

## DESARROLLO DE UN NUEVO PATRÓN NEUTRÓNICO EN EL LABORATORIO DE METROLOGÍA DE RADIACIONES IONIZANTES DEL CIEMAT

R. Méndez Villafañe<sup>(1)</sup>, X. Campo Blanco<sup>(1)</sup>, S. Rivera Vázquez<sup>(1)</sup>, F. González Sánchez<sup>(1)</sup>

(1) CIEMAT, Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes

Av. Complutense 40, 28040, Madrid, España

**RESUMEN:** El Laboratorio de Patrones Neutrónicos (LPN) forma parte del Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) del CIEMAT, laboratorio asociado al CEM y constituye la instalación de referencia nacional en la calibración de equipos de medida neutrónica. Es la depositaria de los patrones neutrónicos de fluencia neutrónica, materializados en sus fuentes neutrónicas de  $^{252}\text{Cf}$  y  $^{241}\text{Am-Be}$  almacenadas en agua y que se manipulan de forma remota. En el diseño de la instalación se han seguido las recomendaciones de la ISO 8529-1.

Para completar estas recomendaciones se ha desarrollado un nuevo patrón neutrónico basado en  $^{252}\text{Cf}$  moderado por una esfera de agua pesada. En esta ponencia se describen los trabajos de desarrollo y caracterización, mediante simulaciones Monte Carlo y medidas experimentales de este nuevo patrón neutrónico, que incrementa la oferta de campos neutrónicos de calibración de los que dispone el LPN, y se comparan con los propuestos en la actualización de la norma ISO 8529-3.

### 1. INTRODUCCIÓN

El Laboratorio de Patrones Neutrónicos del CIEMAT (LPN) constituye el laboratorio de referencia nacional en metrología neutrónica [1]. Es uno de los laboratorios con que cuenta el Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes del CIEMAT (LMRI) que establece, mantiene y disemina los Patrones Nacionales de unidades del SI para las radiaciones ionizantes.

La norma ISO 8529-1 [2], recientemente actualizada, establece las características de las fuentes neutrónicas recomendadas para realizar las calibraciones de equipos de medida neutrónica. En base a esta norma el LPN cuenta con dos fuentes neutrónicas calibradas de  $^{252}\text{Cf}$  (0,236  $\mu\text{g}$ , 5 GBq, y una tasa de emisión a fecha 20-09-2017 de  $B=1,32 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ ) y  $^{241}\text{Am-Be}$  (185 GBq y  $B=1,1 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ) que constituyen los patrones nacionales. Ambas fuentes están calibradas en laboratorios nacionales, concretamente la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  en el NIST (USA) y la de  $^{241}\text{Am-Be}$  en el CMI (Rep. Checa). Se ha desarrollado un nuevo patrón,  $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$ , basado en una fuente de  $^{252}\text{Cf}$  inmersa en una esfera de 30 cm de diámetro de agua pesada y los resultados obtenidos se han comparado con los valores propuestos en la actualización de la norma ISO 8529-3 por el comité ISO TC85 CS2 WG2 [5].

La incorporación de este nuevo patrón permitirá completar las fuentes neutrónicas recomendadas por la norma ISO, al añadir un campo termalizado a los dos campos rápidos ya existentes. Además del proceso de diseño y mecanización de la propia esfera es necesario desarrollar todo un conjunto de simulaciones que permitan analizar la influencia de los diferentes elementos que constituyen el conjunto  $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$ . Por ejemplo, es fundamental estudiar el efecto de la proporción de deuterio/hidrógeno en la composición del agua pesada o el espesor de acero de la pared de la esfera y de los materiales que permiten el posicionado de la fuente en el centro de la esfera.

En el proceso de calibración de equipos de medida neutrónica [4] se determina el factor o coeficiente de calibración a partir de la comparación entre el valor convencionalmente verdadero de la magnitud de interés, típicamente  $H^*(10)$  para los monitores de área, y el valor de la lectura del equipo corregida de los efectos que provoca la propia instalación, principalmente las

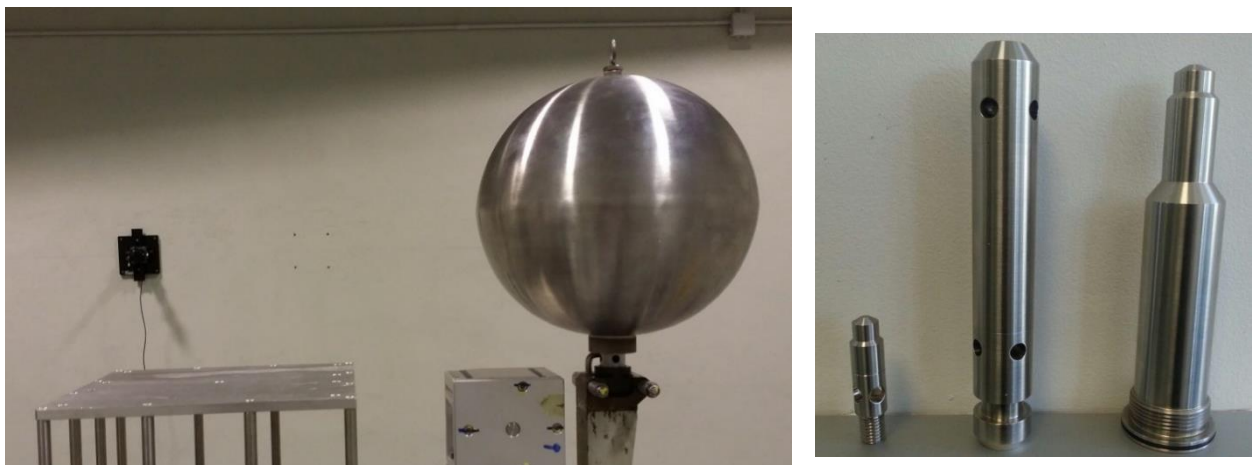
dispersiones por paredes, suelo, techo y otros elementos, de los neutrones directos procedentes de la fuente. El valor convencionalmente verdadero se determina a partir de la tasa de emisión de la fuente calibrada,  $B(t)$ , tras aplicar el decaimiento de la fuente y el factor de conversión de fluencia a equivalente de dosis ambiental recomendado en la norma ISO 8529-3,  $h_{\Phi}^*(10)$ , así como un factor de anisotropía de la fuente,  $F_I(\theta)$ , también recogido en ISO 8529-2 [3].

$$\dot{H}^*(10) = h_{\Phi}^*(10) \frac{B(t)F_I(\theta)}{4\pi l^2} \quad (1)$$

Para poder emplear el nuevo patrón desarrollado es necesario determinar experimentalmente o mediante técnicas Monte Carlo el valor de la anisotropía en el punto de medida. Como las medidas se realizan a una distancia de 115 cm del centro de la fuente de  $^{252}\text{Cf}$ , supuesta como un cilindro vertical, el valor del ángulo  $\theta = 90^\circ$ , es decir, determinaremos  $F_I(90)$ . Por otro lado, en la actualización de la norma [5] se propone un valor para  $h_{\Phi}(10) = 114 \text{ pSv}\cdot\text{cm}^2$  que tendremos que comprobar para nuestro patrón.

## 2. DESCRIPCIÓN DEL PATRÓN DE $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$

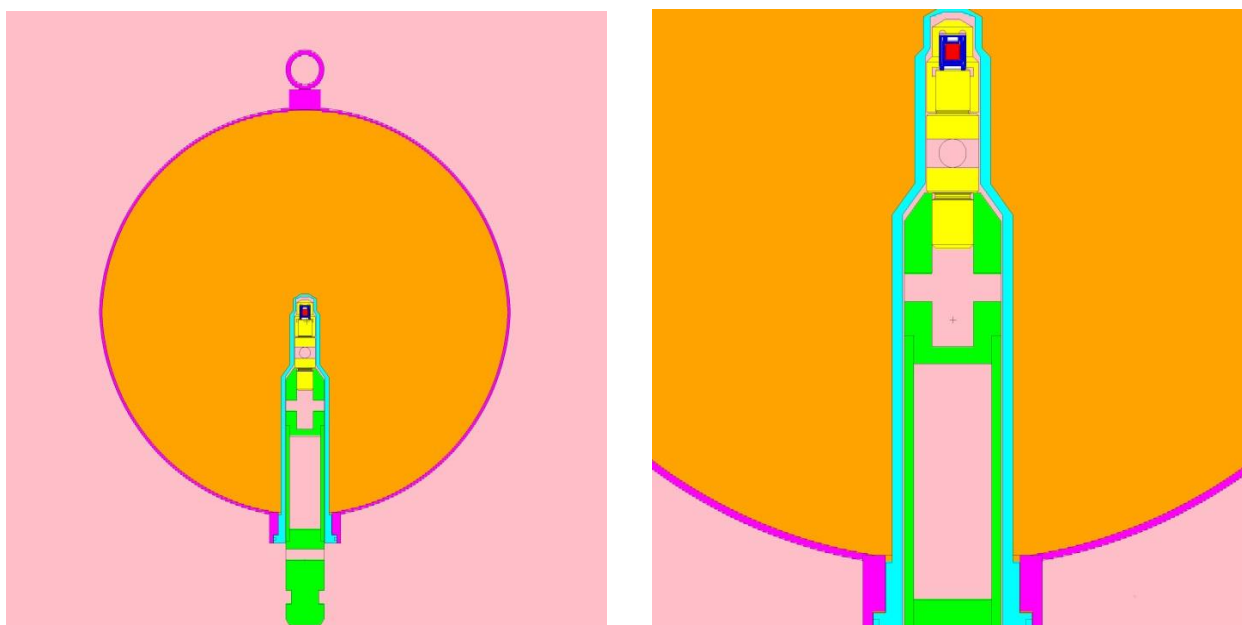
La norma ISO 8529-1 recomienda el uso de una esfera metálica rellena de agua pesada ( $\text{D}_2\text{O}$ ) de 300 mm de diámetro interior recubierta por una lámina de aproximadamente 1 mm de Cd [7]. En estas condiciones el espectro que se obtendría aparece recogido en la propia norma y el coeficiente de conversión de fluencia a dosis toma un valor de  $114 \text{ pSv}\cdot\text{cm}^2$ , frente a los valores de 391 y  $385 \text{ pSv}\cdot\text{cm}^2$  para las fuentes de  $^{252}\text{Cf}$  y  $^{241}\text{Am-Be}$  respectivamente. En nuestro caso se ha fabricado una esfera de 300 mm con pared de acero inoxidable, Fig. 1. Se proponen dos modelos de recubrimiento de Cd con un espesor de 1 mm.



**Fig. 1. Esfera de agua pesada sobre la bancada y elementos que componen la fuente de  $^{252}\text{Cf}$ : la fuente con su porta cápsula en primer término, la antorcha sobre la que se rosca ésta y por último la funda que permite el posicionado del conjunto dentro de la esfera.**

En el método de inserción de la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  cada laboratorio nacional ha recurrido a un sistema diferente, en función del empleado para la manipulación de las propias fuentes neutrónicas. En el LPN como se emplea un sistema de manipulación remota [4], la fuente, que originalmente consta de una doble cápsula con dimensiones exteriores de 10 mm de altura por 7,8 mm de diámetro, está alojada a su vez dentro de un portacápsula y unido a otra pieza que

denominamos antorcha y que permite la inserción del conjunto en la esfera. Dentro de la esfera una funda de acero inoxidable permite el posicionado de la fuente en el centro geométrico y a la vez actúa como tapón de la propia esfera. Tanto la esfera como la funda están fabricadas en acero inoxidable con espesor de pared de 2 mm. En la Fig. 1 se muestran la esfera metálica sobre la bancada, la fuente dentro de su porta cápsula, la antorcha a la que se une y la propia funda que se aloja en el interior de la esfera.



**Fig. 2. Modelo de esfera de agua pesada y detalle de la misma en el que se aprecian los diversos elementos de la fuente con su doble encapsulado, el portacápsula, la antorcha y la funda.**

Para su modelado se ha recurrido al código MCNP6.2 con librerías ENDF/B-VIII.0 y los coeficientes de conversión de fluencia a dosis de la norma ICRP-74. Se han empleado los planos detallados facilitados por los fabricantes. Como término fuente se ha utilizado el desarrollado por el LPN para el estudio de la anisotropía de la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  que incorpora detalles de la disposición del material activo dentro de su doble cápsula [12]. La Fig. 2 muestra detalles del modelo empleado en la simulación.

Como detectores virtuales para determinar tanto los espectros resultantes como las tasas fluencia y de equivalente de dosis ambiental por partícula inicial, se han empleado detectores puntuales, que corresponde al tally 5, así como también se han calculado estas magnitudes a través de una superficie esférica a la distancia de referencia de 115 cm del centro de la fuente, usando en este caso el tally 2, para determinar la anisotropía de la fuente. Para los espectros neutrónicos se han definido cinco intervalos de energía por década, desde  $1\text{E}-9$  hasta los 100 MeV. No ha sido necesario emplear métodos de reducción de varianza y las incertidumbres estadísticas obtenidas son generalmente inferiores al 1% en las tasa de dosis determinadas y por debajo del 5% para cada intervalo energético.

Se ha variado la composición del agua pesada para estudiar su influencia y compararla con la referencia propuesta por la norma ISO. La composición del agua pesada proporcionada por el fabricante es del 99,85% de agua pesada sobre agua convencional. Se ha estudiado el efecto de modificar esta composición para valores del 100%, 99,85%, 99 %, 98% y un caso extremo en

el que se empleara agua convencional. Este estudio nos permite además comprobar el efecto del agua pesada tanto sobre el espectro original de  $^{252}\text{Cf}$ , como sobre las magnitudes integradas fluencia y equivalente de dosis ambiental. También se ha analizado el efecto de los elementos que rodean a la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  en el interior de la esfera, como porta cápsula, antorcha y funda.

### 3. RESULTADOS

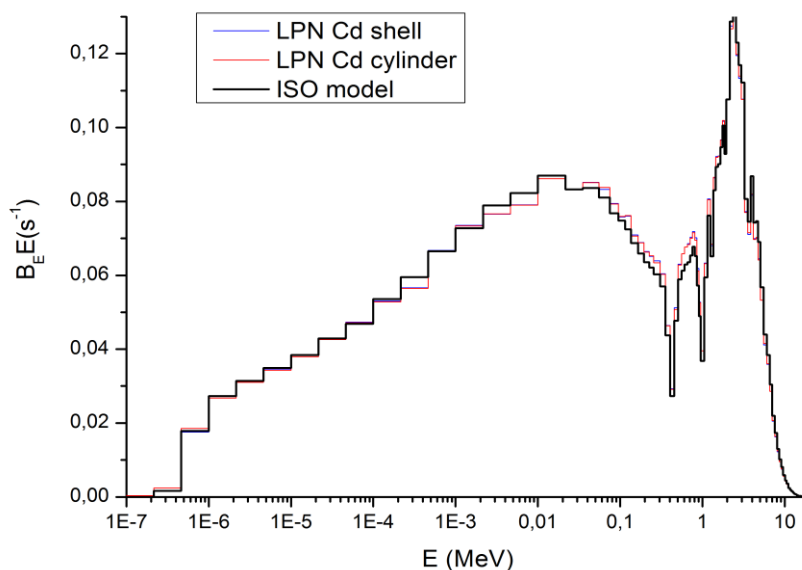
La fuente de calibración  $^{252}\text{Cf}$  del LPN con todos sus elementos, como su doble encapsulado, su porta cápsula y la antorcha, se ha simulado en el interior de la esfera de agua pesada, en la que se ha incluido tanto la funda, como los elementos de la rosca y la anilla superior que permite su posicionamiento, Fig. 2, así como la composición de agua pesada proporcionada por el proveedor. El espectro resultante se compara con el propuesto por la norma ISO 8529-1 en la Fig. 3. Igualmente las magnitudes integrales obtenidas a partir de esta simulación se muestran en la Tabla 1. Se han propuesto dos modelos de recubrimiento con Cd, uno esférico y otro cilíndrico y se observa que los resultados, si bien son ligeramente diferentes en la mayor parte de las magnitudes de interés, son coincidentes en el valor obtenido para el coeficiente de conversión de fluencia a equivalente de dosis ambiental,  $h_{\phi}(10)$ . En esta tabla se muestran las magnitudes integrales obtenidas a partir de esta simulación y las correspondientes a las recomendaciones de la norma ISO 8529-1, ya actualizada [2] y a las propuestas en la actualización de la ISO 8529-3 [5]. La diferencia en el valor del factor de conversión de fluencia a dosis obtenido este trabajo y coincidente con el propuesto,  $h_{\phi}(10) = 1114 \text{ pSv}\cdot\text{cm}^2$ , difiere del recogido por la norma ISO 8529-3 de 1998, y todavía en vigor,  $h_{\phi}(10) = 105 \text{ pSv}\cdot\text{cm}^2$ , y es consecuencia del empleo de las secciones eficaces actualizadas ENDF/B-VIII.0, como se ha comprobado [8]. El coeficiente de transmisión da cuenta del porcentaje de neutrones que emitidos por la esfera de agua pesada en relación a los emitidos por la fuente. Cuando no se incorpora la lámina de Cd este porcentaje aumenta a valores próximos a la unidad. La adición de 1 mm de Cd resulta en un valor de este factor idéntico al de la norma.

	$\dot{\phi}$	Fugas	$\bar{E}_{\phi}$	$\bar{E}_H$	$\dot{H}^*(10)$	$h_{\phi}(10)$
	[ $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ]	[%]	[MeV]	[MeV]	[ $\mu\text{Sv}/\text{h}$ ]	[ $\text{pSv}\cdot\text{cm}^2$ ]
<b>Sin Cd</b>	7,58E-06	0,95	0,50	1,89	7,91E-04	<b>104</b>
<b>Cd esférico</b>	6,62E-06	0,83	0,55	1,91	7,58E-04	<b>114</b>
<b>Cd cilíndrico</b>	7,02E-06	0,88	0,55	1,91	8,03E-04	<b>114</b>
<b>Actualización ISO</b>	7,11E-06	0,89	0,56	1,97	8,06E-04	<b>114</b>

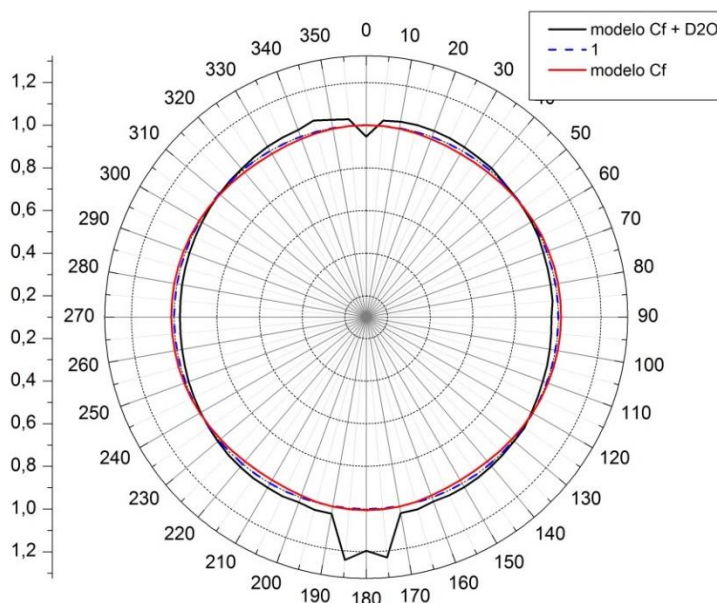
**Tabla 1. Resultados de la tasa de fluencia, las fugas, energías promediadas en fluencia y en  $H^*(10)$ , tasa de equivalente de dosis ambiental y coeficiente de conversión de fluencia a equivalente de dosis ambiental para los modelos MC de la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  moderada por agua pesada y con 1 mm de Cd y comparados con los valores propuestos para la actualización de ISO 8529-3.**

La anisotropía del sistema se muestra en la Figura 4, comparándola con la determinada para la fuente desnuda con su porta cápsula [6,9]. Se observa que para  $90^\circ$ , que corresponde al valor habitual de ángulo al que se sitúa el equipo a calibrar, obtenemos un valor de  $F_1(90) = 0,9804$ , mientras que para la fuente de  $^{252}\text{Cf}$  con su porta cápsula toma un valor de  $F_1(90) = 1,0502$ . Se

emplean para determinar los valores convencionalmente verdaderos de las magnitudes  $H^*(10)$  para las fuentes de  $^{252}\text{Cf}$  y de  $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$  respectivamente, tal y como se indicaba en la ec.(1).



**Fig. 3. Espectros neutrónicos resultantes de la simulación MC para el modelo de esfera de agua pesada con dos recubrimientos de 1 mm Cd (cilíndrico y esférico) comparado con el recogido en la norma ISO 8529-1 (2021).**

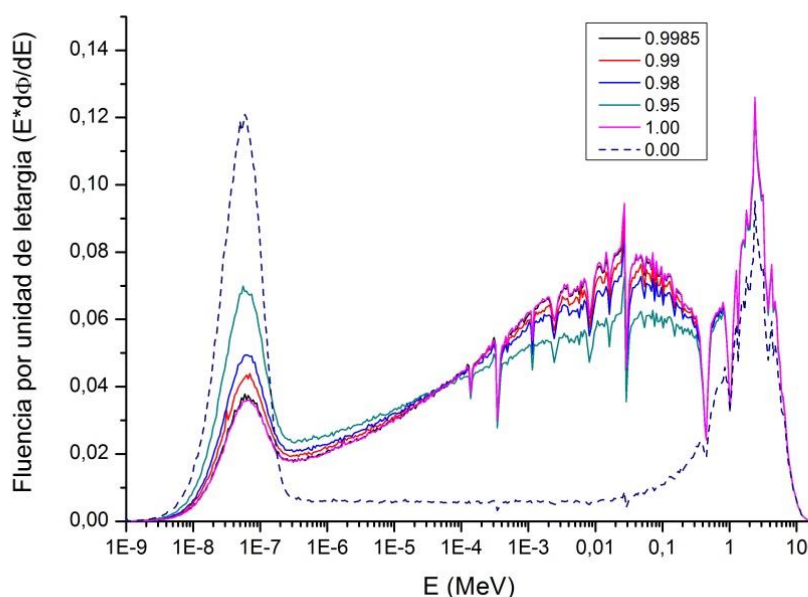


**Fig. 4. Estudio de la anisotropía de las fuentes de Cf y de Cf + D<sub>2</sub>O.**

En la Fig. 5 y en la Tabla 2 se estudia el efecto de modificar la composición de agua pesada para el caso de  $^{252}\text{Cf}$  moderado por agua pesada sin Cd, que como se observa tiene un efecto importante en el espectro neutrónico resultante. En el caso más extremo estudiado, en el cual el agua empleada no contiene deuterio, se comprueba el efecto sobre el espectro, que lo termaliza completamente, de tal manera que la componente epitérmica es prácticamente inexistente, mientras que la térmica es muy importante.

En la Tabla 2 se recogen los parámetros obtenidos en el estudio del efecto de los diferentes elementos que constituyen el conjunto del patrón  $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$ , sin lámina de Cd, es decir, el efecto del porta cápsula, de la antorcha y de la propia funda que permite el posicionado de la fuente en el centro de la esfera. Para ello se han eliminado progresivamente estos elementos, reemplazándolos por agua pesada o por aire.

De este estudio se concluye que estos elementos tienen una influencia limitada sobre los resultados, que sólo incrementa su efecto al considerar exclusivamente la fuente, sin ningún otro elemento, como el porta cápsula, la antorcha o la propia funda, en el centro de la esfera de agua pesada. Esto afecta directamente al valor que adopta el coeficiente de conversión de fluencia a dosis, pero no responde a una situación real y tampoco se corresponde al modelo en el que se apoya la recomendación de la norma ISO pues incluso en ese caso se considera un hueco cilíndrico en el interior de la esfera por el que se introduce la fuente neutrónica [7].

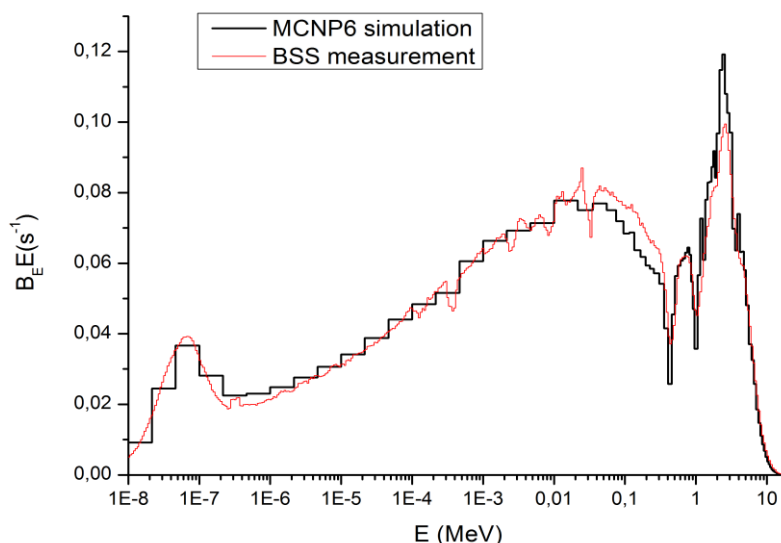


**Fig. 5. Espectros neutrónicos resultantes de la simulación MC variando la composición de agua pesada desde la nominal de 0,9985 hasta las situaciones de agua convencional y comparado con el propuesto por la norma ISO 8529-1.**

Por último, las simulaciones se comparan, Fig. 6, con medidas preliminares de espectrometría neutrónica mediante esferas de Bonner, para el caso de  $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$  sin lámina de Cd y se observa la coincidencia en los resultados excepto para el rango entre 30 keV y 300 keV y en el pico rápido, ligeramente inferior al simulado, que ese está estudiando.

Model	$\dot{\phi}$	Fugas	$\bar{E}_\phi$	$\bar{E}_H$	$\dot{H}^*(10)$	$h_\phi(10)$
	[cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]	[%]	[MeV]	[MeV]	[uSv/h]	[pSv·cm <sup>2</sup> ]
Modelo complete sin Cd	7,58E-06	0,95	0,50	1,89	7,91E-04	104
Funda es D <sub>2</sub> O	7,25E-06	0,91	0,50	1,89	7,56E-04	104
Funda y antorcha son D <sub>2</sub> O	7,55E-06	0,95	0,49	1,89	7,86E-04	104
Funda es aire	7,42E-06	0,93	0,49	1,90	7,71E-04	104
Funda, antorcha y porta cápsula son aire	7,29E-06	0,92	0,49	1,90	7,55E-04	103

**Tabla 2. Resultados de la tasa de fluencia y tasa de equivalente de dosis ambiental por neutrón emitido obtenidos para varios modelos MC de la fuente de <sup>252</sup>Cf moderada por agua pesada. Se ha estudiado el efecto de eliminar algunos elementos del sistema.**



**Fig. 6. Espectros neutrónicos resultantes de la simulación MC y de la medida con BSS para el caso de <sup>252</sup>Cf +D<sub>2</sub>O sin lámina de Cd.**

#### 4. CONCLUSIONES

El Laboratorio de Patrones Neutrónicos está desarrollando un nuevo patrón neutrónico para completar las recomendaciones de la norma ISO 8529-1. Basándonos en el diseño propuesto por la norma se ha adaptado al sistema de manipulación remota de fuentes con que cuenta la instalación de tal manera que difiere ligeramente del original. Como paso previo al inicio de medidas experimentales con el patrón desarrollado se ha procedido a su simulación detallada para validar las modificaciones introducidas. El modelo desarrollado, sin Cd y en sus dos variantes para el recubrimiento con Cd, da como resultado un espectro coincidente con el

propuesto por la norma, con ligeras diferencias en la componente epitérmica, pero con el mismo valor para el coeficiente de conversión de fluencia a equivalente de dosis ambiental que el propuesto para la actualización de la norma.

Se ha comprobado el efecto de los diversos elementos que permiten la manipulación de la fuente y su inserción en la posición central de la esfera, tales como porta cápsula, antorcha y la propia funda de la esfera para un modelo sin recubrimiento de Cd. La eliminación de estos elementos tiene una influencia no despreciable, sin embargo el modelo que contempla su presencia es más cercano al propuesto por la norma.

Se ha realizado un estudio de la influencia de la composición del agua pesada en el que se observa que este parámetro es determinante en la forma del espectro neutrónico resultante, alterándose las contribuciones epitérmica y térmica en función del porcentaje mayor o menor de agua pesada en el interior de la esfera.

Estas simulaciones se han completado con medidas de espectrometría mediante esferas de Bonner.

## 5. REFERENCIAS

- [1] R. Méndez-Villafañe, J.E. Guerrero, M. Embid, R. Fernández, R. Grandio, P. Pérez-Cejuela, J.L. Márquez, F. Alvarez, P. Ortego, *Design and verification of the shielding around the new Neutron Standards Laboratory (LPN) at CIEMAT*. Radiat. Prot. Dosim. Vol. 161, No. 1 – 4, pp. 393 – 397 (2014)
- [2] ISO 8529-1 *Neutron reference radiations fields. Part 1: Characteristics and methods of production, (2021)*.
- [3] ISO 8529-2 *Reference Neutron Radiations. Part 2: Calibration fundamentals of radiation protection devices related to the basic quantities characterizing the radiation field (2000)*
- [4] R. Méndez Villafañe, P-LMRI-T-40, *Procedimiento para la calibración de un monitor neutrónico de área en fuentes de  $^{252}\text{Cf}$  y  $^{241}\text{Am-Be}$  del laboratorio de patrones neutrónicos*. (2016), CIEMAT.
- [5] ISO/CD 8529-3:2022 *Reference Neutron Radiation fields. Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and determination of their responses as function of neutron energy and angle of incidence, (2022)*. Internal distribution.
- [6] R. Méndez Villafañe, M.A. de Sousa Lacerda, X. Campo Blanco, *Estudio de la anisotropía de las fuentes de  $^{252}\text{Cf}$  y Am-Be del Laboratorio de Patrones Neutrónicos del CIEMAT*, 5º Congreso Conjunto 21 SEFM / 16 SEPR, Girona, España, 2017.
- [7] R.B. Schwartz, C. M. Eisenhauer. *The design and construction of a  $\text{D}_2\text{O}$ -moderated  $^{252}\text{Cf}$  source for calibrating neutron personnel dosimeters used at nuclear power reactors (NUREG/CR-1204)*, NBS, 1979.
- [8] G. C. Taylor and A. K. Thompson, *Factors influencing the neutron emission from a heavy-water moderated californium source*, Neutron and Ion Dosimetry Symposium NEUDOS-13, Krakow, Poland, 2017.
- [9] M.A. de Sousa Lacerda, R. Méndez Villafañe, X. Campo Blanco, H.R. Vega Carrillo, *Emission anisotropy of LPN/CIEMAT neutron sources*, Neutron and Ion Dosimetry Symposium NEUDOS-13, Krakow, Poland, 2017.