

AMPLIACIÓN DE LAS CAPACIDADES DEL LABORATORIO DE PATRONES NEUTRÓNICOS DEL CIEMAT



ROBERTO MÉNDEZ VILLAFANE

Responsable del Laboratorio de Patrones Neutrónicos (LPN).
CIEMAT

INTRODUCCIÓN: CAPACIDADES ACTUALES

El Laboratorio de Patrones Neutrónicos (LPN) es la instalación más reciente en incorporarse al Laboratorio de Metrología de Radiaciones Ionizantes (LMRI) del Centro de Investigaciones Medioambientales Energéticas y Tecnológicas, CIEMAT. Desde 1996 el LMRI es el depositario de los patrones nacionales y como laboratorio asociado al CEM de las unidades derivadas de actividad (de un radionucleido), exposición (rayos x y γ), kerma y dosis absorbida, en virtud del RD 533/1996, de 15 de marzo. Recientemente, a través del RD 207/2022 del Ministerio de Industria, Comercio y Turismo, de 15 de marzo, se actualiza este mandato añadiendo la fluencia neutrónica. Y la Orden ICT/953/2022, de 3 de octubre de 2022, declara el patrón nacional de fluencia neutrónica que se materializa para los campos neutrónicos de ^{252}Cf , $^{241}\text{Am-Be}$ y ^{252}Cf moderado por una esfera de agua pesada, $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$, por fuentes neutrónicas normalizadas de ^{252}Cf , $^{241}\text{Am-Be}$ y $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$, que se consideran patrones secundarios.

Actualmente el LPN [1] cuenta con una fuente de ^{252}Cf de 236 microgramos que se corresponde con una actividad de 5 GBq, calibrada en el NIST (*National Institute of Standards and Technology*, USA) en 2012, con una tasa de emisión de $5,47 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ a fecha de 20 de mayo de 2012. La fuente

está encapsulada en una cápsula doble cilíndrica de dimensiones 10 mm de altura por 7,8 mm de diámetro. Como el periodo de semidesintegración del ^{252}Cf es de tan sólo 2,64 años, actualmente, a principios de 2024, la fuente está muy decaída y ya estamos trabajando la adquisición de una nueva. Por otro lado, la fuente de $^{241}\text{Am-Be}$ es sensiblemente mayor, con unas dimensiones de cápsula de 19,1 mm de diámetro por 48,6 mm de altura, conteniendo una dispersión de granos de AmO_2 en una matriz de Be metálico, con una actividad total de 185 GBq y que da lugar a una tasa de emisión de $1,11 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ según se desprende del certificado de calibración emitido por el CMI (*Czech Metrology Institute*, República Checa) a fecha de 1 de enero de 2012. Como su periodo de semidesintegración es de 432,6 años su decaimiento es mucho menor que el correspondiente al ^{252}Cf a lo largo de los años, si bien no es posible alcanzar tasas de emisión tan elevadas como las que se pueden lograr con cantidades de ^{252}Cf mucho menores. Ambas fuentes se encuentran a su vez insertas en unos porta-cápsulas para poder ser operadas por nuestro sistema de manipulación de fuentes neutrónicas, **Figura 1**. Las fuentes son usadas dentro de la Sala de Irradiación, que es un búnker de dimensiones aproximadas de 8 m x 8 m x 8 m, con paredes de hormigón de 1,25 m, y se almacenan en una pequeña piscina de agua de 1,5 m de largo por 1 m de ancho y 1 m de profundidad, **Figura 2**. Se accede a través de una puer-



ta blindada fabricada con un hormigón especial, Contek® RNH1, específicamente desarrollado como blindaje neutrónico para nuestra instalación por la empresa ARRAELA. El sistema de manipulación de las fuentes neutrónicas permite seleccionar la fuente y desplazarla desde su posición de almacenamiento, bajo el agua, a 1 m de profundidad, hasta el centro geométrico de la Sala de Irradiación, a 4 m de cualquiera de las paredes, suelo o techo. Todo el conjunto fue desarrollado por la empresa ENWESA. Con la fuente en posición de irradiación se sitúan los equipos o materiales sobre una bancada, que permite su desplazamiento en altura y a lo largo de un recorrido de hasta 3 m.

Los objetivos fundamentales del Laboratorio de Patrones Neutrónicos se pueden resumir en el mantenimiento, el desarrollo y la diseminación de los patrones neutrónicos. El mantenimiento de los patrones se consigue mediante la calibración de las fuentes neutrónicas y la participación en intercomparaciones con otros laboratorios nacionales de referencia, mientras que la diseminación se produce fundamentalmente a través de la calibración de equipos de medida neutrónica con nuestras fuentes, de tal manera que se proporcionan servicios técnicos de calibración tanto de dosímetros neutrónicos de área, en la magnitud $H^*(10)$ como de dosímetros personales, en $H_p(10)$, siguiendo las recomendaciones de las normas ISO 8529-1, 8529-2 y 8529-3 [2-4].

Actualmente estamos trazados metrológicamente al NIST y al CMI, a través de nuestras fuentes neutrónicas calibradas en estos laboratorios. El desarrollo de un patrón primario, que nos permitirá la calibración de nuestras propias fuentes neutrónicas, así como las de otros usuarios nos dotará de independencia metrológica y promoverá al LPN como

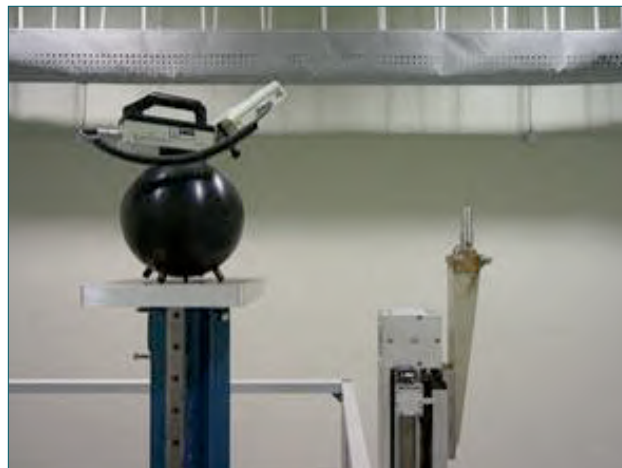


Figura 1. Panorámica de la Sala de Irradiación del LPN con la bancada y el sistema de manipulación de fuentes neutrónicas. Calibración de monitor neutrónico con fuente de Am-Be.

laboratorio primario de metrología neutrónica, dentro de un grupo de unas 15 instalaciones de este tipo a nivel mundial. En este sentido, se apuesta por la puesta en marcha de un Baño de Mn, que es el dispositivo que se emplea para la calibración absoluta de fuentes neutrónicas, y que constituirá nuestro patrón primario.

Por otro lado, con las fuentes actuales de ^{252}Cf , y $^{241}\text{Am-Be}$, se cubre el rango rápido, en el entorno de unos pocos MeV, mientras que la fuente de ^{252}Cf moderado por esfera de agua pesada, $^{252}\text{Cf} + \text{D}_2\text{O}$ cubriría al rango fundamentalmente epitérmico [5], desde los eV hasta unos pocos cientos de keV, aproximadamente. Queda pendiente el rango térmico, por debajo de los 0,5 eV, que constituye el corte del Cd, y por esta razón se proyecta la puesta en marcha de un campo térmico basado en pila de grafito.

DESARROLLO DE NUEVAS CAPACIDADES

1. Desarrollo de un patrón primario basado en Baño de Manganeseo

En metrología neutrónica se define el patrón primario como el dispositivo que permite la calibración absoluta de las fuentes neutrónicas, que constituyen los patrones secundarios en estos laboratorios. Aunque existen varias técnicas para la calibración absoluta de las fuentes neutrónicas, la más extendida es la denominada Baño de Manganeseo [6]. Consiste en una esfera, usualmente metálica, con un diámetro de alrededor de 150 cm, que dependerá de la actividad de la fuente a calibrar, que se rellena con una disolución saturada de MnSO_4 . En posición central se introduce la fuente a calibrar que activará el ^{55}Mn , que pasa a ^{56}Mn por captura neutrónica y decae por β^- a ^{56}Fe con emisión de gammas de 846,8 keV, 1810,8 keV y 2113,1 keV y con un periodo de semidesintegración de 2,58h. La medida absoluta de la actividad de saturación del ^{56}Mn , a través de la medida de las gammas producidas empleando centelleadores de NaI(Tl) , permite determinar la tasa de emisión de la fuente neutrónica. Se empleará la técnica $4\pi\beta\text{-}\gamma$ para la estandarización del ^{56}Mn . Se trata de una técnica absoluta de medida de la



Figura 2. Baño de Mn instalado en el Instituto Nacional de Metrología de las Radiaciones Ionizante de ENEA, la Agencia Nacional para la nueva tecnología, la energía y el desarrollo económico sostenible (Italia), similar al previsto en el Laboratorio de Patrones Neutrónicos.

actividad mediante coincidencias β - γ , de tal manera que las β se miden mediante un contador proporcional y las γ con un centelleador acoplado [7].

De este modo, la tasa de emisión de la fuente, que denominamos B , se deduce a partir de la medida de la actividad de saturación por unidad de masa, A_m , siendo M la masa total de la solución, f la fracción de neutrones capturados por el Mn, ε se refiere a la eficiencia del detector y δ es un factor de corrección que se determina por cálculos Monte Carlo y que agrupa las capturas por otros elementos presentes en el Baño de Mn.

$$B = \frac{A_m M}{\varepsilon f (1 - \delta)}$$

Complementariamente al desarrollo del patrón primario será necesario disponer de un espacio en el que poder manipular las fuentes neutrónicas con seguridad, por lo que se diseñará una pequeña celda caliente que permitirá la manipulación remota de las fuentes neutrónicas, para extraerlas de sus blindajes de transporte, introducirlas en porta cápsulas diseñados para su manipulación y posicionarlas en el centro de la esfera de sulfato de Mn, durante el tiempo necesario para que alcance la saturación, del orden de 30 h.

El desarrollo y caracterización posterior del Baño de Mn

permitirá la calibración de fuentes neutrónicas, tanto de clientes externos, como las nuestras propias y nos convertirá en laboratorio primario, propiciando la independencia metrológica de nuestro país en este campo.

2. Desarrollo de campo térmico basado en pila de grafito

Las nuevas capacidades del LPN se completarán con el desarrollo de un nuevo campo de calibración para cubrir el rango térmico, que hasta la fecha no está cubierto con las fuentes con que cuenta el laboratorio actualmente.

Los campos térmicos de referencia pueden ser producidos tanto por neutrones moderados emitidos por fuentes isotópicas, como por aceleradores de partículas o por reactores nucleares. En este sentido, se han desarrollado diversos campos térmicos atendiendo al método de producción, a los detalles constructivos, el tamaño del campo, la presencia de radiación no deseada (fotones, neutrones epitérmicos o no moderados), o a las distribuciones angulares y energéticas de los espectros producidos. No obstante, debido a la dificultad que entraña el desarrollo de campos térmicos basados en reactores e incluso en aceleradores, la mayor parte de los campos térmicos asociados a laboratorios de calibración neutrónica están basados en pilas de grafito.

En general, las pilas térmicas se basan exclusivamente en la moderación neutrónica, y consisten en un bloque de grafito en cuyo interior se alojan una o varias fuentes neutrónicas. Se blindo toda la estructura dejando una ventana que constituye de esta manera un canal térmico. También existen campos térmicos producidos por cavidades de polietileno en las que se emplea la dispersión de los neutrones producidos por una fuente alojada en su interior [8]. En nuestro caso se incluirá también una cavidad que permite la irradiación de equipos en su interior, haciendo uso de las dispersiones elásticas que se producen dentro del grafito, además de la moderación, lo que da lugar a mayores tasas de fluencia manteniendo un alto grado de termalización y de homogeneidad del campo [9].

Se ha realizado un estudio de optimización de las dimensiones externas y de la cavidad interna de la pila de grafito para obtener las mayores tasas de fluencia posible, junto con el campo más termalizado y más homogéneo posible y, finalmente, esto ha dado lugar a una pila de 150 cm de alto por 150 cm de lado y 180 cm de fondo con una fuente de Am-Be de 185 GBq, que presenta una tasa de emisión de $1,1 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ y una cavidad de 30 cm x 30 cm de sección y 40 cm de profundidad [10]. La pila cuenta con una lámina de polietileno borado, PE-B, en uno de sus laterales para reducir la tasa de equivalente de dosis ambiental en esta cara, orientada hacia la puerta de acceso a la instalación. Esta configuración producirá tasas de fluencias en el orden de $400 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ en el interior de la cavidad, y de unos $55 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ en el exterior de la pila, y dará servicio tanto al CIEMAT como clientes externos, por ejemplo, para la calibración de dosímetros personales o de área en campo térmico o para la caracterización de su sistema de dosimetría personal neutrónica basado en detectores de trazas.

De esta manera quedarán prácticamente completados los campos de calibración propuestos por la norma ISO

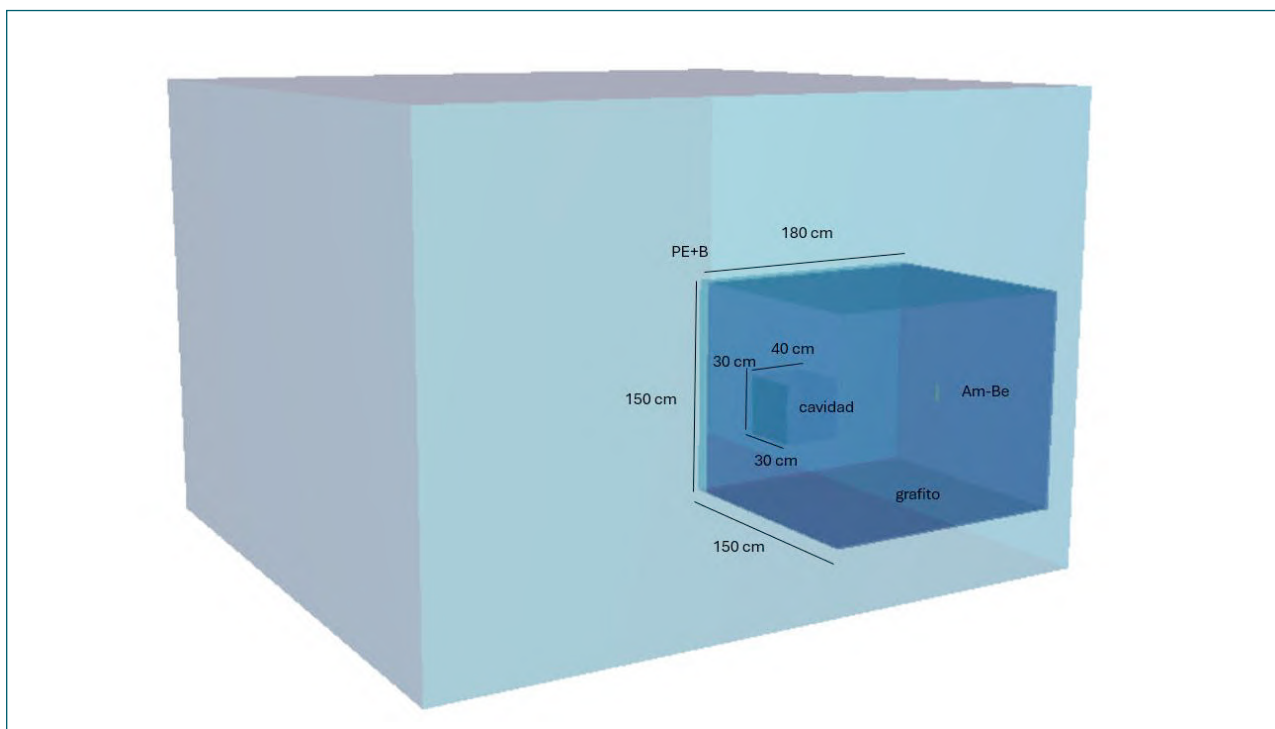


Figura 3. Esquema de la pila térmica de grafito que se está diseñando para producir un nuevo campo térmico en el LPN con sus dimensiones.

8529-1 y basados en fuentes isotópicas. Quedarían pendientes los haces monoenergéticos de neutrones, que necesariamente han de ser producidos en aceleradores.

REFERENCIAS

- [1] Guzman-García, K.A., Mendez-Villafañe, R., Vega-Carrillo, H.R., 2015. Neutron field characteristics of Ciemat's Neutron Standards Laboratory, Appl. Radiat. and Isotopes, 100.
- [2] International Organization for Standardization, 2021. Neutron reference radiations fields – Part 1: Characteristics and Methods of Production, ISO 8529-1:2021, (Geneva, Switzerland).
- [3] International Organization for Standardization, 2021. Reference neutron radiations – Part 2: Calibration fundamentals of radiation protection devices related to the basic quantities characterizing the radiation field, ISO 8529-2:2000, (Geneva, Switzerland).
- [4] International Organization for Standardization, 2021. Neutron reference radiations fields – Part 3: Calibration of area and personal dosimeters and determination of their response as a function of neutron energy and angle of incidence, ISO 8529-1:2023, (Geneva, Switzerland).
- [5] Méndez, R., Gómez-Ros, J.M., Thomas, D.J., Thompson, A.K., Bedogni, R., 2021. Revision of the ^{252}Cf and D_2O -moderated ^{252}Cf reference neutron fields for use in radiation protection dosimetry, Radiat. Phys. and Chem., 184.
- [6] N J Roberts et al. 2011. Radionuclide neutron source characterization techniques Metrologia 48 S239
- [7] Rodríguez Barquero, L., Los Arcos, J.M., Grau Malonda, A. García-Toraño, E. 1994. LSC standardization of ^{45}Ca by the CIEMAT/NIST efficiency tracing method, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 339.
- [8] Cevallos-Robalino, L. E., García-Fernández, G. F., Lorente, A., Gallego, E., Ibañez-Fernández, S., Vega-Carrillo, H. R., Guzmán-García, K. A., 2020. Monte Carlo design and experimental characterization of a moderator device to produce a thermal neutron source from a $^{241}\text{Am}/^{9}\text{Be}$ source, Radiat. Phys. and Chem., 168.
- [9] Vykydal, Z., Králík, M., Jančář, A., Kopecký, Z., Dressler, J., Veškrna, M., 2015. Characterization of the graphite pile as a source of thermal neutrons, Radiat. Phys. and Chem., 116.
- [10] Méndez, R. Campo, X., Rivera, S., Gonzalez, F. Development of a graphite pile to produce a neutron thermal field at the CIEMAT - Neutron Standards Laboratory. Sent to Radiat. Phys. and Chem. ■