;
- ii) independiente de la razón de dosis, en el orden de algunos Mrad/h;
- iii) independiente de la energía y del coeficiente de transferencia lineal de energía* de la radiación, en un amplio rango o con una dependencia conocida;
- iv) reproducible, dentro de un cierto error que se pueda de terminar;
- v) independiente de pequeños cambios en la composición del dosímetro durante la irradiación, así como independiente de la variación del pH o de la presión, por la producción de gases; e
- vi) independiente de la temperatura antes, durante y después de la irradiación.

Los dosímetros químicos en estado sólido tienen tres características muy importantes para su uso en reactores nucleares. En primer lugar, su densidad es mucho mayor que la del compuesto en solución, lo que permite utilizar sistemas

*Ver el apéndice B.

dosimétricos de tamaño pequeño, adecuados para efectuar mediciones de la dosis dentro del núcleo del reactor; en segundo lugar, los cambios inducidos por la radiación ionizante pueden persistir durante grandes períodos, lo que permite evaluar la dosis mucho tiempo después de que se efectúa la irradiación; y, finalmente, su descomposición radiolítica es directamente proporcional a la dosis en un rango mucho mayor que el de los dosímetros químicos en solución.

En base a las características mencionadas anteriormente y a las recomendaciones personales del Dr. Iván Draganić, se optó por usar el dosímetro químico de ácido oxálico dihidratado en el presente trabajo. Dicho dosímetro se describirá en los capítulos siguientes.

3.12) Dosimetría por calorimetría.

En principio, la determinación calorimétrica de la energía que absorbe un material, de un haz de radiación, representa la forma ideal de medición de la dosis. Si no hay ningún cambio químico en el material absorbente, toda la energía absorbida por éste aparecerá como calor.

En un reactor nuclear, la absorción de energía por los materiales de un calorímetro se debe, principalmente, a su interacción con los neutrones rápidos y rayos gamma provenientes de las reacciones nucleares de fisión, de las reacciones (n, γ) que suceden en los materiales del núcleo del reactor y del decaimiento radiactivo de los productos de fisión.

Los calorímetros empleados en las investigaciones nucleares deben de ser de dimensiones pequeñas, ya que para irradiarlos se requiere introducirlos en diferentes posiciones del núcleo del reactor. Además, deben de estar construidos con materiales que posean una sección eficaz de absorción de neutrones pequeña, para reducir la posibilidad de que sus elementos se activen y minimizar la cantidad de radiación producida por las reacciones nucleares (n, γ).

En el presente trabajo se emplean los valores de la dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos obtenidos en el núcleo del reactor, en el espacio adyacente al tubo seco que se muestra en la figura 5, página 40. Dicho calorímetro es de forma cilíndrica, mide 1.9 cm de diámetro exterior y tiene una longitud de 8.2 cm. El material absorbente de la energía de la radiación gamma y de los neutrones rápidos consiste en una barra de aluminio de 4 mm de diámetro y 35 mm de longitud, soldada a un termopar y aislada térmicamente. En la referencia número 25 se da una descripción detallada del fundamento, construcción y ecuaciones de transferencia de calor que rigen el comportamiento del calorímetro.

C A P I T U L O I V

DOSIMETRO DE ACIDO OXALICO SOLIDO

Los estudios efectuados por I.G. Draganić, O.S. Gal y sus colaboradores⁽¹⁹⁻²²⁾, sobre la radiólisis de algunos ácidos dicarboxílicos sólidos y su aplicación para la dosimetría de los reactores nucleares de piscina, sugieren que el ácido oxálico dihidratado es el mejor dosímetro químico sólido, adecuado para la determinación de la dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos, en un rango de 100 a 1000 Mrad con un error máximo del 10%.

El comportamiento de los cristales de ácido oxálico dihidratado como dosímetro químico presenta las siguientes ventajas⁽²¹⁾:

1º La cinética de su descomposición radiolítica, producida por un campo de radiación ionizante, se puede representar por medio de una expresión de primer orden, tanto para la radiación gamma de un irradiador de ^{60}Co , como para el campo mixto de radiación presente en el núcleo de un reactor;

2º La reproducibilidad de las curvas de la dosis versus el tiempo de irradiación no es influenciada por los diferentes factores que sufren pequeños cambios durante la irradiación, como son la razón de dosis (entre 10 y 50 Mrad/h), la presión del gas en la muestra y la temperatura de irradiación;

3º La determinación de la cantidad de cambio químico, o fracción de ácido descompuesto, es simple y confiable, sin ser afectada por irradiaciones posteriores;

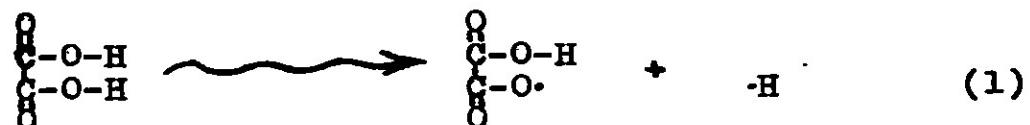
4º Los productos formados por la descomposición radiolítica no interfieren en el proceso de descomposición ni en la exactitud de la determinación del cambio químico;

5º Se puede usar ácido oxálico dihidratado de fabricación comercial, reactivo analítico, sin posterior purificación; y

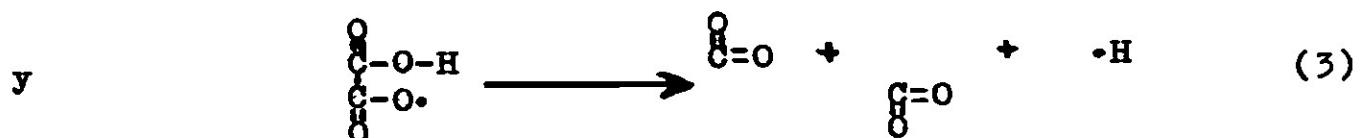
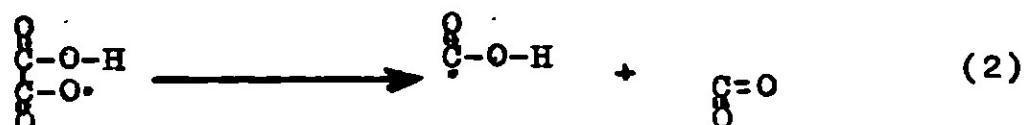
6º Ningún elemento del ácido oxálico se radiactiva por su interacción con los neutrones irradiados por el reactor.

Mecanismos de reacción posibles.

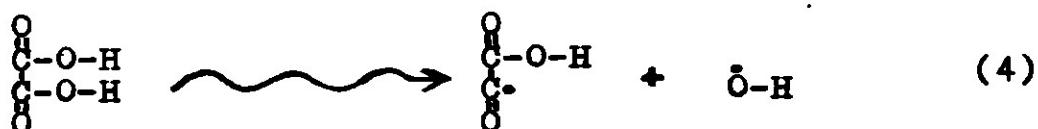
La descomposición del ácido oxálico se produce como resultado de la acción directa de la radiación ionizante sobre sus átomos. Parece ser que el primer efecto es la formación de un átomo de hidrógeno por la reacción



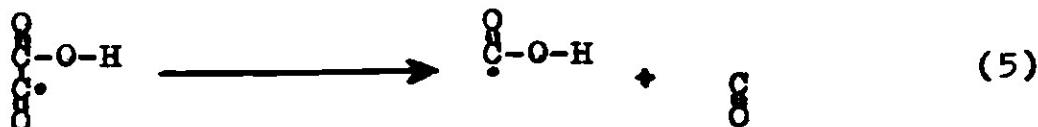
La descomposición de cada molécula de ácido oxálico es seguida por la formación de una o dos moléculas de dióxido de carbono, como consecuencia de la descomposición del nuevo radical formado, por medio de las reacciones



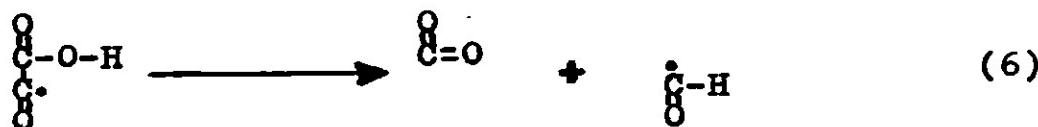
También ocurren las reacciones de descomposición



seguida por



y la reacción paralela



Eventualmente, por sustituciones sucesivas de átomos de hidrógeno en los productos de las reacciones 5 y 6, se pueden formar pequeñas cantidades de ácido glicólico ($\text{HOOC}\cdot\text{CH}_2\text{OH}$). Los átomos de hidrógeno producidos en las reacciones 1 y 3 también reaccionan con los radicales oxidrilo formados en la reacción 4, para formar moléculas de agua.

Cinética de la descomposición del ácido oxálico.

En muchos compuestos sólidos expuestos a un campo de radiación ionizante se ha observado que una pequeña descomposición radiolítica es directamente proporcional a la cantidad de sustancia presente y a la dosis absorbida⁽¹⁹⁾, es decir,

$$- dn \propto n \cdot dD \quad (1)$$

donde n es el número de moles presentes y D es la dosis absorbida por la sustancia irradiada. De aquí,

$$- dn = k \cdot n \cdot dD \quad (2)$$

Reordenando e integrando la ecuación 2,

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = -k \int_0^D dD$$

$$\ln(n/n_0) = -k \cdot D \quad (3)$$

En consecuencia,

$$k D = -\ln(n/n_0) = \ln(n_0/n) = 2.303 \log_{10}(n_0/n) \quad (4)$$

Como $n=m/M$, donde m es la masa de la muestra y M su peso molecular, entonces, de la ecuación 4,

$$D = (2.303/k) \log \left(\frac{m_0/M}{m/M} \right) = (2.303/k) \log (m_0/m) \quad (5)$$

Si se define una constante $a=2.303/k$, la ecuación 5 se puede simplificar a

$$D = a \cdot \log(m_0/m) \quad (6)$$

donde m_0 es la masa inicial de la muestra y m la masa de la muestra irradiada.

Experimentalmente se ha encontrado que la ecuación 6 es válida para un rango de 10 a 50% de descomposición radio lítica de ácido oxálico, lo que equivale a una dosis de 100 a 1000 Mrad (21,22). El valor de la constante a es específico para cada campo de radiación y debe ser calculado utilizando un dosímetro primario, de geometría similar al recipiente dosimétrico usado y en las mismas condiciones de operación del reactor, aunque para estimar su magnitud en forma aproximada, se puede usar un irradiador gamma de ^{60}Co , calibrado previamente.

C A P I T U L O V

PARTE EXPERIMENTAL

5.1) METODO EXPERIMENTAL.

Como se vió en el capítulo anterior, la radiólisis del ácido oxálico, por el efecto de la interacción de la radiación ionizante, origina principalmente CO_2 y H_2O , además de una pequeña cantidad de CO y de ácido glicólico. Los productos gaseosos se pueden expulsar por calentamiento del ácido oxálico irradiado. El ácido glicólico también se elimina por calentamiento, ya que a la temperatura de 80 °C se descompone en productos gaseosos que se expulsan junto con los demás gases producidos directamente. El efecto observado es la disminución de la masa del ácido oxálico irradiado. En el presente trabajo se utiliza la medida de dicha pérdida de masa para determinar, por medio de la ecuación 6 (p. 53), la dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos en el núcleo del reactor TRIGA-Mark III del Centro Nuclear de México (sección 2.22), durante su operación a 1 Mw de potencia.

5.11) Material y equipo.

La dosis de radiación se midió utilizando cristales de ácido oxálico dihidratado ($\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), reactivo analítico marca Baker, de 99.8% de pureza. El ácido oxálico se almacenó previamente en un desecador para evitar que los cristales se humedecieran. Las muestras de ácido oxálico dihidratado

se irradiaron durante períodos que fluctúan entre 2 y 10 h, con un flujo de neutrones del orden de 10^{13} n/cm²s. La determinación de la masa inicial y final de las muestras de ácido oxálico se realizó en una balanza analítica marca SARTORIUS-WERKE AG. modelo 2604.

5.12) Preparación de los dosímetros de ácido oxálico.

Se utilizaron muestras de 0.15-0.25 g de ácido oxálico dihidratado para determinar la dosis de radiación en las posiciones del núcleo del reactor denominadas "tubo seco" y "SIFCA" y en el espacio adyacente al tubo seco donde se usó el calorímetro. Como el interior del tubo seco contiene aire y las demás posiciones de irradiación contienen agua, hubo la necesidad de colocar las muestras en forma diferente, como se indica a continuación:

i) tubo seco. Para determinar la dosis de radiación en el tubo seco, cada muestra de ácido oxálico se irradió dentro de una botella de cuarzo de 3.5 cm de longitud y 0.4 cm de diámetro (figura 8). La botella de cuarzo se colocó en el centro de una cápsula de irradiación de polietileno, de 2 cm de diámetro y 5.5 cm de largo, y se fijó por medio de un anillo de polietileno. La cápsula de polietileno se colocó dentro de una cápsula de irradiación de aluminio, de 2.4 cm de diámetro interior y 13.6 cm de largo. En esta última cápsula se acoplaron dos anillos de polietileno para que no se pudiera mover lateralmente dentro del tubo seco. Todos los

anillos de polietileno se colocaron de tal forma, que no obs taculizaran el flujo de neutrones rápidos en la dirección ra dial de la muestra dosimétrica.

ii) SIFCA y espacio adyacente al tubo seco. Para determinar la dosis en estas posiciones de irradiación, cada muestra de ácido oxálico se irradió en un vaso de cuarzo de 0.8 cm de diámetro interior y 2 cm de longitud, como el que se muestra en la figura 9. El vaso de cuarzo se cerró con una tapa de polietileno y, dentro de una bolsa de polietileno delgada, se colocó en el interior de una cápsula de irradiación, tam bién de polietileno, de 1.4 cm de diámetro interior y 5.5 cm de longitud. La cápsula de polietileno se selló para evitar que el agua se infiltrara y se colocó en una cápsula de irra diación de aluminio, de 2.4 cm de diámetro y 14 cm de longi tud.

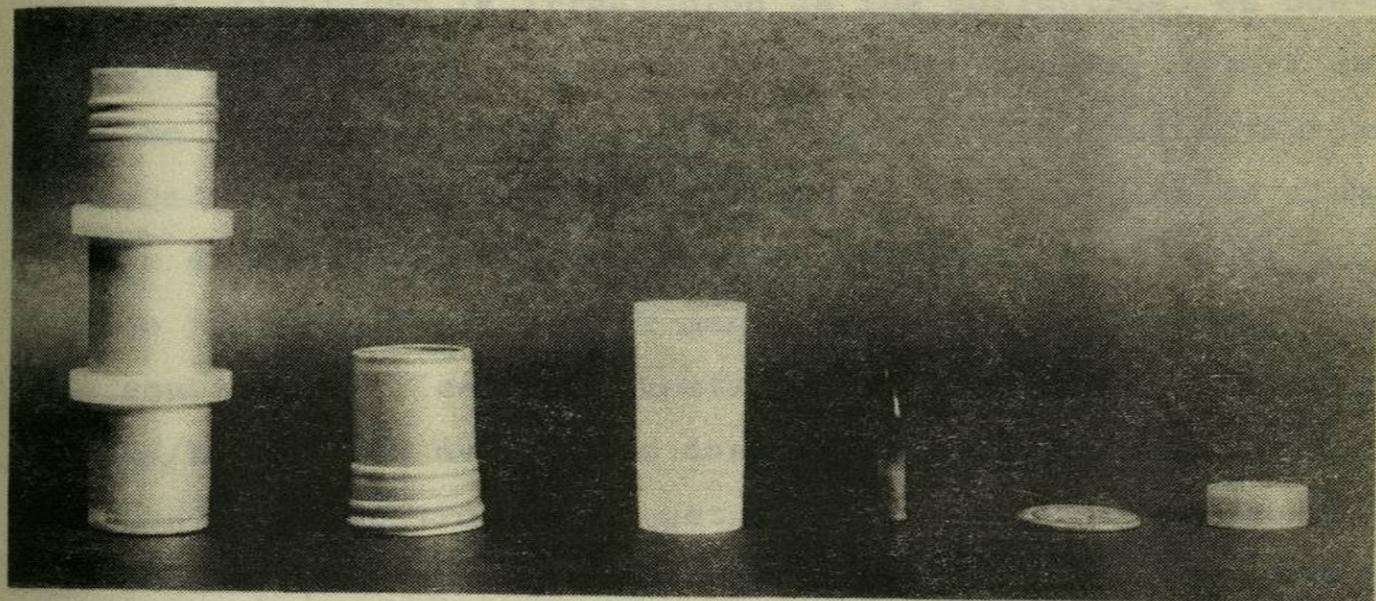


Figura 8. Cápsulas de irradiación y botella de cuarzo usadas en el tubo seco del núcleo del reactor TRIGA- Mark III, en comparación con una moneda de cincuenta centavos.

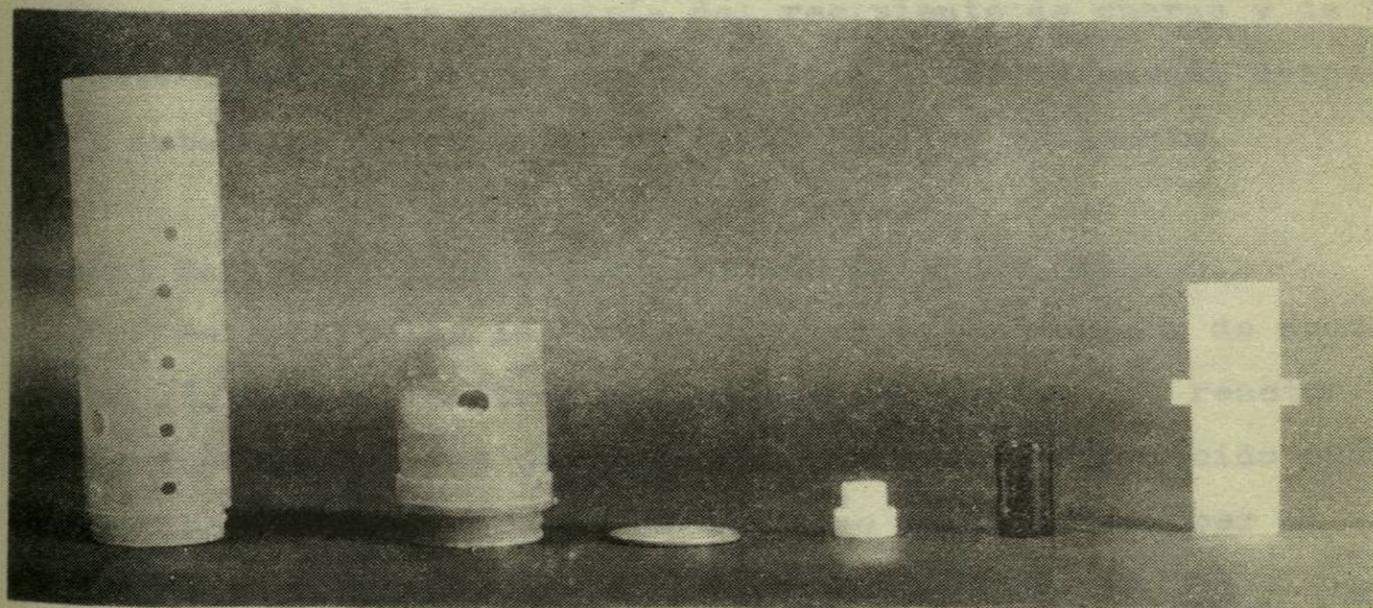


Figura 9. Cápsula de irradiación y vaso de cuarzo usado en el SIFCA del núcleo del reactor TRIGA-Mark III, en la misma escala que la figura anterior.

5.13) Tratamiento del ácido oxálico irradiado.

Al finalizar la irradiación de los dosímetros, es conveniente dejarlos uno o dos días dentro del reactor, fuera del núcleo o con el reactor apagado, para que la radiactividad inducida por los neutrones térmicos en las cápsulas de aluminio o en las impurezas del cuarzo y del polietileno disminuya lo suficiente para poder manipular el dosímetro sin riesgo considerable, esto es, hasta una razón de dosis del orden de mR/h . Después de que los dosímetros se sacan del reactor, se mantienen dentro de una estufa a una temperatura constante de 80°C , hasta asegurarse que los productos de la descomposición radiolítica son completamente expulsados. Este tratamiento requiere de períodos comprendidos entre 4 y 72 h, dependiendo de la geometría del recipiente de cuarzo y de la dosis absorbida por el ácido oxálico. Inmediatamente después se determina la cantidad de ácido oxálico remanente.

5.2) CALIBRACION DE LOS DOSIMETROS DE ACIDO OXALICO.

Para calcular la dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos en las tres posiciones del núcleo del reactor de terminadas, una vez que se conoce la cantidad de ácido oxálico descompuesta en cada posición, se requiere conocer el valor de la constante a de la ecuación 6 (página 53). Para evaluar en forma aproximada la magnitud de esta constante se utilizó un irradiador gamma de ^{60}Co . Dicho valor permitió conocer el orden de la magnitud de la dosis de radiación, para

facilitar los cálculos de las mediciones efectuadas con el calorímetro isotérmico que se mencionó anteriormente. A su vez, por medio de los resultados obtenidos con el calorímetro, se calculó un valor más exacto de la constante a.

Se utilizó el irradiador gamma de ^{60}Co , del Departamento de Fuentes Intensas de Radiación del mismo instituto, denominado Gammacell 220. El Gammacell 220 emite fotones gamma de 1.17 y 1.33 MeV. Fue fabricado por la compañía Atomic Energy of Canada, Ltd. para efectuar irradiaciones en forma segura. El ^{60}Co se encuentra en forma de pequeños cilindros, doblemente encapsulados, colocados en tubos de acero inoxidable. Dichos tubos están distribuidos alrededor de un anillo circular. La cámara de irradiación está constituida por un cilindro metálico hueco, de 20.47 cm de altura y 15.49 cm de diámetro interior, colocado en la parte superior de un émbolo vertical. Para bajar la cámara de irradiación a la posición en donde se encuentran las barras de ^{60}Co , o subirla a la posición en donde se pueden introducir o sacar las muestras, se acciona el émbolo por medio de mecanismos automáticos o manuales. La actividad total de la fuente anular fue de 11.84 KCi en septiembre de 1974 y la razón de exposición fue del orden de 10^6 R/h, según los datos del fabricante⁽²⁶⁾. En la actualidad esta fuente tiene una actividad de 6.4 KCi y una razón de dosis del orden de 10 Krad/min, en el centro de la cámara de irradiación; esta razón de dosis fue determinada

utilizando el dosímetro químico de Fricke⁽²⁷⁾ y un dosímetro de Fricke modificado⁽²⁸⁾.

En el centro de la cámara de irradiación del Gammacell 220 se irradiaron muestras de 150 a 200 mg de ácido oxálico dihidratado en tubos de ensaye de vidrio Pyrex, de diámetro semejante a los recipientes de cuarzo utilizados en el reactor. Dichas irradiaciones se efectuaron durante períodos de 5 a 7 días consecutivos. Las muestras irradiadas se calentaron en forma similar a la descrita en la sección 5.13 y, posteriormente, se determinaron las masas de las muestras de ácido oxálico remanentes.

Para los dosímetros de ácido oxálico dihidratado empleados en el Gammacell 220, el valor de la constante a de la ecuación 6 (p. 53), a la que se le denominará a_g , se calculó por la relación $a_g = D_g / \log(m_0/m)$ (6a) donde D_g es la dosis de radiación gamma que absorbió la muestra de ácido oxálico durante el tiempo que se expuso a dicha radiación, en el centro de la cámara de irradiación del Gammacell 220, y m_0 y m son las masas inicial y final del ácido oxálico dihidratado. En esta forma se calculó el valor de a_g para 15 muestras de ácido oxálico.

Para los n valores de a_g encontrados se calculó su desviación estadística por medio de la ecuación

$$d.e. = \sqrt{\frac{\sum_{n=1}^n (a_{g,n} - \bar{a}_g)^2}{n-1}} \quad (7)$$

donde $d.e.$ es la desviación estadística del número n de

valores de a_y utilizados y \bar{a}_y es el valor promedio de a_y , igual a $(1/n) \sum_{n=1}^n a_{yn}$.

En consecuencia, el valor de a_y será igual a

$$a_y = \bar{a}_y \pm d.e. \quad (8)$$

Utilizando las ecuaciones 6a, 7 y 8, el valor de a_y en contrado fué de $(2.49 \pm 0.18) \times 10^3$ Mrad.

C A P I T U L O VI

RESULTADOS Y CONCLUSIONES

Con el calorímetro isotérmico que se usó en el espacio adyacente al tubo seco (figura 5, p. 40) se obtuvo, en promedio, una razón de dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos de 45.9 ± 2.3 Mrad/h (25). Cada resultado de la medición de la razón de dosis fué un poco diferente debido, principalmente, a la "historia de operación" del reactor, es decir, al tiempo que permaneció funcionando antes de efectuar dicha medición y al período transcurrido entre las últimas veces que estuvo en operación, ya que el consumo de los elementos combustibles, la formación de venenos nucleares y la radiactivación de los materiales constituyentes del núcleo del reactor alteran el campo de radiación que se mide.

Los resultados obtenidos con el dosímetro de ácido oxálico dihidratado en el núcleo del reactor TRIGA-Mark III se presentan en la figura 10, en forma de una gráfica del logaritmo de la razón de las masas inicial y final del ácido oxálico, $\log(m_0/m)$, contra el tiempo de irradiación del mismo.

La razón de dosis, \dot{D} , se obtiene de la ecuación 6 (p.53) dividiendo la dosis entre el tiempo de irradiación, entonces,

$$\dot{D} = D/t_i = (a/t_i) \log(m_0/m) \quad (9)$$

Esta ecuación también se puede escribir como

$$a = \dot{D} [t_i / \log(m_0/m)] \quad (9a)$$

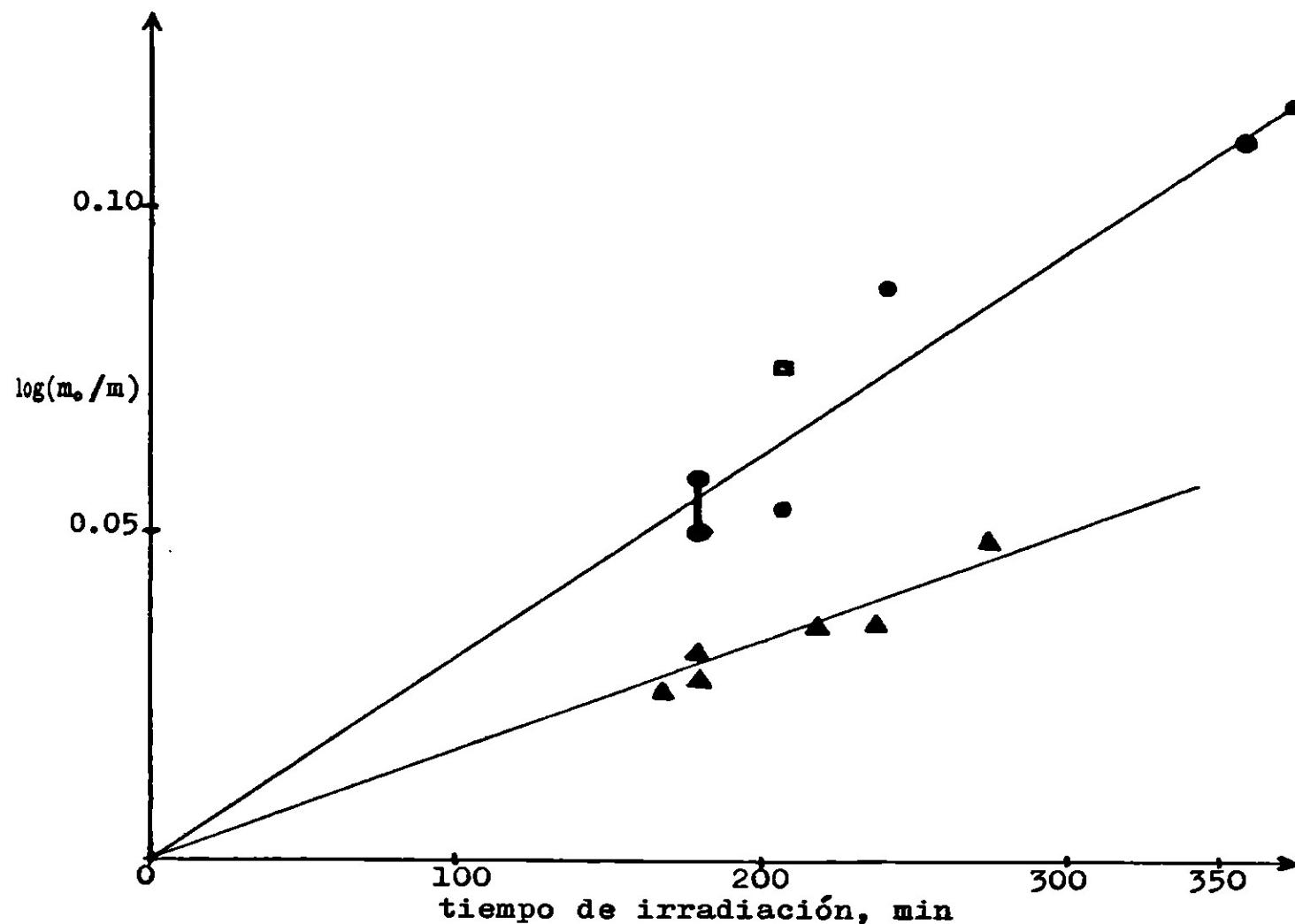


Figura 10. Descomposición del ácido oxálico dihidratado en el núcleo del reactor TRIGA-Mark III.

En el eje de las ordenadas, m_0 y m son las masas inicial y final del ácido oxálico dihidratado irradiado.

▲ SIFCA

● Tubo seco

■ Espacio adyacente al tubo seco, donde también se usó el calorímetro.

En consecuencia, si se conoce la razón de dosis por los resultados de las mediciones calorimétricas, para conocer el valor de \underline{a} es necesario determinar el valor de $t_i/\log(m_e/m)$ y sustituirlo en la ecuación 9a. De los resultados de las mediciones con el dosímetro de ácido oxálico dihidratado en la posición donde se usó el calorímetro y en el tubo seco, se obtuvo un valor promedio de $t_i/\log(m_e/m)$ igual a 54.6 ± 6.1 h; si este valor se sustituye en la ecuación 9a se obtiene

$$\begin{aligned}\underline{a} &= \bar{D} \left[t_i/\log(m_e/m) \right] \\ &= (45.9 \pm 2.3 \text{ Mrad/h})(54.6 \pm 6.1 \text{ h}) \\ &= (2.50 \pm 0.21) \times 10^3 \text{ Mrad}\end{aligned}$$

La concordancia del valor de $\underline{a} = (2.50 \pm 0.21) \times 10^3$ Mrad con el valor de $a_\gamma = (2.49 \pm 0.18) \times 10^3$ Mrad probablemente es accidental y tal vez indique que, en el campo de radiación del reactor, la radiación gamma es la radiación que principalmente contribuye en la dosis absorbida por el ácido oxálico.

Los valores de las constantes \underline{a} y a_γ que se encontraron en el presente trabajo están en el rango de los valores que se han reportado en la literatura para reactores nucleares y unidades de irradiación gamma de ^{60}Co similares. Por ejemplo, en la referencia 20 se presentan los valores de la constante \underline{a} que se calcularon en distintas posiciones del núcleo del reactor RA de Vinca, Yugoslavia, durante su operación con potencia constante entre 1 y 5 Mw, utilizando diferentes períodos de irradiación de muestras de ácido oxálico dihidratado y anhidro. Se encontró que el valor promedio de \underline{a} varió desde

$(1.93 \pm 0.11) \times 10^3$ Mrad hasta $(2.40 \pm 0.27) \times 10^3$ Mrad y se comparó con el valor de $(2.84 \pm 0.19) \times 10^3$ Mrad reportado para el núcleo del reactor ISIS de Saclay, Francia.

Cálculo de la razón de dosis en el SIFCA.

La razón de dosis de radiación gamma en el SIFCA se calculó utilizando el valor promedio de $(1/t_i) \cdot \log(m_e/m)$ igual a $(9.87 \pm 0.78) \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$ que se encontró experimentalmente en esta posición con el dosímetro de ácido oxálico dihidratado y el valor de la constante a calculado anteriormente. Sustituyendo dichos valores en la ecuación 9 se obtiene

$$\begin{aligned} D &= a (1/t_i) \log(m_e/m) \\ &= (2.50 \pm 0.21) \times 10^3 \text{ Mrad} \times (9.87 \pm 0.78) \times 10^{-3} \text{ h}^{-1} \\ &= 24.67 \pm 3.29 \text{ Mrad/h} \end{aligned}$$

Esta razón de dosis es mucho menor que la que se encontró en el tubo seco, esto se debe a la gran moderación de la intensidad de la radiación por los elementos de grafito y por las paredes de aluminio que existen entre los elementos combustible-moderador del núcleo y el SIFCA, como se mostró en la figura 5 de la página 40.

Observaciones sobre las muestras irradiadas.

- Las muestras de ácido oxálico irradiadas mostraron fluorescencia al exponerse a la luz ultravioleta; ésta permaneció aún después de disolver las muestras en agua.
- Se observó que el rendimiento químico de la radiólisis,

o valor G_e *, disminuye un poco con el aumento de la dosis absorbida por el ácido oxálico. Por ejemplo, cuando los dosímetros se irradiaron en el Gammacell 220, con dosis totales entre 60 y 100 Mrad, por cada 100 eV de energía absorbida por el dosímetro se disociaron, en promedio, 6.92 ± 0.38 moléculas de ácido oxálico dihidratado; esto se representa como G_e (-ácido oxálico dihidratado)= 6.92 ± 0.38 . En las irradiaciones efectuadas en el SIFCA, con dosis totales de 65 a 125 Mrad, el valor promedio de G_e fué de 6.77 ± 0.05 . Las irradiaciones que se efectuaron en el tubo seco, con dosis totales de 125 a 220 Mrad, dieron un valor promedio de G_e igual a 6.51 ± 0.15 y, en esta misma posición, con una dosis de 275 Mrad G_e resultó de 6.22 y con una dosis de 300 Mrad el valor de G_e fué de 6.13.

La disminución del valor G_e con el aumento de la dosis tal vez se debe a que la radiación gamma también produce la recombinación química de los fragmentos de algunas moléculas disociadas, formando compuestos químicos estables, como ocurre con muchos sólidos cristalinos, cuando se irradian en un reactor nuclear. Tal vez dicho efecto también tenga relación con la pequeña diferencia del diámetro de los distintos recipientes dosimétricos utilizados en cada lugar, ya que en algunas de las irradiaciones que se efectuaron en el tubo seco con dosis totales entre 500 y 600 Mrad se observó un agluti-

*El valor G_e o índice del rendimiento químico de la radiólisis, para cada especie química determinada, expresa el número de moléculas de dicha especie que inicialmente se forman o se destruyen por cada 100 eV de la energía que absorbe de la radiación ionizante.

namiento del ácido oxálico remanente y no se pudo evaluar G_e .

Los valores G_e mencionados anteriormente están en concordancia con los que se han reportado en la literatura^(19,20), que varían entre 5.1 y 8.3, y básicamente dependen de las características del campo de radiación y de la dosis absorbida.

Para concluir, es conveniente hacer notar que tanto los dosímetros químicos como los calorímetros, presentan algunas limitaciones y desventajas. Los dos dosímetros tienen la desventaja de que no son suficientemente sensibles para todos los propósitos, además de que durante su irradiación ocurren ciertos procesos que pueden originar pérdidas en la energía que debería ser medida por el sistema dosimétrico. Los principales procesos que pueden alterar los resultados de la medición de la dosis son: la dispersión de la radiación hacia afuera del sistema dosimétrico, las reacciones fotonucleares que provocan la emisión de neutrones rápidos, la producción de radiación de bremsstrahlung* y las reacciones químicas, exotérmicas o endotérmicas, que se producen en las cercanías del dosímetro. El grado en que estos eventos pueden influir en las mediciones depende de la dosis total medida y del tiempo que dure el dosímetro dentro del reactor.

En base a los resultados obtenidos en el presente trabajo, en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, o ININ, actualmente se comienzan a usar estos dosímetros químicos en algunos experimentos donde se requiere conocer la dosis de radiación gamma y de neutrones rápidos, en el núcleo

*Ver el apéndice B.

del reactor TRIGA-Mark III, para determinar los efectos producidos por estas radiaciones en las muestras de estudio, en especial cuando se requiere conocer la dosis absorbida durante períodos de irradiación relativamente largos, debido a la posible fluctuación de la potencia del reactor. También se sugiere su uso para medir la dosis de radiación gamma de la planta de irradiación que está por concluirse, en el mismo instituto, ya que estos dosímetros presentaron muy buen comportamiento para dosis de 60 a 275 Mrad, son mucho más sencillos de manejar y ofrecen menos limitaciones que los dosímetros absolutos.

A P E N D I C E A

UNIDADES Y FACTORES DE CONVERSIÓN

De acuerdo con la Comisión Internacional de Unidades Radiológicas y Medidas, ICRU, actualmente se utilizan las unidades siguientes⁽⁶⁾:

Roentgen (R). El roentgen, o nombre que se le da al rengenio en la nomenclatura internacional, es una unidad de exposición que indica la cantidad de radiación que produce un número de iones tal, que la suma de su carga eléctrica es de 2.58×10^{-4} coulomb/Kg de aire; esta carga eléctrica es idéntica a 1 e.s.u., lo que equivale a la formación de 2.08×10^9 parejas de iones por cada cm^3 de aire seco*, a temperatura y presión estandar. Es decir, cada roentgen de radiación le suministra 86.9 erg de energía a 1 g de aire.

Rad. Un rad es la dosis de cualquier radiación ionizante que le suministra 100 erg de energía a cada gramo de material irradiado. Esta unidad sirve para cuantificar la cantidad de energía que absorbe un medio de interés.

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ erg/g} = 0.01 \text{ joule/Kg} = 1.15 \text{ R*}$$

Eficiencia Biológica Relativa (en inglés, Relative Biologic Efficacy or RBE). La eficiencia biológica relativa es la dosis absorbida en rayos X de 250 KeV que produce el mismo efecto que un rad de cualquier otro tipo de radiación ionizante.

*Calculado para rayos X y gamma de 3 MeV, con una energía de ionización promedio de 33.7 eV/par de iones formados.

Rem. El rem es la unidad de dosis que se utiliza para medir los efectos biológicos de las radiaciones, es decir, es un equivalente humano del roentgen.

RBE (en rem) = Dosis (en rad) \times RBE (factor de conversión).

Becquerel (Bq). El becquerel, o bequerelio, es la unidad que se utiliza actualmente para indicar la actividad de un nucleido radiactivo y equivale a una desintegración por segundo.

Curie (Ci). El curie es una unidad de actividad equivalente a 3.7×10^{10} desintegraciones/s.

Electrón-voltio (eV). Un electrón-voltio es la cantidad de energía cinética que adquiere un electrón al atravesar, en el vacío, una diferencia de potencial de un voltio. Esta energía equivale a 1.60219×10^{-19} joule.

A continuación se indican algunas equivalencias entre las unidades de energía utilizadas en el presente trabajo:

1 joule (J) = 0.239 cal = 1×10^7 erg = 6.242×10^{12} MeV

1 uma = 1.6604×10^{-27} Kg = 931.048 MeV = 1.492×10^{-10} J

A P E N D I C E B

CONCEPTOS BASICOS EMPLEADOS

Sección eficaz de interacción.

La sección eficaz es el área efectiva que ofrece un núcleo para la absorción de una partícula incidente o para la desviación de su dirección. Generalmente la sección eficaz no coincide con la sección geométrica del núcleo blanco y es función de la energía de la partícula incidente. Esta sección eficaz también se conoce como "sección eficaz microscópica" (σ) y se expresa en barn ($1 \text{ barn} = 1 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$).

La sección eficaz macroscópica (Σ) es la suma de las secciones eficaces microscópicas de los núcleos de todos los átomos presentes en una unidad de volumen. Es decir, $\Sigma = \sigma N$, donde N es el número de átomos por unidad de volumen y σ es la sección eficaz microscópica de cada núcleo. Usualmente su unidad es el cm^{-1} .

La sección eficaz total es la suma de las secciones eficaces correspondientes a las interacciones de un núcleo con todas las partículas incidentes.

El concepto de sección eficaz es muy útil en Física e Ingeniería Nuclear, ya que permite evaluar la probabilidad de que ocurra una reacción nuclear o una interacción entre una partícula o fotón con un núcleo u otra partícula.

Transferencia Lineal de Energía (en inglés, Linear Energy Transfer or LET).

El coeficiente de transferencia lineal de energía (L) de las partículas cargadas que atraviesan un medio, es igual al cociente de ΔE_L sobre Δx , donde ΔE_L es la cantidad de energía promedio impartida localmente al medio por una partícula de energía específica, al atravesar una distancia Δx ; esto es, $L = \Delta E_L / \Delta x$. Este coeficiente es una medida de la profundidad de penetración de una radiación dada en un medio y depende de la densidad del medio y del tipo, y energía, de la radiación incidente.

Bremsstrahlung.

Cuando una partícula cargada viaja con una velocidad alta y sufre una desceleración rápida, se producen fotones X denominados "radiación de Bremsstrahlung". Por ejemplo, cuando una partícula beta pasa cerca de un núcleo pesado, las fuerzas atractivas de Coulomb le producen una desviación brusca de su trayectoria original, causandole una desceleración muy rápida que origina radiación de bremsstrahlung. En consecuencia, la partícula beta pierde energía, por la emisión de dicha radiación, con una velocidad proporcional al cuadrado de su desceleración. A su vez, la radiación producida puede poseer una energía mayor que la necesaria para crear un par electrón-positrón. El positrón producido puede aniquilarse con otro electrón del medio y producir dos fotones más. Así, si la energía cinética de una partícula beta es muy elevada, se puede originar una cascada de electrones⁽²⁹⁾.

R E F E R E N C I A S

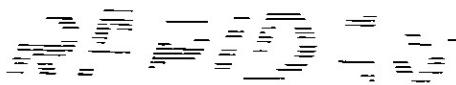
1. Draganič, I.G., Holm, N.W. and Manl, J.E., Laboratory Manual for Some High Level Chemical Dosimeters, Risø Report No. 22, July 1961.
2. Draganič, I.G., Oxalic Acid, The Only Aqueous Dosimeter for In-Pile Use, Nucleonics, 21, 33 (1963).
3. Friedlander, G., Kennedy, J.W. and Miller, J.M., Nuclear and Radiochemistry, 2^a ed., John Wiley & Sons, Inc., Tokyo, Japan, 1964.
4. Alonso, M. y Finn, E.J., Física, vol. III, Fondo Educativo Interamericano, S.A., Mexico, 1977.
5. Sociedad Mexicana de Física, Programa del XXI Congreso Nacional de Investigación en Física, Boletín No. 3, p. 121, 1978.
6. Safety Series No. 38, Radiation Protection Procedures, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1973.
7. Shaeffer, N.M., Reactor Shielding for Nuclear Engineers, U.S. Atomic Energy Commission, Office of Information Services, 1974.
8. Technical Reports Series No. 127, Determination of Absorbed Dose in Reactors, I.A.E.A., Vienna, 1971.
9. Alonso Santos, A. et. al., Léxico de Términos Nucleares, Sección de Publicaciones de la Junta de Energía Nuclear, Madrid, 1973.
10. Stöcklin, G., Chimie des Atomes Chauds, édition française révisée et complétée par J.P. Adloff d'après l'édition allemande "Chemie heißer Atome", Masson et Cie, Paris, 1972.
11. Lamarsh, J.R., Introduction to Nuclear Reactor Theory, Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
12. Tanarro Sanz, Instrumentación Nuclear, Junta de Energía Nuclear, Madrid, 1970.
13. Revista Mexicana de Física, Suplemento del Reactor, 19, 1970.
14. TRIGA-Mark III Reactor Mechanical Maintenance and Operating Manual for Comisión Nacional de Energía Nuclear de México, Gulf General Atomic Incorporated, 1968.

15. Jimenez Rojas, Mardonio, "Diseño de un sistema de alta resolución para radiografía con neutrones", Tesis de Licenciatura en Física, Facultad de Ciencias, UNAM, 1973, p. 41.
16. Spinks, J.W.T. and Woods, R.J., An Introduction to Radiation Chemistry, 2^a ed., John Wiley & Sons, Inc., 1976.
17. Attix, F.H. and Roesch, W.C., eds., Radiation Dosimetry, vol. 1, Academic Press, New York, 1968.
18. Attix, F.H. and Roesch, W.C., eds., in ref. 17, vol. 2, 1966.
19. Gal, O., Petković, Lj. and Draganić, I.G., "The Radiolysis of Solid Oxalic Acid and Ammonium Oxalate Induced by Mixed Pile and Co-60 Gamma Radiation", Int. J. Appl. Radiation Isotopes, 19, 645 (1968).
20. Gal, O., Baugh, P.J. and Phillips, G.O., Radiolytic Descomposition of Solid Oxalic Acid, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 22, 321 (1971).
21. Gal, O. and Draganić, I.G., Solid Oxalic Acid as a Chemical Dosimeter for Mixed Pile Radiation in Multi-megarad Range (100-1000 Mrad), Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 22, 753 (1971).
22. Gal, O. and Premović, P., Solid Dicarboxylic Acids as In-Pile Chemical Dosimeters, Int. J. Appl. Radiation Isotopes, 23, 541 (1972).
23. A Report of Measurements Made in The Greek Research Reactor-1 at Nuclear Research Center "Democritos", Athens, Greece, 3-8 July 1972.
24. Intercomparison of Dicarboxylic Acids and Ciclohexane Dosimeters and Calorimeters in The Greek Research Reactor by Radak, B.B., Gal, O.S., Marketos, D.G. and Boyd, A.W., June 1974.
25. Lugo Rivera, José Francisco, "Diseño y construcción de un calorímetro para medición de dosis en un reactor nuclear", Tesis de Licenciatura en Ingeniería Química, Universidad Autónoma de Zacatecas, junio de 1979.
26. Atomic Energy of Canada, Ltd., Instruction Manual Gammacell 220 Cobalt-60 Irradiation Unit, ed. 6, AECL, Ottawa, Canada, 1968.

27. Rodriguez S., A., Martinez P., M.E. y Nava S., J.E., "Dosimetría en la unidad Gammacell 220 (AECL) I.- Uso de la solución de Fricke", Instituto Nacional de Energía Nuclear, septiembre de 1976.
28. Zuazua G., Ma. del Pilar, "Dosimetría en la unidad Gammacell 220 (AECL) II.- Uso del dosímetro de Fricke modificado", INEN, septiembre de 1976.
29. Cember, H., Introduction to Health Physics, Pergamon Press, Great Britain, 1976.
30. Semat, H., Introduction to Atomic and Nuclear Physics, Rinehart & Company, Inc., th. ed., 1958.

Tesis por computadora
único sistema en el país

TESIS



Paseo de las Facultades Núm. 34 Locales C-D

Tels. 550-86-32 y 550-87-43

102681
1880

