

Caracterización radiológica de una instalación relevante¹

Claudia M. Barberis

Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Constituyentes, Avda. Gral Paz 1499, San Martín, Provincia de Buenos Aires (1650), República Argentina
barberis@cnea.gov.ar

Recibido el 5 de enero de 2009; aceptado el 3 de marzo de 2009

Resumen

Este trabajo tiene como objetivo la caracterización radiológica de una instalación nuclear, el reactor nuclear RA-1. Por medio de esta caracterización se podrá conocer toda la información sobre la cantidad, el tipo y la distribución de los radionucleidos presentes en la instalación; ello permitirá establecer el orden de magnitud de las actividades que estarán involucradas en la remoción de los distintos materiales, en el momento en que se decida llevar a cabo la clausura de la misma.

PALABRAS CLAVES: CARACTERIZACIÓN RADIOLÓGICA - CLAUSURA DE INSTALACIONES RELEVANTES – RADIONUCLEIDOS - INSTALACIONES NUCLEARES - INVENTARIO RADIOACTIVO

Abstract

The objective of this work is the radiological characterization of a nuclear installation, the RA1 nuclear reactor. This characterization will enable to know all the information about amount, type and distribution of the radionuclides in the installation. Thus, the order of magnitude of the activities that will be involved in the removal of the different materials, at the moment of the decommissioning, will be established.

KEYWORDS: RADIOLOGICAL CHARACTERIZATION – DECOMMISSIONING OF RELEVANT INSTALLATIONS – RADIONUCLIDES – NUCLEAR INSTALLATIONS – RADIOACTIVE INVENTORY

1 Trabajo realizado sobre la base de la tesis presentada por la autora para optar al grado de Magíster en Reactores Nucleares, bajo la dirección de M. Madariaga.

Introducción

La clausura de una instalación nuclear se puede dividir en distintas etapas:

- Caracterización
- Planificación
- Aprobación
- Ejecución

La caracterización involucra las tareas de recopilación de antecedentes, relevamiento de la instalación, conocimiento de la historia de operación, elaboración de los datos obtenidos en el relevamiento y estimación de la actividad de cada componente de la instalación. Esta última tarea se define como caracterización radiológica, la que requiere de las tareas previas mencionadas.

La etapa de planificación, como su nombre lo indica, involucra a todas las tareas de detalle de actividades a realizar, esto es, se eligen las tecnologías apropiadas de descontaminación y desmantelamiento y la forma en que se van a llevar a cabo. Una vez terminada la planificación se solicita la aprobación a la autoridad de control competente; luego de su obtención comienza la ejecución de las tareas identificadas anteriormente, es decir comienza a ponerse en práctica todo lo planificado.

Los combustibles irradiados y los fluidos del núcleo deben ser removidos luego de la parada del reactor y antes de las tareas de clausura. El tratamiento, en este caso, es diferente al de los demás componentes de la instalación, que son removidos durante la clausura.

Este trabajo está enfocado exclusivamente a la caracterización radiológica de cada uno de los componentes de la instalación del Reactor Nuclear RA-1.

Breve descripción del Reactor RA-1

El RA-1 es un reactor nuclear de experimentación, de construcción enteramente nacional, que se encuentra ubicado en el Centro Atómico Constituyentes de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). En las figuras 1 (a) y 1(b) se pueden apreciar dos vistas del mismo.



Fig. 1a. Reactor RA-1

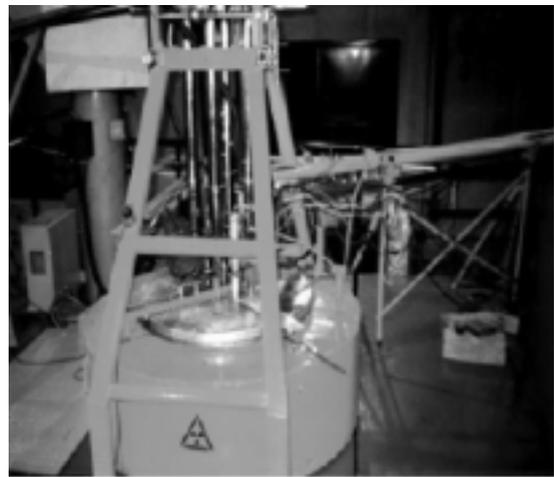


Fig. 1 b. Reactor RA-1

Este reactor fue puesto a crítico en 1958 y a la fecha sigue operativo prestando entre otros, los siguientes servicios:

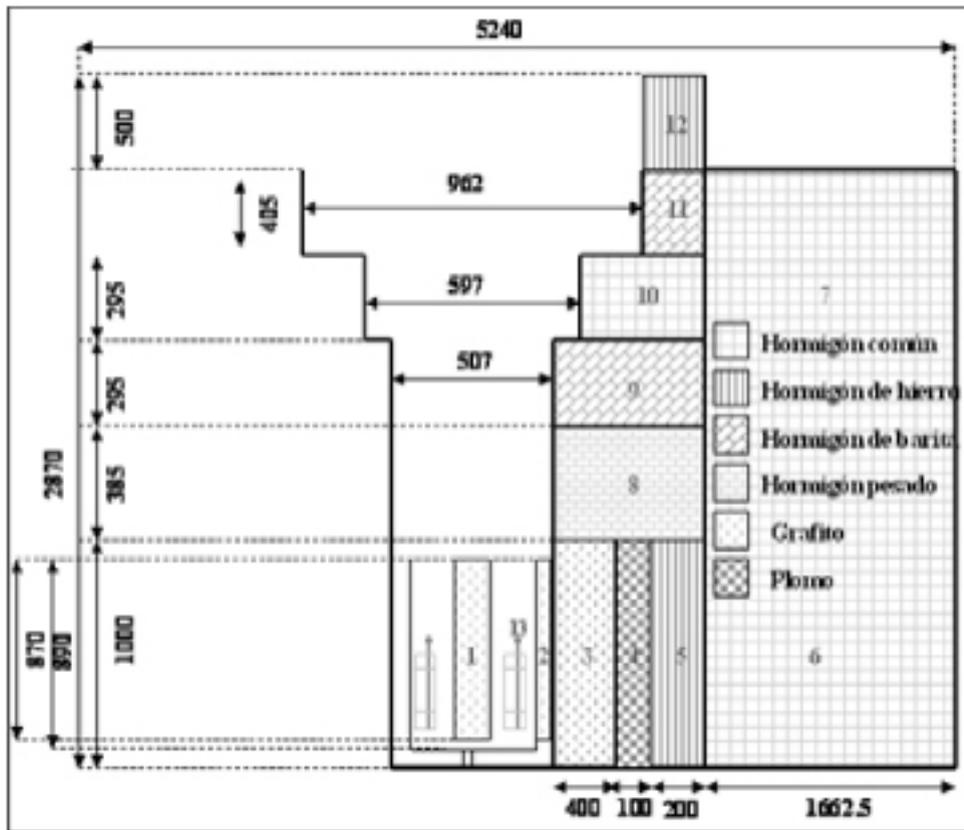
- Ensayos experimentales e irradiación de muestras para mediciones de parámetros nucleares.
- Irradiación de células en cultivos y hámster para estudios de terapia por captura neutrónica en boro (BNCT).
- Irradiaciones de muestras para determinar el daño por radiación en metales, celdas solares, cables, fibra óptica, gomas y otros materiales.
- Irradiación de cabellos y sangre para aplicaciones médicas.
- Irradiaciones diversas para determinar contenidos de impurezas en materiales y alimentos, por medio del análisis por activación.
- Actividades docentes de perfeccionamiento de profesionales y técnicos.

- Actividades de divulgación para estudios antes universitarios, terciarios y secundarios.

El moderador y refrigerante es agua liviana desmineralizada

El reactor tiene actualmente una potencia autorizada de 40 kW térmicos; es del tipo tanque abierto, con núcleo de uranio enriquecido al 19.71 % en 235U y reflector de grafito.

En la figura 2 se puede observar un corte del reactor, sus componentes, materiales y dimensiones.



1	Grafito Central
2	Grafito Interior
3	Grafito Exterior
4	Blindaje de Plomo
5	Blindaje de Hormigón de Hierro
6	Blindaje de Hormigón Común
7	Blindaje de Hormigón Común
8	Blindaje de Hormigón Pesado
9	Blindaje de Hormigón de Barita
10	Blindaje de Hormigón Común
11	Blindaje de Hormigón de Barita
12	Blindaje de Hormigón de Hierro
13	Elemento Combustible

Figura 2. Corte del Reactor Nuclear RA-1

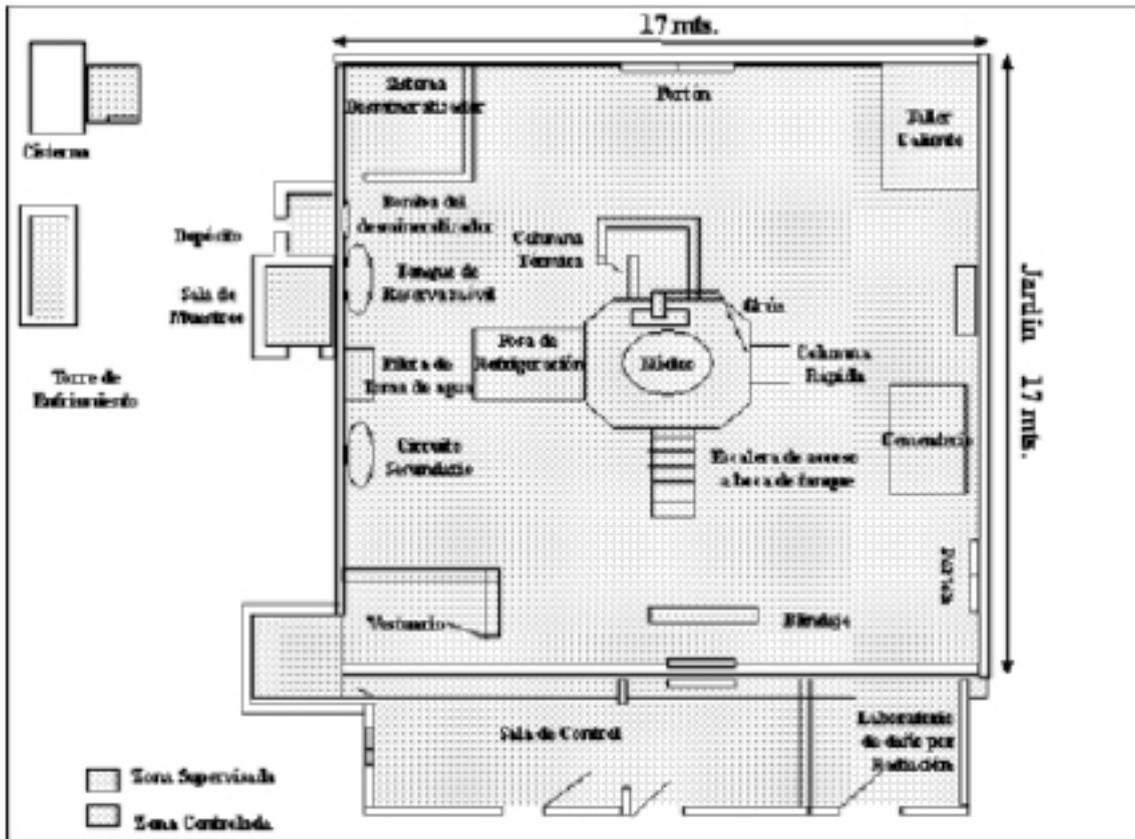


Fig. 3. Recinto del Reactor Nuclear RA-1

En la figura 3 se ve el recinto del Reactor y todos los componentes dentro del mismo.

Desarrollo

El proceso de caracterización involucró las siguientes tareas:

- Revisión de toda la información disponible de la instalación.
- Implementación de esquemas de cálculo. (Dos esquemas independientes).
- Ejecución de medidas y análisis.
- Comparación de los resultados calculados y los datos medidos.

A continuación se describe brevemente cada una de las mismas

Revisión de toda la información disponible de la instalación

El primer paso consistió en crear una base de datos con toda la información disponible del Reactor, materiales existentes, tipo de combus-

tible, historia de operación, etc. (Barberis, 2001). Dicha base de datos fue de gran utilidad para este trabajo y podrá ser utilizada además para otras gestiones concernientes a la instalación.

Implementación de Métodos de Cálculo

La metodología de cálculo utilizada para la caracterización radiológica del Reactor RA-1, se basó en un primer esquema, en el uso de ciertos códigos que se encuentran disponibles dentro de un paquete denominado MTR_PC desarrollado por INVAP S.E (1995), empresa rionegrina asociada a la Comisión Nacional de Energía Atómica.

Estos códigos son: WIMS (Halsall, 1980); CITVAP (Villarino y Lecot, 1995); ANISN (Oak Ridge National Laboratory, 1973) y ORIGEN-2 (Oak Ridge National Laboratory, 1980).

Los códigos WIMS, CITVAP y ANISN se utilizaron para determinar un mapa de flujo neutrónico

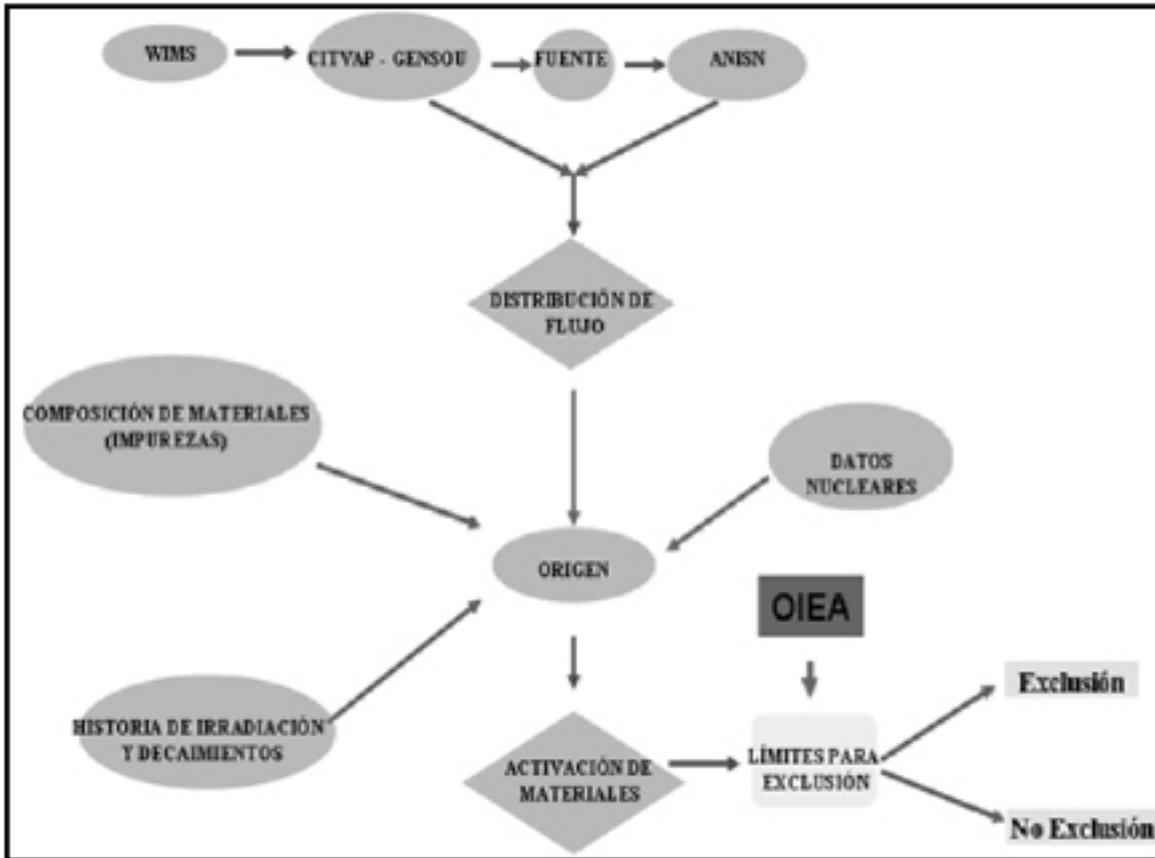


Figura 4. Primer Esquema de Cálculo

dentro de la instalación.

El código ORIGEN se usó para simular la irradiación de cada grupo de materiales y componentes, utilizando el valor de flujo neutrónico previamente calculado. Con ello se obtuvo una estimación del inventario radiactivo; adicionalmente se clasificó a cada grupo o componente dentro de las categorías de excluidos o no de los controles regulatorios. Se adoptaron para ello criterios del Organismo Internacional de Energía Atómica (International Atomic Energy Agency, 1996 y 2004).

En la figura 4 se puede ver el primer esquema de cálculo.

Como complemento de este esquema se realizó un segundo esquema de cálculo, con base en el uso del código MCNP (Los Alamos National Laboratory, 2005).

El objeto del esquema con MCNP fue validar los resultados generados con el primer esquema. Para ello se elaboró un modelo detallado

de la instalación (3 D), pero solamente se hicieron cálculos con MCNP en algunos puntos del blindaje hacia adentro, es decir, no se obtuvo la distribución de flujo fuera del blindaje del reactor. Esto se implementó de esta forma porque al no utilizar técnicas sofisticadas los cálculos en zonas muy alejadas podrían llevar mucho tiempo de cálculo. En particular, con MCNP se calculó usando el detector puntual y la malla de puntos.

En la figura 5 se puede ver el segundo esquema de cálculo.

En la tabla 1 se observa la comparación de los resultados obtenidos con ambos esquemas.

Ejecución de medidas y análisis

Paralelamente al cálculo se adquirieron datos experimentales dentro de algunas de las facilidades, midiendo con diferentes métodos e instrumentos. Esta tarea estuvo a cargo del sector responsable de mediciones de Física de Reactores.

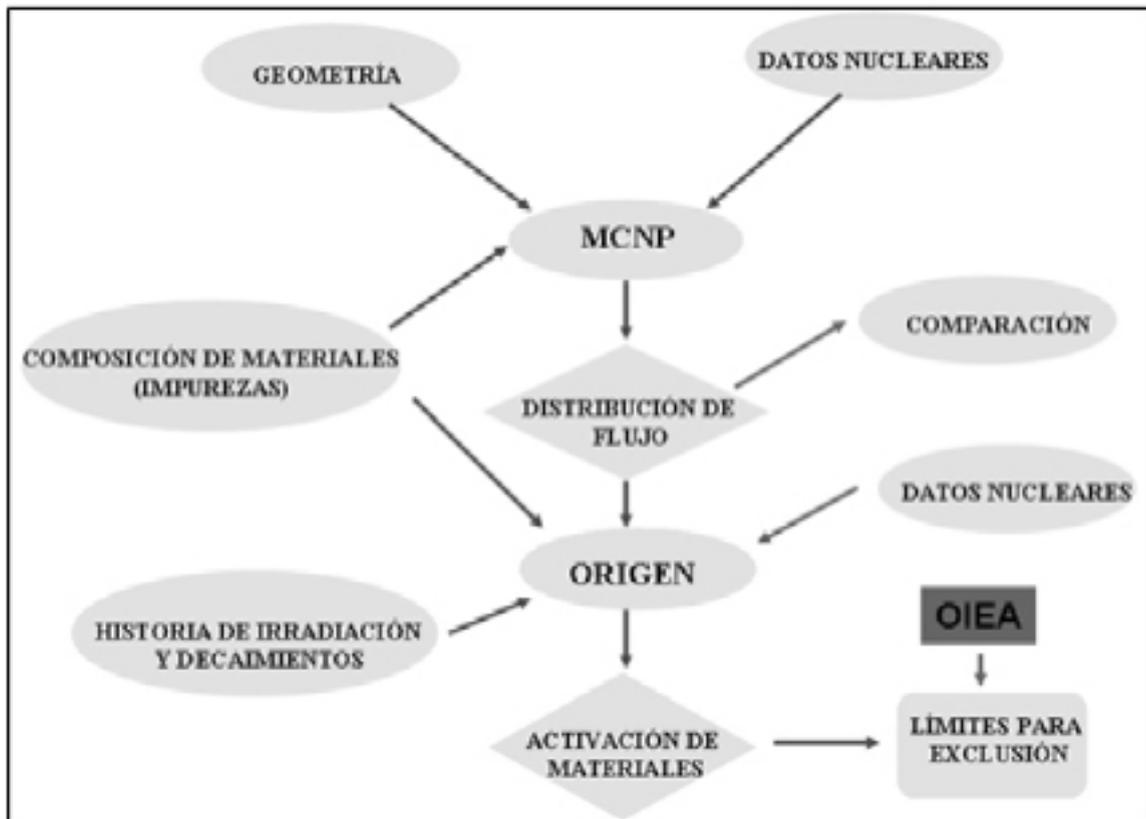


Figura 5. Segundo Esquema de Cálculo

Identificación	Flujo Neutrónico Térmico (0eV<E<0.4eV) Esquema Sencillo	Flujo Neutrónico Térmico (0eV<E<0.4eV) (MCNP, Detector Puntual)	Flujo Neutrónico Térmico (0eV<E<0.4eV) (MCNP, malla de puntos)
Grafito Central	7.67E+11	-----	(7.54±0.04)E+11
Tanque Separador	6.29E+11	(8.40±0.01)E+11	-----
Tanque del Reactor	8.67E+10	(6.72±0.06)E+10	-----
Tanque del Reactor	5.70E+11	(2.23±0.04)E+11	-----
Grafito Interior	6.10E+11	-----	(6.35±0.04)E+11
Grafito Exterior	2.64E+11	(1.86±0.04)E+11	-----
Blindaje de Plomo	5.28E+10	(2.11±0.08)E+10	-----
Bloque de Hormigón Pesado	3.83E+08	(4.2±0.33)E+09	-----
Grafito Columna Térmica	8.33E+10	(4.83±0.28)E+10	(4.22±0.08)E+10
Plomo de la Columna Térmica	9.67E+08	(7.35±0.88)E+08	-----

Tabla 1. Flujo Neutrónico Térmico obtenido con ambos esquemas

Ubicación	Medida experimental detector de Rodio	Modelo MCNP
Reflector central 0eV<E<0.4eV Aire	$\phi^{(RC)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (6.8 \pm 0.7) \cdot 10^{11}$	$\phi^{(RC)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (7.4 \pm 0.1) \cdot 10^{11}$
Reflector interior 0eV<E<0.4eV Aire	$\phi^{(RI)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (5.6 \pm 0.6) \cdot 10^{11}$	$\phi^{(RI)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (6.4 \pm 0.1) \cdot 10^{11}$

Tabla 2a. Comparación de los resultados experimentales obtenidos con un detector de rodio y los obtenidos con el cálculo con MCNP

Ubicación	Medida experimental Hojuelas	Modelo MCNP
Reflector central 0eV<E<0.1eV Aire	$\phi^{(RC)} (Z=43.4 \text{ cm}) = (6.3 \pm 0.6) \cdot 10^{11}$ $\phi^{(RC)} (Z=63.4 \text{ cm}) = (5.9 \pm 0.6) \cdot 10^{11}$	$\phi^{(RC)} (Z=43.4 \text{ cm}) = (7.2 \pm 0.1) \cdot 10^{11}$ $\phi^{(RC)} (Z=63.4 \text{ cm}) = (6.6 \pm 0.09) \cdot 10^{11}$
Núcleo 0eV<E<0.1eV Agua	$\phi^{(COM)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (1.22 \pm 0.2) \cdot 10^{12}$	$\phi^{(COM)} (Z=53.4 \text{ cm}) = (1.25 \pm 0.03) \cdot 10^{12}$
Columna térmica 0eV<E<0.1eV Aire	$\phi^{(RC)} (Y=118 \text{ cm}) = (1.86 \pm 0.6) \cdot 10^8$	$\phi^{(RC)} (Y=118 \text{ cm}) = (1.70 \pm 0.2) \cdot 10^8$

Tabla 2b. Comparación de los resultados experimentales obtenidos con hojuelas y los obtenidos con el cálculo con MCNP

Comparación de los resultados calculados y los datos medidos

Se hizo una comparación de los resultados medidos con los calculados.

En las tablas 2a y 2b se puede observar la comparación entre los resultados experimentales y el modelo MCNP en distintas coordenadas, en dos tipos de experiencias distintas.

- Blindaje de Hormigón pesado.
- Reflector central de grafito.
- Reflector radial interior.
- Reflector radial exterior.
- Grafito de la columna térmica.
- Sector del piso del recinto debajo del blindaje del Reactor.
- Paredes del sótano. (Solo las que se corresponden con la cruz por debajo del reactor).

Resultados

Los cálculos realizados muestran que las zonas de la instalación cuya actividad no permite su exclusión son las siguientes:

- Tanque del Reactor y componentes ubicados en su interior (grilla de EC, tubos soportes, tanque separador).
- Barras de Control.
- Sistema de movimiento neumático de muestras.
- Blindaje de Plomo.
- Blindaje de Plomo de la columna térmica.
- Blindaje de Hormigón de hierro.
- Blindaje de Hormigón de Barita.

Salvo el sector mencionado anteriormente, las paredes, el techo y el piso del recinto pueden ser excluidos, sin ninguna restricción. Lo mismo sucede en los circuitos primario y secundario, el sistema de purificación y demás componentes que no fueron mencionados en el apartado anterior, como resultado de la activación de los componentes originales. No es competencia de este trabajo el estudio de la posible activación de productos de corrosión que pudieran estar presentes en dichos componentes.

En la tabla 3 se pueden observar los radionucleidos calculados en el grafito de la columna térmica.

Nucleidos	Actividad específica (Bq/g)	Periodo (a)
³ H	1,57E+02	1,23E+01
¹⁰ Be	3,59E-02	1,60E+06
¹⁴ C	2,65E+00	5,73E+03
³⁵ S	6,52E+00	2,40E-01
³⁶ Cl	2,35E-01	3,01E+05
³⁷ Ar	2,68E-02	9,59E-02
³⁹ A	1,34E+00	2,69E+02
⁴¹ Ca	2,51E-02	1,03E+05
⁴⁵ Ca	2,16E+00	4,46E-01
⁴⁶ Sc	3,66E-02	2,30E-01
⁵⁴ Mn	3,39E-01	8,57E-01
⁵⁵ Fe	5,74E+00	2,70E+00
⁵⁸ Co	1,32E-02	1,94E-01
⁶⁰ Co	3,44E+01	5,27E+00
⁶³ Ni	1,11E-01	1,00E+02
⁶⁵ Zn	2,28E-01	6,70E-01
^{110m} Ag	1,54E-02	6,85E-01
^{119m} Sn	4,92E-02	8,03E-01
¹²⁴ Sb	1,43E-02	1,65E-01
¹²⁵ Sb	7,00E-02	2,77E+00
^{129m} Te	1,71E-02	1,59E-01
¹⁵¹ Sm	1,83E-02	9,00E+01
¹⁵² Eu	9,30E+00	1,36E+01
¹⁵⁴ Eu	1,30E+00	8,80E+00
¹⁵⁹ Eu	4,47E-02	4,96E+00
¹⁵³ Gd	2,69E-02	6,62E-01
¹⁸² Ta	4,69E-01	3,14E-01
¹⁸⁵ W	6,05E-02	2,06E-01
Total	2,22E+02	

Tabla 3. Cálculo de actividad de radionucleidos en el grafito de la columna térmica del Reactor Nuclear RA-1

Con respecto a los radionucleidos totales de la instalación, una vez eliminados aquellos con periodo inferior a seis meses, el ⁵⁵Fe es el que encabeza la lista. En cuanto a actividad, le siguen ⁵⁴Mn, ⁶³Ni y ³⁹Ar, en sentido decreciente de actividad pero siempre dentro del mismo

orden; los restantes tienen un aporte entre 0.5 % y 0.01 % al total de actividad. (Ver Figura 4).

El ⁵⁵Fe aparece como producto de activación de los aluminios, encabizando la lista según su actividad; le siguen ⁵⁴Mn, ⁶³Ni y ⁶⁵Zn.

Radionucleido	Ci	Bq	Periodo (a)
⁵⁵ Fe	1.26E+01	4.65E+11	2.70E+00
⁵⁴ Mn	7.42E-01	2.75E+10	8.57E-01
⁶³ Ni	4.05E-01	1.50E+10	1.00E+02
³⁹ Ar	1.96E-01	7.24E+09	2.69E+02
³ H	7.47E-02	2.76E+09	1.23E+01
¹²⁵ Sb	4.77E-02	1.77E+09	2.77E+00
^{119m} Sn	3.40E-02	1.26E+09	8.03E-01
⁶⁵ Zn	2.17E-02	8.04E+08	6.70E-01
⁶⁰ Co	1.76E-02	6.52E+08	5.27E+00
⁴¹ Ca	1.30E-02	4.81E+08	1.03E+05
¹⁰⁹ Cd	7.51E-03	2.78E+08	1.27E+00
¹⁴ C	4.02E-03	1.49E+08	5.73E+03
¹⁵² Eu	4.03E-03	1.49E+08	1.36E+01
⁵⁹ Ni	3.37E-03	1.25E+08	7.50E+04
⁴⁰ K	1.41E-03	5.22E+07	1.28E+09
¹⁵⁴ Eu	4.75E-04	1.76E+07	8.80E+00
³⁶ Cl	2.46E-04	9.12E+06	3.01E+05
¹⁰ Be	3.74E-05	1.38E+06	1.60E+06
^{115m} Sm	2.29E-05	8.46E+05	9.00E+01
¹⁵³ Gd	1.62E-05	6.01E+05	6.62E-01
¹⁵⁵ Eu	1.58E-05	5.85E+05	4.96E+00
¹³³ Ba	8.39E-06	3.11E+05	1.05E+01
^{110m} Ag	1.04E-06	3.85E+04	6.85E-01
²⁰⁴ Pb	6.04E-13	2.23E-02	1.40E+17
Total	1.41E+01	5.23E+11	

Tabla 4. Radionucleidos relevantes en el Reactor Nuclear RA-1

En lo que respecta al hormigón común encabeza la lista de radionucleidos el ⁴⁰K, luego el ⁵⁵Fe, el ⁴⁵Ca y por último el ³⁹Ar.

En cambio, en hormigón de hierro y pesado encabeza la lista el ⁵⁵Fe, le siguen ⁵⁴Mn, ⁴⁵Ca y ³⁵S. En el hormigón de barita el ⁵⁵Fe es también quien encabeza la lista; le siguen ¹³³Ba, ⁵⁴Mn y ⁴⁵Ca.

En el plomo aparece como producto de activación preferencial el ¹²⁴Sb, con aproximadamente un aporte del 98 % del total de la actividad del componente.

En los aceros inoxidables el ⁵⁵Fe aporta aproximadamente un 90 % del total de actividad; le sigue el ⁵⁴Mn.

En los bloques de grafito el producto de activación predominante es el ³H con aproximadamente un 70 % del aporte total, luego el ⁶⁰Co y el ¹⁵²Eu.

En la tabla 4 se pueden observar los radionucleidos más relevantes presentes en el Reactor Nuclear RA-1.

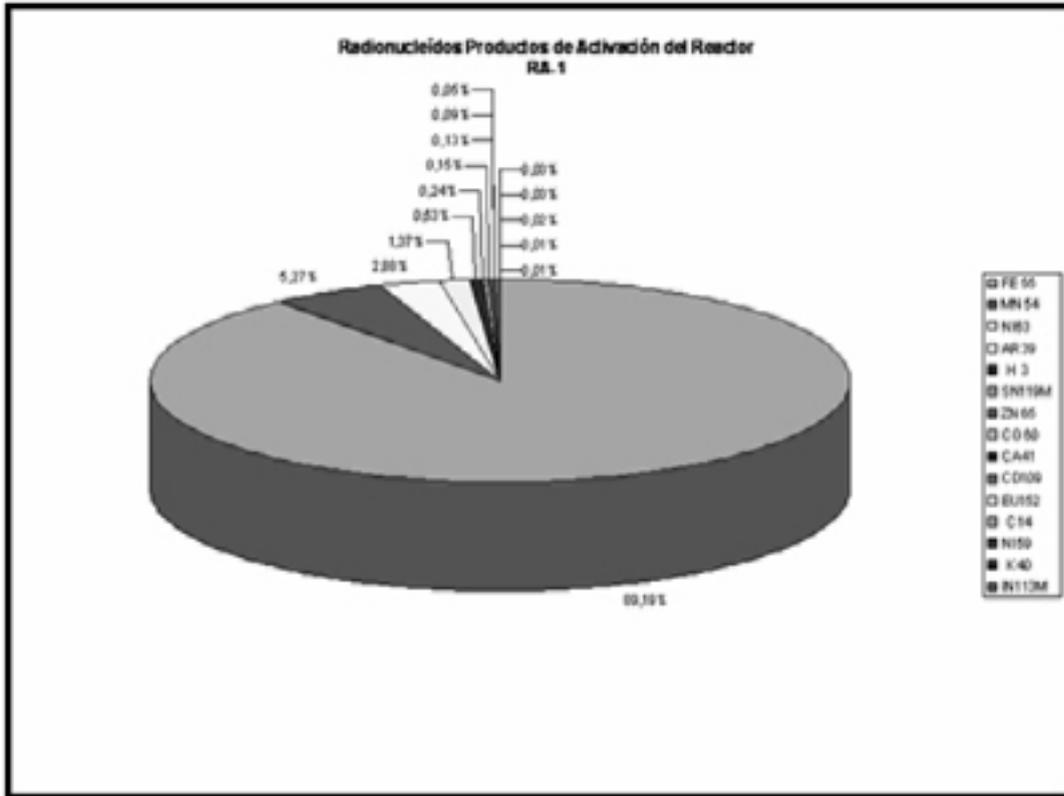


Figura 4. Radionucleidos totales en el reactor RA-1

En la figura 4 se grafican los resultados de la tabla anterior.

Conclusiones

La composición de los materiales utilizados en la construcción de la instalación y sobre todo la cantidad y tipo de impurezas, son un factor crítico de contribución a la cantidad total de activación inducida.

Es importante mencionar que, como se trata de una instalación que inició sus operaciones hace 50 años, gran cantidad de información se ha perdido, sobre todo aquella relacionada con la composición y las impurezas anteriormente mencionadas.

Es por ello, y dada la gran necesidad de contar con esa información, que se decidió, en los casos de incertidumbre, utilizar composiciones o impurezas típicas de los materiales en cuestión.

Otros factores no menos importantes de contribución a la actividad total inducida son la historia de operación y el conocimiento de incidentes durante la vida de la instalación

Otra cuestión no menos importante proviene, en el primer esquema, del modelo simplificado que se utilizó, (códigos de transporte unidimensionales a los que se le han hecho aproximaciones en algunos casos apreciables). En el caso del segundo esquema, se ha obtenido una mejora en cuanto a las aproximaciones del modelo, pero no con las incertidumbres en las composiciones también existentes para este modelo; es por ello que se considera oportuno encarar en los periodos de mantenimiento del reactor la toma de muestras y efectuar un análisis detallado de cada una de las partes constitutivas a las que se pueda tener acceso, con el objeto de conocer con la mayor exactitud posible la composición del material en cuestión y la cantidad y el tipo de impurezas presentes.

Para el primer esquema de cálculo, si bien se han utilizado mayor cantidad de horas-hombre en la gestión y correlación de los modelos, el tiempo de cálculo (CPU) empleado fue mucho menor.

En el esquema con MCNP se han requerido tiempos de CPU bastante largos, pero se han obtenido resultados aceptables y fuera de los rangos de cuestionamiento.

Por todo esto podemos concluir que cuando se requiera hacer un cálculo sin mayores detalles el esquema original puede resultar válido, ya que permite tener una idea de los valores de flujo neutrónico estimable.

En cambio, cuando sea necesario un detalle mucho más fino y una mayor precisión en los resultados es recomendable el cálculo con el código MCNP. Por otra parte, en este último caso, sería conveniente hacer el cálculo más eficiente utilizando alguna técnica de reducción de varianza o simplemente trabajar con varios modelos y calcular en cada uno de ellos una fuente que pueda ser utilizada para evaluar el flujo a medida que nos alejamos del núcleo, inclusive fuera del blindaje. Otra alternativa sería utilizar códigos deterministas de transporte 2D o 3D, tales como el DOT o el DORT, que proporcionan además del valor del flujo solicitado el cálculo de fuentes para calcular nuevos flujos más alejados.

Para la elaboración de los esquemas de cálculo implementados se ha hecho un trabajo exhaustivo de recolección de datos acerca de la vida y la operación de la instalación (historia de operación e incidentes, relevamiento completo de los materiales y componentes

que se encuentran en la misma, entre otros).

Todo este trabajo de recolección de datos resultó muy importante, ya que hasta el momento no se disponía de los mismos.

Otro aporte muy útil para la instalación fue poder disponer de un modelo detallado de la instalación con MCNP, que podrá ser utilizado para cualquier otra evaluación.

Este trabajo se podrá utilizar como base para la elaboración del Plan Preliminar de Retiro de Servicio de la instalación, documento de carácter mandatorio que debe producir la entidad Responsable, exigido por la Autoridad Regulatoria Nuclear.

La metodología utilizada en este trabajo también podrá ser útil, adaptada convenientemente a cada caso, para la elaboración del Programa de Desmantelamiento necesario para obtener la licencia de desmantelamiento tanto de un Reactor de Investigación (RA-1, RA-3, RA-6) como de una central de potencia (ATUCHA I, ATUCHA II, EMBALSE). Este documento también es de carácter mandatorio, según lo exigido por la Autoridad Regulatoria Nuclear.

Referencias

- BARBERIS, C. M. (2001) *Base de Datos para el Estudio de un futuro Desmantelamiento del Reactor RA-1*. Informe CNEA.C.RCN.ITE.155.
- HALSALL, M. J (1980) *WIMSD4: Input Options*. Informe AEEW - M1327.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (1996). *Clearance Levels for Radionuclides in Solid Materials*. Application of Exemption Principles. Interim Report for Comment". IAEA - TECDOC – 855, IAEA, Vienna, Austria.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (2004) *Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance*". Safety Guide No. RS-G-1.7. IA. IAEA, Vienna, Austria.
- INVAP SE (1995) MTR_PC : *Modular Code System for Neutronics, Thermalhydraulics and Shielding Calculations*. División de Ingeniería Nuclear, INVAP SE. San Carlos de Bariloche, Argentina. RSICC CODE PACKAGE CCC-674 (1995).
- LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY (2005) MCNP — *A General Monte Carlo N-Particle Transport Code*", Version 5. Los Alamos, Estados Unidos.
- OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY (1973) ANISN: *Multigroup One- Dimensional Discrete Ordinates Transport Code with Anisotropic Scattering*"Informe RNL RSICC CCC, 254. (Versión extendida en MTR_PC, INVAP).
- OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY.(1980) ORIGEN II: *Isotope Generation and Depletion Code*", Informe ORNL CCC_371.
- VILLARINO, E.; LECOT, C. (1995) CITVAP 3.1: *A Reactor Calculation Code, included in the MTR_PC System*. División de Ingeniería Nuclear, INVAP SE. San Carlos de Bariloche, Argentina.

