

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

На правах рукописи

Куликов Сергей Александрович

ХОЛОДНЫЕ ЗАМЕДЛИТЕЛИ НЕЙТРОНОВ НА ОСНОВЕ ТВЕРДЫХ
ДИСПЕРСНЫХ ВОДОРОДСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛОВ

01.04.01 Приборы и методы экспериментальной физики

Диссертация на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Дубна 2017

Содержание

Введение	5
Глава 1. Анализ материалов и технологий их применения в холодных замедлителях на источниках нейтронов в мире	26
1.1. Замедлители для получения холодных нейтронов.....	26
1.2. Замедляющие материалы и их использование в холодных замедлителях нейтронов.	30
Выводы по главе 1.....	54
Глава 2. Исследования водородсодержащих материалов для холодных замедлителей нейтронов.	55
2.1. Изучение радиационно-стимулированных процессов в водородсодержащих материалах при низких температурах при облучении быстрыми нейтронами.	56
2.1.1. Описание установки УРАМ-2 и постановка экспериментов.	57
2.1.2. Основные параметры установки УРАМ-2	62
2.1.3. Обработка и анализ полученных экспериментальных данных.....	62
2.1.3.1. Методика обработка данных.	63
2.1.3.2. Результаты обработки и анализа экспериментальных данных.	64
2.2. Экспериментальные работы по изучению давления на стенки камеры при облучении материала холодного замедлителя в твердом состоянии.	75
2.2.1. Экспериментальные работы на установке УРАМ-3М на реакторе ИБР-2.	76
2.2.1.1. Описание установки.	77
2.2.1.2. Основные параметры установки и измерительная система.	82
2.2.1.3. Проведение экспериментов и анализ экспериментальных данных....	84
2.2.2. Экспериментальные работы с мезитиленом и его смесью с m-ксилолом на установке УРАМ-3 на микротроне МТ-25.....	89

2.2.2.1. Описание установки и методика измерений.....	90
2.2.2.2. Проведение экспериментов и анализ полученных экспериментальных данных.	94
Выводы по главе 2.	101
Глава 3. Численный расчет и оптимизация конфигурации комплекса комбинированных замедлителей ИЯУ ИБР-2	104
3.1. Исследование замедляющей способности водородсодержащих материалов на установке JESSICA.	104
3.1.1. Описание установки JESSICA.	108
3.1.2. Анализ результатов экспериментов с замедляющими материалами на установке JESSICA.	112
3.1.2.1. Лед воды, метан и гидрат метана.	112
3.1.2.2. Мезитилен и его смесь с м-ксилолом.	113
3.2. Замедление нейтронов на мезитилене при низкой температуре.	117
3.3. Обоснование выбора материала и конфигурации холодных замедлителей комплекса замедлителей для ИЯУ ИБР-2.	120
3.3.1. Анализ рассмотренных и изученных материалов. Выбор замедляющего материала для холодных замедлителей нейтронов ИЯУ ИБР-2.....	121
3.3.2. Задачи по формированию спектра нейтронов с заданными требованиями для спектрометров на выведенных пучках ИЯУ ИБР-2.	123
3.3.3. Анализ потенциальных возможностей увеличения выхода холодных нейтронов.	129
3.3.4. Расчет энерговыделения в элементах конструкций комплекса комбинированных замедлителей направления 7, 8, 10 и 11 пучков.....	133
Выводы по главе 3.	134
Глава 4. Концепция комбинированного замедлителя ИЯУ ИБР-2 для 7, 8, 10 и 11 пучков.	137

4.1. Холодный замедлитель нейтронов.	141
4.1.1. Результаты экспериментов на полномасштабном испытательном стенде.	143
4.1.2. Разработка холодного замедлителя для 7, 8 и 10 пучков ИЯУ ИБР-2.	149
4.1.3. Криогенные трубопроводы.	157
4.1.4. Аппаратно-программное обеспечение холодного замедлителя нейтронов.	160
4.1.5. Температурные и гидравлические характеристики холодного замедлителя.	164
4.1.5.1. Гидравлические (гидродинамические) характеристики гелиевого тракта холодного замедлителя.	164
4.1.5.2. Температурные характеристики холодного замедлителя.....	165
4.1.6. Измерение спектров нейтронов и уровня загрузки камеры холодного замедлителя.	167
4.1.6.1. Методика проведения измерений.	167
4.1.6.2. Загрузка камеры холодного замедлителя и спектры нейтронов.....	170
4.1.7. Анализ смеси после работы холодного замедлителя.....	172
4.1.8. О деградации спектра нейтронов.	176
4.2. Анализ результатов пуска комбинированного замедлителя нейтронов ИЯУ ИБР-2.	179
Выводы по главе 4.	184
Заключение.....	187
Литература.....	191

Введение

Современные источники нейтронов, предназначенные для проведения экспериментов по физике конденсированных сред, в основном, включают в себя ядерные реакторы и источники нейтронов на основе ускорителей (spallation). В них образуются высокоэнергетические - "быстрые" нейтроны с энергией $\sim 2,5$ МэВ и выше. Для проведения экспериментов по изучению конденсированных сред [1, 2], полученные от первичных источников нейтроны необходимо предварительно замедлить, т.е. уменьшить энергию на несколько порядков - до энергий эВ-диапазона ("тепловые" нейтроны, $\sim 0,025$ эВ, длина волны - единицы Ангстрем) и до энергий < 5 мэВ ("холодные" нейтроны, с длиной волны от 4 до 30 Å), создав таким образом источники тепловых и холодных нейтронов для экспериментов на выведенных пучках нейтронов.

Для замедления нейтронов до тепловых энергий используют, как правило, воду при комнатной температуре. Наличие атомов водорода, близких по массе с нейтронами, позволяет нейтронам при многократном взаимодействии приходиться к квазиравновесному состоянию с температурой чуть выше температуры среды. В таком замедлителе, получаемое распределение энергий нейтронов Максвелла-Больцмана, будет содержать только около 2% нейтронов с длиной волны более 4 ангстрем [3]. Для получения большего количества холодных нейтронов необходимо "сдвинуть" максимум спектра нейтронов в большие длины волн (меньшие энергии). Для этого необходимо использовать водородсодержащие материалы, способные работать и замедлять нейтроны при температуре материала $\sim 20 - 100$ К (рисунок 1) [4].

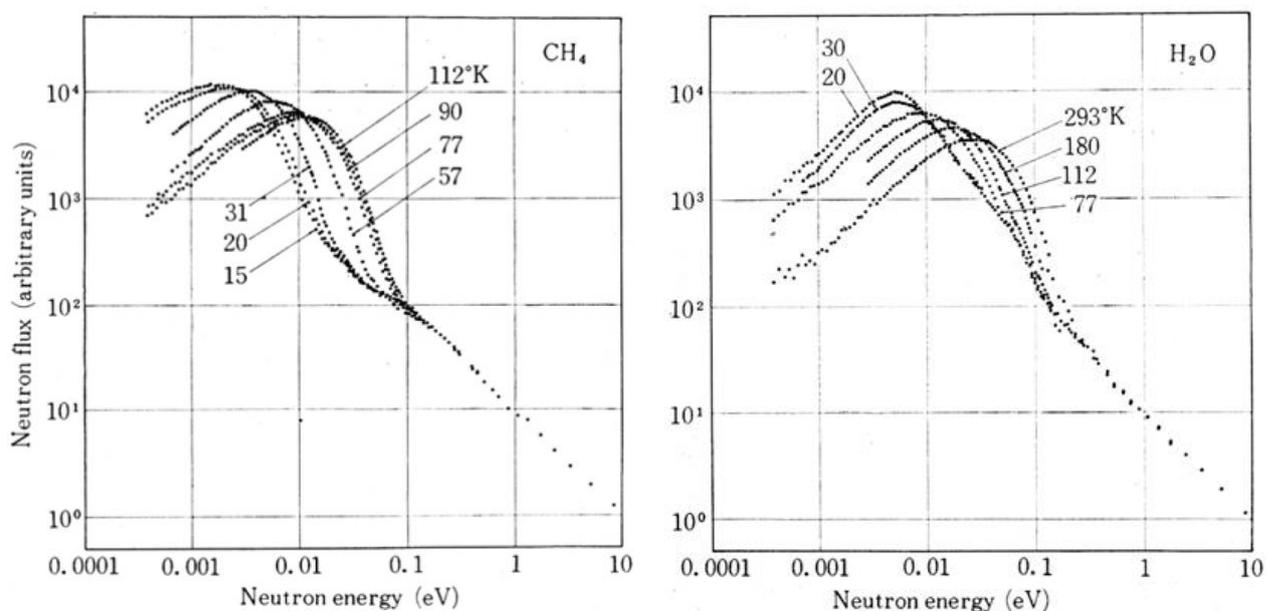


Рис. 1. Сдвиг максимума спектра нейтронов в метановом и водяном замедлителях при их охлаждении.

Для создания источника нейтронов с более широким диапазоном энергий необходимо объединение холодного и теплого замедлителей в комбинированный замедлитель. Подобный комбинированный (би-спектральный) замедлитель описан в данной работе, он создан в 2012 г и успешно работает на ИЯУ ИБР-2. В настоящее время комбинированный замедлитель также проектируется для источника нейтронов на основе ускорителя ESS в Европе [5, 6].

К возможности применения холодных нейтронов при проведении экспериментов по изучению конденсированных сред на выведенных пучках проявляется большой интерес. Поэтому, на всех современных источниках нейтронов, таких как FRM-II (Германия), IBR-2 (Россия), реактор в ILL (Франция), OPAL (Австралия), ISIS (Великобритания), JSNS (Япония), SINQ (Швейцария), SNS (США) и др., установлены десятки нейтронных спектрометров, использующих холодные нейтроны в проводимых на них исследованиях (спектрометры малоуглового рассеяния, рефлектометры, спектрометры поляризованных нейтронов, дифрактометры) [7 - 15]. Сочетание в применении тепловых и холодных нейтронов от

комбинированного замедлителя в нейтронографических экспериментах позволяет расширить диапазон векторов рассеяния и переданной энергии. В частности, они применяются в экспериментах по изучению низкоэнергетических фононных и спиновых волн в кристаллах, процессов диффузии в жидкостях, многокомпонентных систем, поверхностной молекулярной динамики, дефектов в кристаллах, магнитных материалов и дефектов магнитной структуры, квантовых жидкостей, полимеров, биологических материалов, крупномасштабных структур, тонких пленок, а также для определения положения легких атомов в молекулах и т.д. [10, 16, 17]. Применение холодных нейтронов особенно эффективно для спектрометров малоуглового рассеяния, позволяя изучать микроскопические структуры, большие молекулы, полимеры, белки, наночастицы и т.п. [18]. Холодные нейтроны применяются для проведения нейтронографических экспериментов в реальном времени, например, для изучения химических реакций в твердой фазе. Применение холодных нейтронов при изучении магнитных структур, за счет рассеяния на большие углы, позволяет увеличить разрешающую способность дифрактометров. Например, на рисунке 2 представлен дифракционный спектры $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$ измеренные за одинаковое время при тепловом и холодном замедлителях [19].

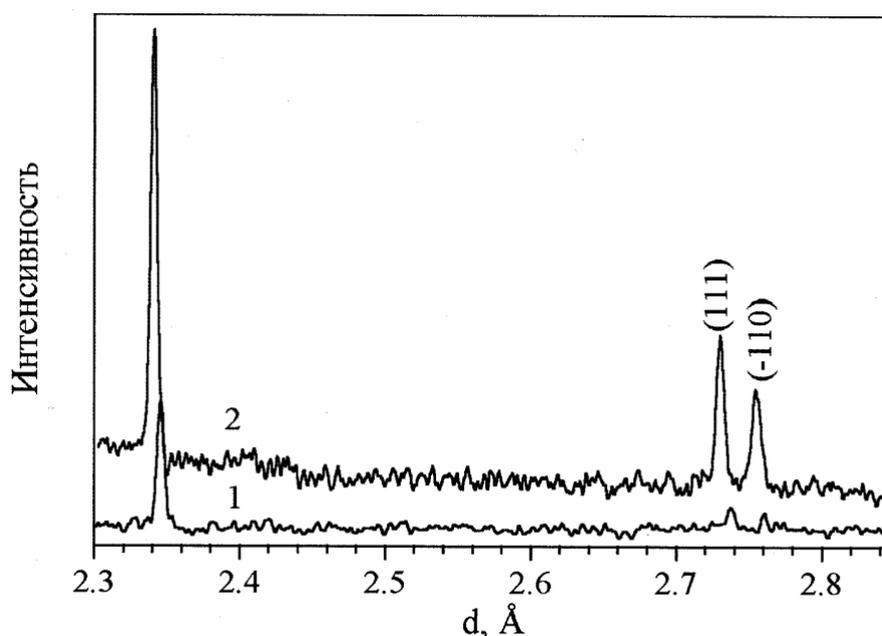


Рис. 2. Дифракционные спектры $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$ (температура образца 8К) в области больших d_{hkl} , измеренные за одинаковое время на тепловом замедлителе (кривая 1) и холодном замедлителе (кривая 2). Дифракционные пики (111) и (-110) связаны с ферромагнитным упорядочением магнитных моментов Mn.

Использование холодных нейтронов открывает новые возможности для нейтронной радиографии и томографии, например, позволяет улучшить разрешение получаемых картин [20].

Первые источники холодных нейтронов появились еще в конце 50-х годов, тогда же были проведены первые эксперименты с холодными нейтронами. И если при создании и эксплуатации тепловых замедлителей не появляется серьезных технических проблем, то создание источников холодных нейтронов является сложной инженерно-физической задачей, требующей детального изучения материалов, аналитического и численного моделирования, применения оригинальных технологических решений. Оснащение источника нейтронов холодным замедлителем выводит изучение конденсированных сред на новый уровень.

В таблице 1 приведены источники холодных нейтронов на исследовательских ядерных реакторах (некоторые из них неоднократно менялись в процессе эксплуатации и в настоящее время уже выведены из эксплуатации).

Таблица 1. Источники холодных нейтронов на ядерных реакторах.

пп.	Источник нейтронов	W, МВт	Исследовательский центр/город, страна	работа источника (начало работы холодного замедлителя)	Замедляющий материал, температура	Плотность потока нейтронов* (н/см ² /сек)

1	BEPO [16]	6.5	Harwell, Великобритания,	1956-1968	H ₂ /D ₂	2x10 ¹²
2	IRT-M [21, 22]	4	Kurchatov Institute, Москва	1957	C ₃ H ₈ , 90K	6x10 ¹³
3	EL3 [16, 23]	17,5	Saclay, Франция	1959	H ₂ /D ₂ (20K)	3x10 ¹³
4	BRR [24, 25]	10	KFKI, BNC, Budapest, Hungary	1959 (2002)	H ₂	2,3x10 ¹⁴
5	DIDO [16]	15	Harwell, Великобритания	1960-1990	H ₂ /D ₂	2x10 ¹⁴
6	R-2 [1]	50	Студсвик, Швеция	1960	H ₂	4x10 ¹⁴
7	FRJ2 [1, 16]	15/ 23	FZ Juelich, Германия	1962/72	H ₂ /D ₂	8x10 ¹³ /2x10 ¹⁴
8	FIR1 [16, 26]	0,1	Helsinki, Финляндия	1964-72	H ₂ /CH ₄ (78K)	1x10 ¹³
9	KUR [27]	5	Kyoto University, Japan	1964	H ₂	3x10 ¹³
10	HFIR [28]	100	ORNL, Oak Ridge, США	1966 (2007)	H ₂	1,5x10 ¹⁵
11	HERALD [16, 29]	5	AWR, Amsterdam, Голландия	1967-71	H ₂ /D ₂	5x10 ¹³
12	FR2 [16]	44	Karlsruhe, Германия	1968-1981	H ₂	9,5x10 ¹³
13	TRIGA Mark II [30, 31]	0,25	"Jozef Stefan" Institute, Ljubljana, Yugoslavia	(1969)	CH ₄ , 103K	~10 ¹²
14	NBSR [1]	20	NIST, США	1969 (1987/1995 /2002)	D ₂ O/H ₂	3x10 ¹⁴
15	HFR [1, 32, 33]	57	ILL, Гренобль, Франция	1971/95 (1972/1985 /1987)	D ₂	1,2x10 ¹⁵
16	DR3 [16, 34, 35]	10	Riso, Дания	1973-2000 (1975)	H ₂ (38K)	3,5x10 ¹³
17	BER-II [35, 36]	10	HZB, Berlin,	1973	H ₂ (25-	2x10 ¹⁴

			Germany	(1988)	35К)	
18	Galileo [37, 38]	5	CAMEN, Pisa, Italy	(1973)	C ₃ H ₈ , 90К	10 ⁵ (в выведенном пучке)
19	JEEP-2 [39]	2	IFE, Kjeller, Norway	1975	H ₂	2,2 x 10 ¹³
20	HFBR [1, 40, 41]	60	BNL, Брукхавен, США	(1980)	H ₂	9x10 ¹⁴
21	ORPHEE [42, 43]	14	Сакле, Франция	1980	H ₂ (20К)	3x10 ¹⁴
22	IBR-2 [44, 45]	2 (им.)	ОИЯИ, Дубна, Россия	(1993) и (1999), (2012)	СН ₄ С ₉ H ₁₂	~ 10 ¹² / и 2 10 ¹² ~ 10 ¹² только холод. нейтроны (10 ¹⁵ в пике имп.)
23	WWM-R [46]	16	ПИЯФ, Гатчина	(1985)	D ₂ +H ₂	2 x 10 ¹⁴
24	FRG-1 [47]	5	GKSS, Geesthacht	(1988)	H ₂	1,3x10 ¹⁴
25	HWRR [48]	10	IAE, Beijing, Китай	(1988)	H ₂	1,3x10 ¹⁴
25	JRR-3M [43]	20	JAERI, Tokai, Japan	1990	H ₂ (20К)	3x10 ¹⁴
26	TRIGA Mark II [49]	0,5	Cornell University, New York, USA	(1990)	C ₉ H ₁₂ , 40К	10 ¹²
27	TRIGA Mark II [50, 51]	1	NETL, The University of Texas at Austin, Texas, USA	1992	C ₉ H ₁₂ , 28К	1x10 ¹³
28	HANARO [52]	30	KAERI, S. Korea	1997	H ₂	2x10 ¹⁴
29	HOR [53]	2	Delft, Голландия	2000 (2010)	H ₂	10 ¹⁴
30	FRM-II [54, 55]	20	TUM, Munchen, Germany	2004	D ₂ (25К)	8x10 ¹⁴
31	OPAL [56]	20	ANSTO, Australia	2006	D ₂ (24К)	3x10 ¹⁴
32	CMRR [57]	20	China Mianyang Research Reactor, INPC, China	(2013)	H ₂	2,4×10 ¹⁴ (тепловой) и 10 ⁹ (холодный)

() - обозначены годы ввода в эксплуатацию холодных источников; *) - плотности потока даны для активной зоны, в отдельных, обозначенных случаях, с поверхности замедлителя или на образце

В таблице 2 представлены холодные замедлители нейтронов, установленные на источниках на основе ускорителей. Как правило, такие источники импульсные, поэтому одно из основных отличий при создании такого замедлителя от замедлителей на реакторах - это учет ширины импульса, хотя в современном проекте Европейского источника нейтронов на основе ускорителя ESS, планируется большая ширина импульса [6] и введение в замедлитель дополнительного поглотителя, сужающего ширину импульса, уже не требуется.

Таблица 2. Холодные замедлители на источниках нейтронов на основе реакций испарения с ускорителями протонов.

пп	Источник нейтронов на основе ускорителя протонов	Исследовательский центр/ страна	Энергия протонного пучка, МэВ	Сила тока, мкА	Частота импульсов, Гц	Замедляющий материал, температура	Начало работы источника
1	ZING-P' [58]	Argonne, США	500	3	30	H ₂	1977
2	KENS [59, 60]	КЕК, Япония	500	7	20	CH ₄	1980
3	ISIS [61]	RAL, Великобритания	800	300	50	CH ₄ , 100К/ H ₂ , 20К	1985
4	IPNS [59]	Argonne, США	450	15	30	CH ₄ , 100К/ CH ₄ , 25К	1985
5	Lujan Center [62]	LANSCE, США	800	100	20	(два замедлителя) H ₂	1985
6	SINQ [63, 64]	PSI, Швейцария	590	2000	(непрерывный)	D ₂ , 25К	1996
7	SNS [65]	Oak Ridge, США	1000	1400	60	(2 замедлителя) H ₂ , 19К	2007
8	ISIS TS2 [66]	RAL, Великобритания	800	60	10	CH ₄ , 26К/ H ₂ , 20К	2008
9	JSNS [67]	MLS, J-PARC, Япония	3000	333	25	(3 замедлителя) H ₂	2008

Как видно из приведенных таблиц, наибольшее количество холодных замедлителей было создано на основе жидкого водорода. Кроме того, применялись и такие материалы как дейтерий, метан, мезитилен и др. В каждом конкретном случае разрабатывался индивидуальный проект замедлителя под конкретный источник, который должен был обеспечивать значительное увеличение выхода холодных нейтронов и быть безопасным в использовании.

В настоящее время, кроме представленных источников с замедлителями, для получения холодных нейтронов, осуществляются еще, по крайней мере, два больших проекта таких источников нейтронов. Это комбинированные замедлители для строящегося Европейского источника нейтронов ESS [6] и холодные замедлители для реактора ПИК [68].

Создание холодных замедлителей в ОИЯИ началось с исследований на реакторе ИБР-1 в 60-х годах прошедшего столетия, когда исследовался выход холодных нейтронов из парафина и этилового спирта, охлаждаемых до азотных температур с холодным отражателем из бериллия [69]. Также проводились дополнительные исследования с холодным бериллиевым отражателем, позволившим увеличить выход холодных нейтронов [70]. Далее работы проводились на реакторе ИБР-30, где исследовались гребенчатые замедлители и холодные замедлители со льдом воды [71]. Первый холодный замедлитель в ЛНФ на основе твердого метана для формирования потока холодных нейтронов для изучения конденсированных сред на выведенных пучках был создан на реакторе ИБР-2 [44], но из-за проблем с радиационной стойкостью твердого метана под облучением он был заменен на тепловой водяной гребенчатый замедлитель.

В период подготовки к модернизации реактора ИБР-2 в начале 2000-х была выдвинута концепция и принято решение о разработке комплекса комбинированных замедлителей для оснащения реактора

унифицированными для всех направлений исследовательских пучков
холодными замедлителями.

Цель и задачи работы.

Цель:

1. Разработка нового направления в создании холодных замедлителей нейтронов на основе твердых дисперсных водородсодержащих материалов для высокоинтенсивных источников нейтронов.
2. Разработка метода получения медленных нейтронов в широком диапазоне длин волн для высокопоточных источников нейтронов с мультидисциплинарным набором экспериментальных установок для изучения конденсированных сред на выведенных пучках.

Задачи:

1. Детальное исследование водородсодержащих материалов для использования в холодных замедлителях нейтронов (на стендах и экспериментальных установках: УРАМ 2, 3 и 3М, ДИН-2ПИ, ОИЯИ; JESSICA FZ-Juelich, Germany). Анализ полученных данных и выбор материала, наиболее подходящего для холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2 по совокупности следующих параметров: замедляющая способность, радиационная стойкость, возможность работать в широком диапазоне температур, а также безопасность и технологичность.
2. Разработка способа и технологии загрузки предложенного в данной работе материала в камеру холодного замедлителя при низких температурах через биологическую защиту (на примере ИЯУ ИБР-2).
3. Разработка и создание вне радиационной зоны полномасштабного экспериментального стенда холодного замедлителя с технологическими системами и системой контроля основных параметров с целью:
 - а) экспериментального исследования возможности технической реализации выбранного технологического решения по использованию материала для холодных замедлителей ИЯУ ИБР-2;
 - б) разработки и создания технологической системы и системы контроля основных параметров холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2.

4. Разработка конфигурационного расположения и численное моделирование комбинированного замедлителя нейтронов для ИЯУ ИБР-2.
5. Создание и исследование основных свойств дисперсного водородсодержащего холодного замедлителя и комбинированного замедлителя нейтронов для выведенных пучков ИЯУ ИБР-2.
6. Исследование эффективности работы комбинированного замедлителя на примере нескольких спектрометров ИЯУ ИБР-2.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из Введения, 4-х глав, Заключения и списка используемых источников. В конце каждой главы сформулированы отдельные выводы. Полный объем диссертации составляет 208 страниц и включает в себя 124 рисунка, 15 таблиц и список из 196 библиографических источников.

В первой главе представлен анализ замедляющих нейтроны материалов и технологий их использования в криогенных замедлителях на источниках нейтронов в мире. Показаны проблемы при использовании водородсодержащих материалов в холодных замедлителях нейтронов в твердом состоянии.

Вторая глава посвящена анализу данных по материалам, перспективным для холодных замедлителей на ИЯУ ИБР-2. Рассматриваются такие параметры как количество атомов водорода (концентрация) в единице объема и наличие низколежащих уровней возбуждения у молекул при низких (20-30К) температурах. Анализируются результаты экспериментов по изучению радиационной стойкости данных материалов при облучении быстрыми нейтронами, гамма квантами и электронами на облучательных установках УРАМ-2, 3, 3М ИЯУ ИБР-2 ЛНФ и микротроне МТ-25 Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

В третьей главе приводятся результаты проведенных экспериментов на спектрометрах неупругого рассеяния ДИН-2ПИ и НЕРА ИЯУ ИБР-2 по изучению фазовых состояний мезитилена и его смеси с м-ксилолом, и влияния температуры данных материалов на выход холодных нейтронов. Делается вывод о перспективности использования ароматических углеводородов для холодных замедлителей нейтронов ИЯУ ИБР-2. Описывается разработанная концепция комплекса комбинированных замедлителей ИЯУ ИБР-2, состоящего из тепловых и холодных частей, и определяются его параметры для формирования спектров нейтронов с заданными требованиями для шести спектрометров, расположенных на выведенных пучках: 7, 8, 10, 11. Отдельное внимание уделяется результатам проведения экспериментов по замедлению нейтронов водородсодержащими материалами при низких температурах на экспериментальной установке JESSICA (водородом, метаном, льдом воды, тетрагидрофураном, гидратом метана, мезитиленом) и проверке данных библиотек сечений для проведения численного моделирования транспорта нейтронов. Приводятся результаты Монте-Карло моделирования транспорта нейтронов с применением указанных материалов. Приводятся и анализируются результаты расчета тепловыделения в холодных замедлителях нейтронов ИЯУ ИБР-2 под воздействием излучения.

В четвертой главе приводятся результаты экспериментов на разработанном полномасштабном испытательном стенде холодного замедлителя по загрузке камеры шариками из смеси мезитилена и м-ксилола. Описывается конструкция и параметры комбинированного замедлителя для 7, 8, 10 и 11 пучков. Приводятся способы контроля параметров холодного замедлителя посредством разработанного программно-аппаратного комплекса. Анализируются результаты пуска холодного замедлителя (температуры, теплопритоки, спектры нейтронов, деградация спектра, анализ слитой после облучения смеси и др.). Приводятся измеренные спектры нейтронов,

полученные при работе с комбинированным замедлителем на спектрометрах, расположенных на 7, 8, 10 и 11 пучках ИЯУ ИБР-2.

Научная новизна и практическая ценность работы.

- Разработано новое направление в создании холодных замедлителей нейтронов на основе твердых дисперсных водородсодержащих материалов для высокоинтенсивных источников нейтронов.
- Экспериментально исследованы водородсодержащие материалы перспективные для использования в холодных замедлителях нейтронов при низких (20-30 К) температурах: радиационная стойкость и радиационные эффекты, возможные рабочие температуры, эффективность замедления нейтронов.
- Впервые использована не взрывоопасная смесь ароматических углеводородов в качестве твердого замедляющего материала для холодного замедлителя нейтронов, позволяющая работать в широком диапазоне температур от 30 до 150К.
- Впервые разработан и создан холодный замедлитель для ИЯУ ИБР-2 с дисперсным способом загрузки камеры холодного замедлителя. Замедлитель способен непрерывно работать до 10 суток и обеспечивать поток холодных нейтронов 2×10^{12} н/см²/сек, что дает увеличение потока холодных нейтронов до 13 раз по сравнению с плоским водяным замедлителем комнатной температуры. Показана возможность охлаждения камеры замедлителя тем же холодным гелием, проходящим сквозь загруженные в камеру замедлителя шарики, до температуры 30К при работающем на мощности 2 МВт реакторе. Разработаны системы контроля загрузки камеры холодного замедлителя.

- Впервые разработан и создан комбинированный замедлитель нейтронов для исследовательской ядерной установки. Его применение дает более гибкий подход к использованию нейтронов ИЯУ ИБР-2. Он позволяет получить необходимый спектр нейтронов на выведенных пучках (тепловых, холодных или смешанных) для новых и модернизируемых спектрометров в зависимости от требований экспериментаторов. Создание комбинированного замедлителя с холодным замедлителем в его составе в ЛНФ ОИЯИ выводит ИЯУ ИБР-2 по своим характеристикам в число лидирующих источников мира, предназначенных для нейтронных исследований конденсированных сред на выведенных пучках.

Основные выносимые на защиту положения:

1. Разработка нового направления в создании холодных замедлителей нейтронов на основе твердых дисперсных водородсодержащих материалов для высокоинтенсивных источников нейтронов.
2. Результаты исследований радиационных эффектов в твердых водородсодержащих материалах при низких температурах (меньше 35 К), которые определяют условия их использования в холодных замедлителях интенсивных источников нейтронов, в частности:
 - методика определения и величины выделившейся энергии в спонтанных и индуцированных реакциях рекомбинаций радикалов в твердых водородсодержащих веществах после облучения быстрыми нейтронами;
 - определение предельной величины давления твердого метана на стенки камеры при облучении быстрыми нейтронами.
3. Обоснование применимости смеси мезитилена и м-ксилола в твердом состоянии в качестве замедляющего нейтроны материала холодного замедлителя в широком диапазоне температур от 25 до 150К.

4. Разработка и создание эффективного и безопасного источника холодных нейтронов на основе ароматических углеводородов для исследовательской ядерной установки ИБР-2.
5. Разработка и создание комбинированного замедлителя (с тепловой и холодной частями) - решение проблемы получения спектра нейтронов в широком диапазоне длин волн для источника нейтронов с мультидисциплинарным набором экспериментальных методик для изучения конденсированных сред на выведенных пучках нейтронов.

Личный вклад автора.

Личное участие автора в работах, составляющих основу диссертации, является определяющим. Автор принимал непосредственное участие в разработке и создании концепции и технического решения комплекса комбинированных замедлителей нейтронов модернизированной ИЯУ ИБР-2 для изучения конденсированных сред на выведенных пучках. Им лично проведено Монте-Карло моделирование комбинированных замедлителей нейтронов ИЯУ ИБР-2 и произведены расчеты тепловой нагрузки на холодные замедлители нейтронов. Полученные результаты легли в основу технического задания на проектирование комплекса замедлителей ИЯУ ИБР-2. Автор участвовал в экспериментах, численном моделировании, обработке и интерпретации экспериментальных данных по исследованию замедляющей способности различных материалов при варьировании температуры и апробации созданных библиотек с сечениями рассеяния нейтронов в водородсодержащих материалах при низких температурах на установке JESSICA (Германия); в постановке экспериментов, разработке и создании двух экспериментальных установок УРАМ на реакторе ИБР-2, облучательной установки на микротроне МТ-25, проведении экспериментов, обработке и интерпретации данных по изучению радиационной стойкости водородсодержащих твердых материалов, перспективных для холодных замедлителей нейтронов. При непосредственном участии автора

осуществлено проектирование основных узлов полномасштабного экспериментального стенда холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2; разработаны и созданы системы контроля параметров и процесса загрузки шарикового холодного замедлителя; на ИЯУ ИБР-2 запущен в опытную эксплуатацию комбинированный замедлитель нейтронов с холодным шариковым замедлителем в его составе и исследованы его свойства. Автор принимал активное участие в международном сотрудничестве по проектам создания перспективных замедлителей нейтронов для высокоинтенсивных источников нейтронов.

Апробация диссертационной работы

Результаты диссертации были представлены автором более чем на 30 международных и национальных конференциях, совещаниях и семинарах, в том числе:

- International workshop on Advanced cold moderators, ACoM VI, VIII, (Juelich, Germany, 2002; Bariloche, Argentina, 2006);
- 10th 'Tihany' Symposium on Radiation Chemistry, Sopron, Hungary, 2002;
- XVI - XXI Meetings of the "International Collaboration on Advanced Neutron Sources" - ICANS, (Düsseldorf-Neuss, Germany, 2003; New Mexico, USA, 2005; Dongguang, China, 2007; Greendelvald, Switzerland, 2010; Bariloche, Argentina, 2012; Mito, Japan, 2014);
- 4-th International Workshop "Ultra Cold & Cold Neutrons. Physics & Sources", S.Petersburg, 2003;
- 11th Physical Chemistry Conference, Timisoara, Romania, 2003;
- International Conference "Research Reactors in the 21st Century", Moscow, Russia, 2006;
- The Research coordination meeting on Intense Neutron Beams and their Applications, IAEA, Hokkaido University, Hokkaido, Japan, 2007;

- 9-th International Balkan Workshop on Applied Physics, Constanta, Romania, 2008;
- International Conference on Neutron and X-ray Scattering, Kuala Lumpur, Malaysia, 2009;
- XXI-XXII Совецание по использованию рассеяния нейтронов в исследованиях конденсированного состояния – РНИКС (г. Москва, РИЦ «Курчатовский институт», 2010 г; г. Гатчина, ПИЯФ, 2012);
- 5th European Conference on Neutron Scattering, Czech Republic, 2011;
- IAEA Technical Meeting on “Advanced Moderators to Enhance Cold Neutron Beam Production for Materials Research and Applications” Токаймура, Япония, 2011;
- SANS-YuMO user meeting, JINR, Dubna, 2012;
- International Conference on Neutron Scattering, ICNS, Edinburgh, UK, 2013;
- 3-d CNS Workgroup meeting, Гатчина, ПИЯФ, 2015;
- Research Coordination Meeting on Improved Production and Utilization of Short Pulsed, Cold Neutrons at Low-Medium Energy Spallation Neutron Sources. МАГАТЭ, Вена, 2014, 2016 и др.,

а также на научных семинарах Объединенного института ядерных исследований (Дубна), FZJ, ИКР, Юлих, Германия; JRC, Петтен, Голландия; European spallation source, Лунд, Швеция; ISIS, Лаборатории Резерфорда-Апплтона, Великобритания; Hokkaido University, Hokkaido, Japan; Centro Atomico Bariloche, Argentina.

Всего автором по теме диссертации опубликованы 48 работ, из которых 22 работы в изданиях, рекомендованных ВАК (19 статей в журналах, 2 патента на изобретение, 1 свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ).

1. С.А. Куликов (в соавторстве с Е.П. Шабалин и В.В. Мелихов); Study of fast neutron irradiation effects in cold moderator materials, , Письма в журнал «Физика элементарных частиц и атомного ядра» (Письма в ЭЧАЯ), 5, 114, 82-88, 2002
2. S. Kulikov (в соавторстве с Е. Shabalin, Е. Kulagin, V. Melikhov); Experimental study of spontaneous release of accumulated energy in irradiated ices, Radiation Physics and Chemistry, Elsevier, 67, 3-4, 315-319, 2003
3. S. Kulikov (в соавторстве с Е. Kulagin, V. Melikhov, Е. Shabalin); Radiation Effects In Cold Moderator Materials: Experimental Study of Accumulation and Release of Chemical Energy, Nuclear Instr. and Methods in Physics Research B, 215, 1-2, 181-186, 2004
4. С.А. Куликов (в соавторстве с Е.П. Шабалин, Е.Н. Кулагин, В.В. Мелихов); Радиационные эксперименты с водородсодержащими материалами на криогенной облучательной установке УРАМ-2 реактора ИБР-2, Атомная Энергия, 97, 3, 183-189, 2004
5. S. Koulikov (в соавторстве с К.N. Nunighoff, Ch. Pohl, V. Bollini, H. Conrad, D. Filges, F.Goldenbaum, et al); Ice moderator experiments at very low temperatures, European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei, 22, 519-528, 2004
6. S. Kulikov (в соавторстве с I К. Neuninghoff, Ch. Pohl, V. Bollini, A. Bubak, et al); Investigations of the neutron performance of a methane hydrate moderator Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 562, 565–568, 2006
7. S. Kulikov (в соавторстве с Е. Shabalin, А. Fedorov, Е. Kulagin, V. Melikhov, D. Shabalin); Experimental study of swelling of irradiated solid methane during annealing. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 266, 5126-5131, 2008
8. S. Koulikov (в соавторстве с К. Nuenighoff, Ch. Pohl, F. Cantargi, H. Conrad, D. Filges, H. Glueckler, F. Goldenbaum, R. Granada, G. Hansen, T. Matzerath, N. Paul, S. Petriw, H. Schaal, H. Soltner et al.); Neutron experiments with

- cryogenic methane hydrate and mesitylene moderators, *European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei*, 38, 115-123, 2008
9. S. Kulikov (в соавторстве с E. Shabalin); New Complex of Moderators for Condensed Matter Research at the IBR-2M Reactor. *Romanian Journal of Physics*, ISSN:1221-146X, Publishing House of the Romanian Academy, 54, 3-4, 361-367, 2009
 10. S.A. Kulikov (в соавторстве с S.A. Manoshin, A.V. Belushkin, E.P. Shabalin, K. Walther, C. Scheffzuek, V.V. Zhuravlev); Optimization of a moderator-neutron guide system for diffractometers of beam line 7A of the IBR-2M reactor. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 608, 3, 447-453, 2009
 11. S. A. Kulikov (в соавторстве с I. V. Kalinin, V. M. Morozov, A. G. Novikov, A. V. Puchkov, A. N. Chernikov, E. P. Shabalin); Measurement of Cold Neutron Spectra at a Model of Cryogenic Moderator of the IBR-2M Reactor. *Physics of Particles and Nuclei Letters*, Volume 7, Number 1, 57-60, 2010
 12. С.А. Куликов (в соавторстве с Т.Б. Петухова, Е.П. Шабалин); Регистрация и обработка измерительной информации на испытательном стенде шарикового криогенного замедлителя нейтронов – CMControl. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ, №2011612201, 16.03.11
 13. S. Kulikov (в соавторстве с V. Ananiev, A. Belyakov, A. Bogdzal, M. Bulavin, A. Verhoglyadov, E. Kulagin, A. Kustov, K. Mukhin, A. Lubimtsev, T. Petukhova, A. Sirotin, A. Fedorov, E. Shabalin, D. Shabalin, M. Sitnik, V. Shirokov); Test stand of the technological system of the cryogenic moderator with the control electronics. *Journal of Science and Arts*, No.3(16), pp. 339-346, 2011
 14. С. А. Куликов (в соавторстве с В. Д. Ананьев, А. А. Беляков, А. А. Богдзель, М. В. Булавин, А. Е. Верхоглядов, Е. Н. Кулагин, А. А. Кустов, А. А. Любимцев, К. А. Мухин, Т. Б. Петухова, А. П. Сиротин, А. Н. Федоров, Е. П. Шабалин, Д. Е. Шабалин, В. К. Широков); Испытательный

- стенд шарикового криогенного замедлителя нейтронов реактора ИБР-2. Приборы и техника эксперимента, №1, стр. 128-134, 2013
- 15.S. Kulikov (в соавторстве с А. Belyakov, М. Bulavin, К. Mukhin, Е. Shabalin, А. Verhoglyadov); Current status of advanced pelletized cold moderators development for IBR-2M research reactor. Physics of Particles and Nuclei, Letters, v.10, 2(179), pp. 230-235, 2013
- 16.С.А. Куликов (в соавторстве с Е.П. Шабалин); Оптимизация замедлителей ИБР-2. Атомная энергия. т. 115, №7, стр. 41-44, 2013
- 17.Куликов С.А.(в соавторстве с Федоров А.Н., Шабалин Е.П.); Криогенный дозатор шариков для холодного замедлителя нейтронов. Патент на изобретение, № 2496165, 2013
- 18.Куликов С.А. (в соавторстве с Ананьев В.Д., Беляков А.А., Булавин М.В., Верхоглядов А.Е., Кулагин Е.Н., Кустов А.А., Мухин К.А, Шабалин Е.П., Шабалин Д.Е.); Шариковый холодный замедлитель нейтронов, Патент на изобретение, №2492538, 2013
- 19.Куликов С.А. (в соавторстве с Ананьев В.Д., Беляков А.А., Булавин М.В., Верхоглядов А.Е., Мухин К.А., Шабалин Е.П.); Холодный замедлитель нейтронов на модернизированном реакторе ИБР-2. Первые результаты пуска. Журнал Технической Физики, т.84, №2, стр. 131-134, 2014
- 20.S. Kulikov (в соавторстве с V. Ananiev, А. Belyakov, М. Bulavin, Е. Kulagin, К. Mukhin, Т. Petukhova, А. Sirotin, D. Shabalin, Е. Shabalin, V. Shirokov, А. Verhoglyadov); The world's first pelletized cold neutron moderator at a neutron scattering facility. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 320, 70-74, 2014
- 21.S. Kulikov (в соавторстве с А. Belyakov, М. Bulavin, А. Chernikov, А. Churakov, , Е. Litvinenko, К. Mukhin, А. Petrenko, Т. Petukhova, А. Sirotin, Е. Shabalin, V. Shirokov, and А. Verhoglyadov); Control system of pelletized cold neutron moderator at the IBR-2 reactor. Physics of Particles and Nuclei Letters, Vol. 12, No. 6, pp. 773–777, ISSN 1547-4771, 2015.

- 22.С. А. Куликов (в соавторстве с С. В. Кожевников, В. Д. Жакетов, А. В. Петренко, М. В. Булавин, А. Е. Верхоглядов, Е. П. Шабалин);
Использование криогенного замедлителя на нейтронном рефлектометре РЕМУР. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. N. 1, с. 1–11, 2016

Глава 1. Анализ материалов и технологий их применения в холодных замедлителях на источниках нейтронов в мире

1.1. Замедлители для получения холодных нейтронов.

Наиболее эффективные замедляющие нейтроны материалы - это материалы, имеющие высокую плотность протонов. При каждом акте взаимодействия с протоном в материале замедлителя нейтрон в среднем теряет $1/2$ своей энергии. Помимо этого, протон имеет большое сечение рассеяния нейтронов. В процессе замедления нейтронов, как только их энергия станет меньше энергии связей в материале холодного замедлителя (\sim эВ), атомы не будут смещаться со своих позиций в результате столкновений с нейтронами, и энергия нейтронов будет уменьшаться за счет ее затрат на элементарные возбуждения твердого тела. Поэтому наличие низколежащих уровней возбуждения в молекулах вещества замедлителей, также как и количество атомов водорода в единичном объеме, является важным параметром при выборе материалов холодных замедлителей. Чем богаче спектр материала низкочастотными модами, тем больше нейтронов придет в термодинамическое равновесие со средой замедлителя. Этим, в частности, объясняется преимущество метана над водородом (рисунок 3) [72].

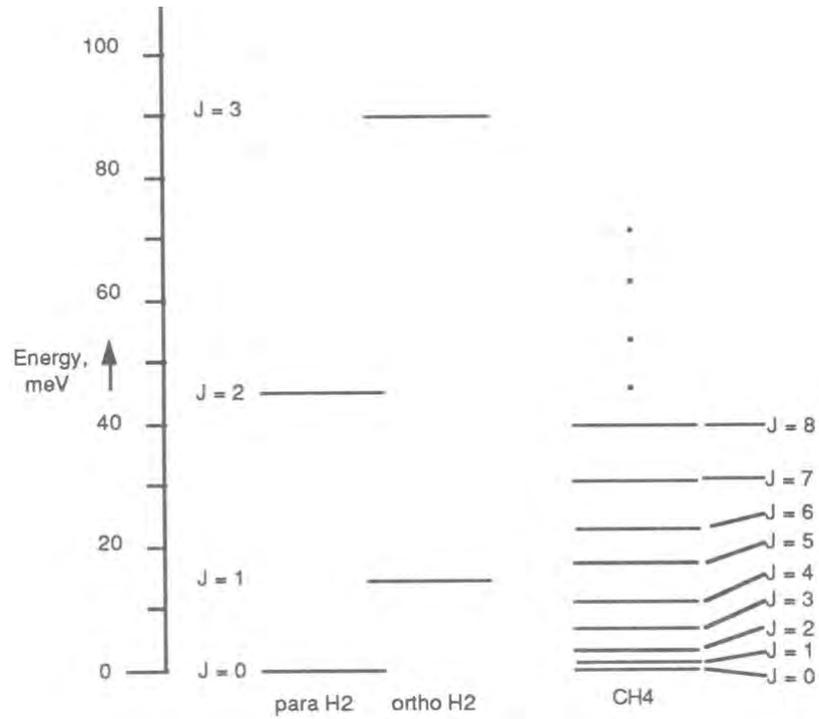


Рис. 3. Диаграмма ротационных энергетических уровней в водороде (пара и орто) и метане.

В термодинамическом равновесии в замедлителе нейтронов с температурой T спектр нейтронов $\Phi(E)$ подчиняется распределению Максвелла-Больцмана [3]:

$$\Phi(E) = \Phi g(E), \text{ где}$$

$$g(E) = E / (k_B T)^2 \cdot \exp(-E / kT).$$

Зависимость нейтронного спектра от температуры замедлителя показана на рисунке 4 [73–75].

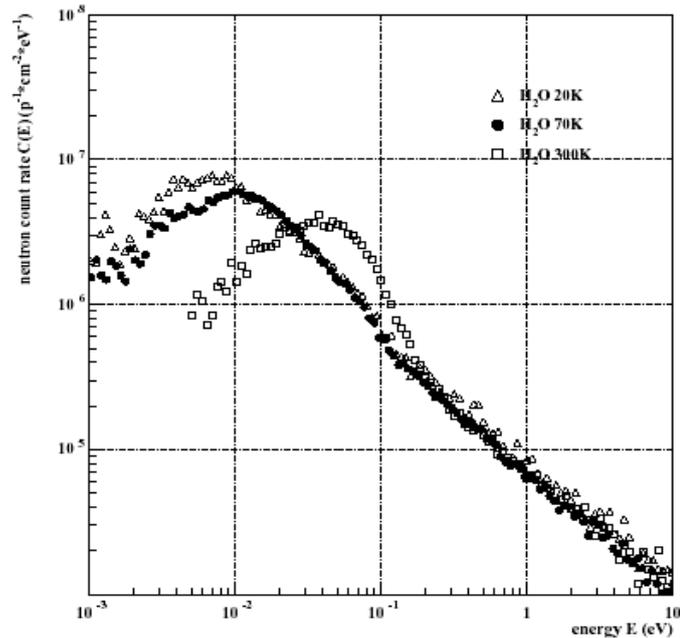


Рис. 4. Энергетический спектр нейтронов из замедлителя на основе льда при температурах 20 К, 70 К по сравнению с водой $T=300$ К.

Из рисунка видно, что максимум для воды (комнатная температура) лежит в области 40 мэВ и, с уменьшением температуры, сдвигается в сторону низких энергий: для температуры льда 70 К максимум находится при 10 мэВ, а при $T = 20$ К - при 6 мэВ.

Рассмотрим идеальный случай, когда нейтроны, замедляясь в среде с $T = 315$ К до $T = 20$ К, приходят в термодинамическое равновесие. Тогда Φ в предыдущей формуле пропорционально средней скорости нейтрона, т.е. \sqrt{T} , и максимальный теоретический выигрыш в плотности потока холодных нейтронов от холодного источника, работающего при температуре среды $T = 20$ К, по отношению к тепловому спектру при $T = 315$ К можно определить из распределения Максвелла-Больцмана как функцию от энергии:

$$G(E) = \frac{\Phi(E)}{\Phi_0(E)} = \left(\frac{T_0}{T}\right)^{3/2} \exp\left[-\frac{E}{k_B}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)\right],$$

где T - температура материала замедлителя,

k_B – постоянная Больцмана.

При энергии нейтрона стремящейся к 0, экспоненциальный член $\rightarrow 1$, и фактор выигрыша равен:

$$G = \left(\frac{T_0}{T} \right)^{3/2} \approx 62$$

Это результат для идеального случая, когда нейтроны находятся в термодинамическом равновесии со средой и отсутствуют утечка и захват нейтронов. Сечение поглощения мало по сравнению с сечением рассеяния, но его вклад становится более заметным с уменьшением скорости нейтронов. В реальности, замедлители недостаточно большие чтобы достигалась полная термализация нейтронов, температура нейтронов в замедлителях выше, чем температура замедляющего материала, и, соответственно, выигрыш заметно меньше идеального. Существует некий оптимум для каждого материала по размерам замедлителя, чтобы получить наибольший выход холодных нейтронов в нужном направлении. Если предположить, что спектр нейтронов можно описать распределением Максвелла-Больцмана, то можно найти реальную температуру нейтронов в замедлителе. Так, для спектров, показанных на рисунке 4, полученные температуры нейтронов приведены в таблице 3 [73].

Таблица 3. Сравнение температуры замедлителей и спектров нейтронов

Материала замедлителя	Температуры среды	Температура нейтронов
Лед	20К	71±4К
Лед	70К	110±2К
Вода	300К	343±15К

Фактор выигрыша в потоке холодных нейтронов при использовании льда с температурой 20 К составляет $G \approx 10$.

Спектры нейтронов холодных замедлителей далеко не для всех материалов подчиняются распределению Максвелла-Больцмана из-за сложности процессов при взаимодействии нейтронов с атомами молекул и наличия захвата на водороде.

1.2. Замедляющие материалы и их использование в холодных замедлителях нейтронов.

На выход нейтронов с длиной волны более 4 \AA из холодного замедлителя влияет несколько факторов:

- тип и интенсивность источника нейтронов;
- эффективность замедления в материале;
- температура холодного замедлителя;
- форма и размер замедлителя;
- пространственное расположение: источник - предзамедлитель – замедлитель - отражатель.

Замедляющие нейтроны водородсодержащие материалы при низких температурах должны обладать рядом свойств, наиболее важными из которых являются:

- высокая плотность атомов водорода;
- стойкость к декомпозиции под действием радиации;
- наличие низколежащих уровней возбуждения молекул;
- большое сечения рассеяния и малое сечение поглощения;
- широкий рабочий диапазон температур;
- технологичность;
- достаточная теплопроводность при низких температурах для съема тепла, вносимого излучением;
- взрывобезопасность.

Большинству из приведенных требований удовлетворяют твердые водородсодержащие материалы и жидкий водород.

Основным критерием для выбора материала холодного замедлителя является его способность эффективно замедлять нейтроны до низких энергий, позволяющая получить высокую плотность потока с поверхности замедлителя. Применению замедляющих материалов предшествовали экспериментальные и теоретические работы по исследованию неупругого рассеяния нейтронов в данных материалах. На основе полученных данных определялись уровни возбуждения молекул и создавались теоретические модели и библиотеки сечений для численного моделирования и оптимизации геометрических размеров и расположения замедлителей. Опубликовано много работ по исследованию и сравнению замедляющих способностей водородсодержащих материалов при низких температурах (выход холодных нейтронов), выполненных на экспериментальных установках, расположенных как на стационарных, так и на импульсных источниках нейтронов, при заполнении камеры замедлителя разными водородсодержащими материалами [например, 4, 16, 69, 73-79]. Среди исследованных материалов можно отметить следующие: парафин, вода, метан, жидкий водород, дейтерий, тяжелая вода, пропан, мезитилен, спирт, тетрагидрофуран, клатрат метана, трифенилметан, полиэтилен и др.

В разные годы работало несколько таких установок, например, на ядерных реакторах: BR-1 (Мол, Бельгия) [76], ИБР-1 (Дубна, ОИЯИ) [69]; на источниках нейтронов на основе линейных ускорителей электронов: ФАКЕЛ (Курчатовский институт, Москва), источник нейтронов в университете Хоккайдо (Япония) [79], в исследовательском ядерном центре Барилоче (Аргентина) [80]; установки на источниках нейтронов на основе протонных ускорителей: в КЕК (Япония) [81], IPNS (США) [82], JESSICA в FZJ (Юлих, Германия) [74], LENS (США) [83] и др.

В таблице 4 [84 ÷ 86] представлены некоторые данные (плотность протонов, температура плавления и кипения), важные при выборе замедляющего нейтроны материала для холодных замедлителей.

Таблица 4. Некоторые физические свойства материалов для холодных замедлителей нейтронов.

Материал	Температура, К	Плотность, г/см ³	Плотность протонов, р/см ³ x 10 ²⁴	Температуры плавления и кипения (1 атм.), К
H ₂ O	293	0,92	0,061	273, 373
H ₂	20	0,0708	0,042	14, 21
CH ₄	25	0,528	0,079	90, 110
C ₂ H ₆	173	0,561	0,068	90, 184
C ₃ H ₈	228	0,523	0,064	83, 231
C ₉ H ₁₂ , мезитилен	293	0,8652	0,0649	228, 438

Более подробные данные с сечениями рассеяния и поглощения можно найти в работах [16, 76, 85, 87, 88].

Для работы холодных замедлителей необходимо обеспечить низкую температуру замедляющего нейтроны материала и загрузить материал в камеру замедлителя на все время работы источника или же обеспечить его смену в процессе работы источника.

Рассмотрим несколько типовых схем построения систем, которые, как правило, используются для обеспечения работы холодных замедлителей нейтронов (рисунки 5 - 7) [84, 89]. В связи с разной мощностью тепловыделения в замедлителях, вносимых излучением от источников нейтронов, в данных схемах применяются гелиевые рефрижераторы с мощностью от нескольких сот ватт до десятков киловатт. В системах с

жидким водородом также могут быть встроены катализаторы для конверсии орто-пара состояний водорода.

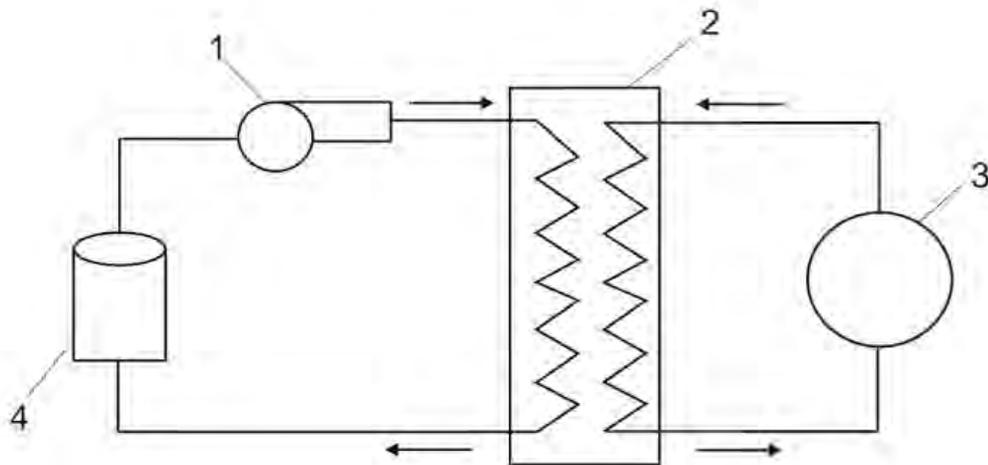


Рис. 5. Система с рециркуляцией жидкости или газа (1 – криогенный насос, 2 – теплообменник, 3 - гелиевый рефрижератор, 4 – холодный замедлитель).

Как видно из рисунка 5, система охлаждения разделена на два контура с отводом тепла от замедлителя к рефрижератору посредством циркуляции газа\жидкости через теплообменник. Циркуляция теплоносителя в контуре с замедлителем осуществляется посредством его прокачки встроенным криогенным насосом. По данной схеме построена работа жидководородных замедлителей в ISIS [90], LANSCE [84], RISO, HMI [35], JSNS [91], SNS [89] и др. Похожая схема реализована и в технологической системе холодного замедлителя на реакторе ИБР-2.

В системе, представленной на рисунке 6 [84], как и в схеме на рисунке 5, реализовано разделение на два контура, с той лишь разницей, что в контуре с замедлителем встроены регенератор и сепаратор газа.

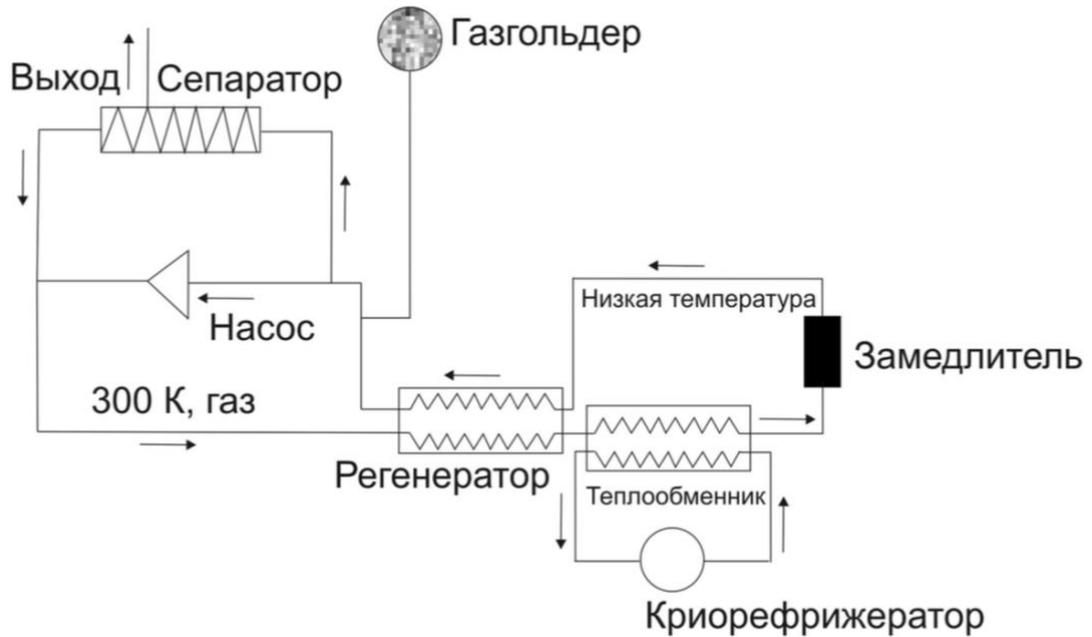


Рис. 6. Система с рециркуляцией жидкость-газ.

Применение подобной схемы позволяет конденсировать образовавшиеся пары в жидком водороде или дейтерии и возвращать в систему. Такая схема реализована, в частности, на источнике SINQ [92], на реакторах в NIST [93], ILL [94] и др.

В системе, представленной на рисунке 7 [84], реализовано одноконтурное охлаждение, в котором нет дополнительных криогенных насосов для прокачки хладагента. В такой системе теплообменник встроен в замедлитель. Холодный газ, как правило, гелий, циркулируя от рефрижератора к замедлителю, охлаждает находящийся в нем замедляющий материал до нужной температуры. Подобные схемы были реализованы на замедлителях с твердым метаном в КЕК [84], на метановом замедлителе ИБР-2 [44] и др.

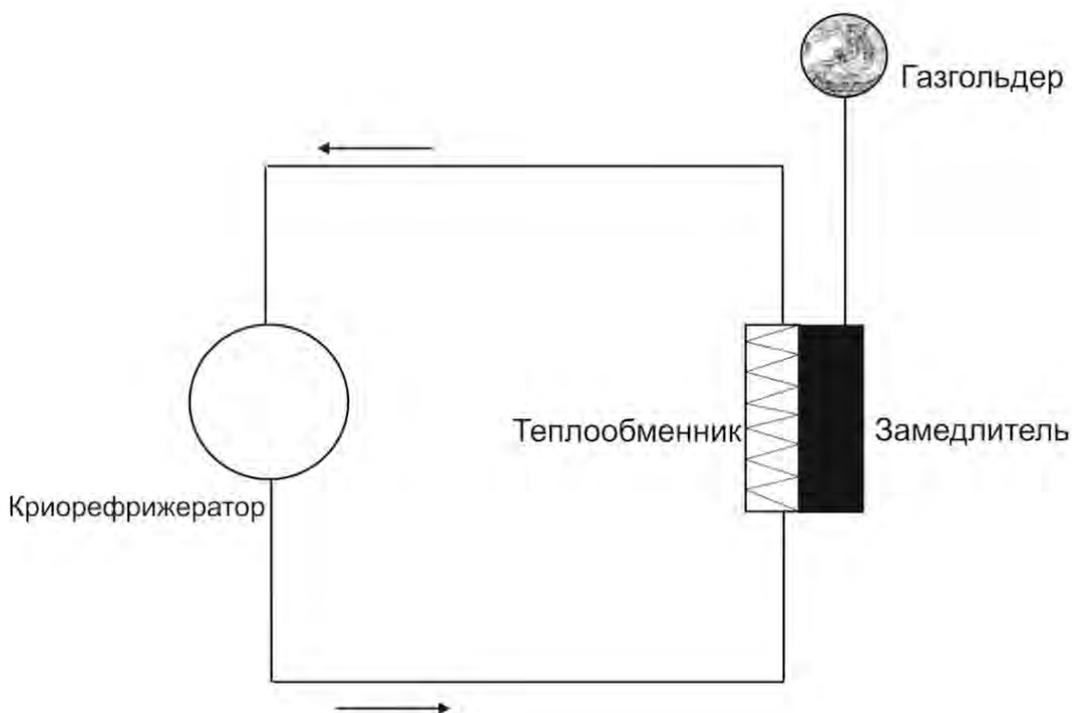


Рис. 7. Стационарная система.

Рассмотрим некоторые водородсодержащие замедляющие нейтроны материалов и технологии их применения на импульсных источниках нейтронов.

Водород

Водород (в жидком или сверхкритическом состоянии) в качестве материала холодного замедлителя применяется наиболее широко (Таблица 1). Относительно высокая плотность атомов водорода (Таблица 3), наличие низколежащих уровней возбуждения молекул (рисунок 3), радиационная стойкость [93], а также возможность использования водорода в жидком состоянии дает ряд преимуществ. Основное - это возможность отвести вносимое от источника излучением тепло посредством непрерывной прокачки жидкого водорода или дейтерия по системе. Это позволяет использовать водородные замедлители на мощных источниках нейтронов, таких как ядерные реакторы и источники на основе ускорителей.

Молекула водорода может находиться в орто- или пара- состояниях: когда спины атомов параллельны - орто-водород (спин 1) и антипараллельны - пара-водород (спин 0). В каждом из этих состояний сечение нейтронного рассеяния разное (рисунок 8) [78].

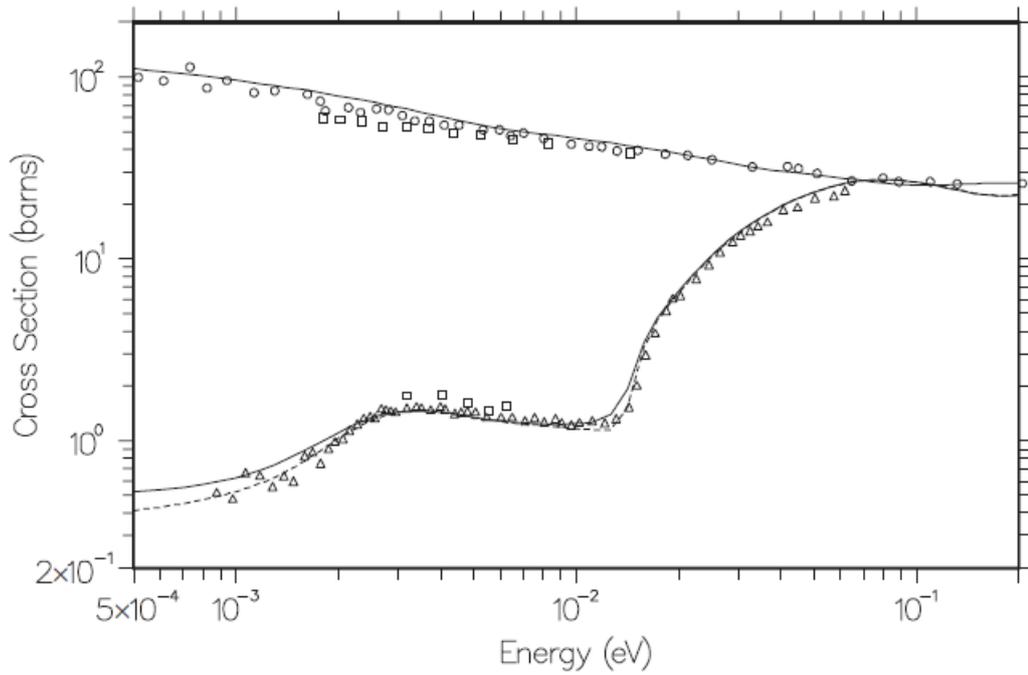


Рис. 8. Сечение рассеяния жидкого водорода при низкой температуре как функция энергии нейтронов. Верхняя кривая для орто-водорода, нижняя кривая для пара-водорода.

Пропорция орто-пара состояний в водороде играет важную роль для замедления нейтронов до низких энергий. При взаимодействии нейтронов с пара-водородом, переход последнего в орто- состояние с уровня $J=0$ на уровень $J=1$ (рисунок 1) происходит с потерей энергии нейтрона на 14,7 мэВ [77]. Этот механизм потери энергии нейтронов при низких энергиях является основным. При контакте водорода с металлом, а также под действием излучения при работе источника происходит конверсия из пара- в орто- состояние. Поэтому для поддержания высокого уровня пара-составляющей, близкой к 100%, в систему замедлителя с водородом необходимо включать катализатор, который способен поддерживать высокий уровень

концентрации пара-состояния [78]. Высокий уровень пара-состояния особенно сложно поддерживать на мощных источниках нейтронов.

Проведенные расчеты для окруженного отражателем замедлителя показывают, что чем больше составляющая пара-водорода в водороде, тем больше, с ростом толщины замедлителя, увеличивается выход холодных нейтронов (рисунок 9) [95], и, следовательно, уменьшение пара-состояния приводит к уменьшению выхода холодных нейтронов. Поэтому для подобных замедлителей необходимо поддерживать высокую концентрацию пара-состояния в водороде (рисунок 10) [96].

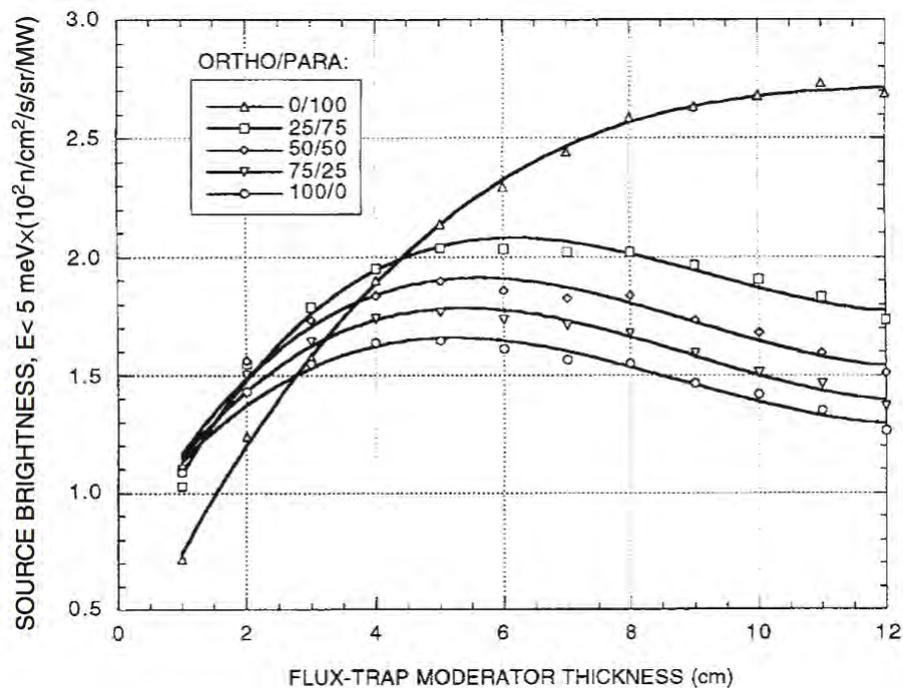


Рис. 9. Расчет интенсивности холодных нейтронов с энергией менее 5 мэВ из холодного замедлителя на основе жидкого водорода, окруженного отражателем, без предзамедлителя, как функция толщины замедлителя к процентному соотношению пара-орто состояний.

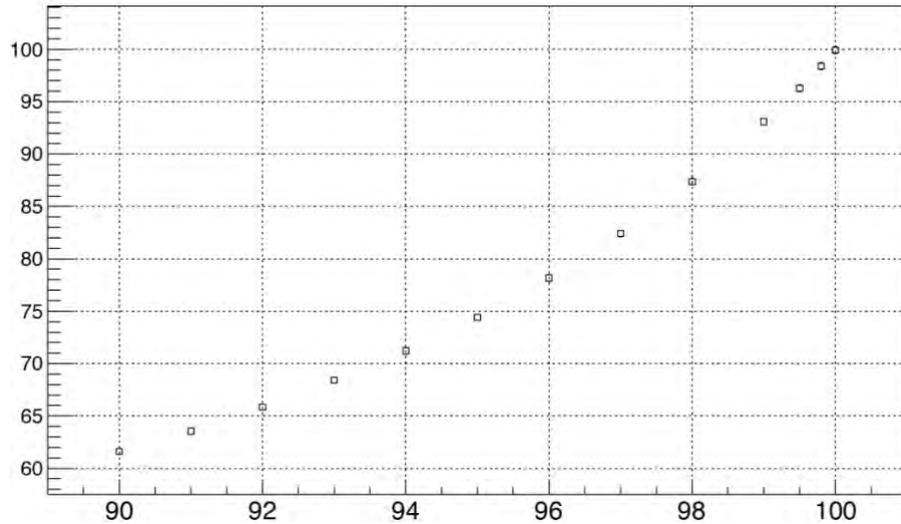


Рис. 10. Выход нейтронов в процентах (ось Y) по отношению к процентному содержанию пара водорода в холодном замедлителе (ось X).

В нормальных условиях при комнатной температуре водород представляет собой смесь 75 % орто- и 25% пара- состояний, которые могут превращаться друг в друга.

Пример технологической системы холодного замедлителя на основе водорода представлен на рисунке 11 [97].

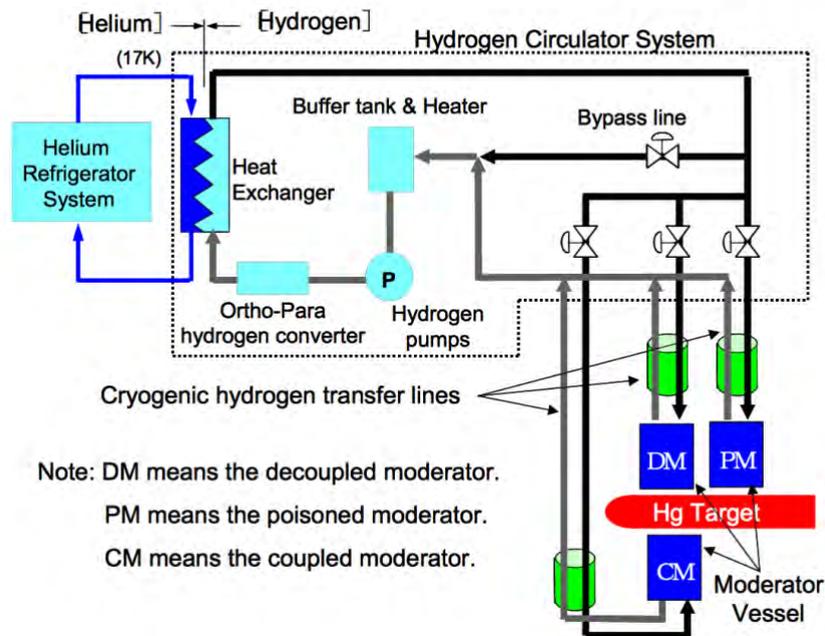


Рис. 11. Технологическая система холодных замедлителей на основе водорода на источнике нейтронов JSNS.

Вместе с очевидными преимуществами водорода, для импульсного реактора, каковым является ИБР-2, жидкий водород малоприменим по причине опасности взрыва. Известны, по крайней мере, два случая взрыва жидководородного замедлителя на реакторах. В обоих случаях не было серьезных последствий, так как реакторы стационарного действия в 40 раз менее чувствительны к изменению их геометрии, чем импульсный реактор ИБР-2. Аналогичная ситуация на ИБР-2 привела бы к серьезной ядерной аварии [70].

Метан

В холодных замедлителях нейтронов используется как жидкий, так и твердый метан (таблицы 1, 2). Наличие низколежащих уровней возбуждения у метана (рисунки 3, 12 [86]), вместе с относительно высокой протонной плотностью (таблица 4) делает метан наилучшим с точки зрения замедления нейтронов среди других материалов. Твердый метан при нормальном давлении находится в ориентационно-неупорядоченном I-ом фазовом состоянии, вплоть до температуры 20,4 К. В этой фазе все молекулы CH_4 могут легко вращаться вокруг центра масс и низкая энергия вращения возбуждения кристаллической решетки играет наиболее важную роль в глубоком замедлении нейтронов.

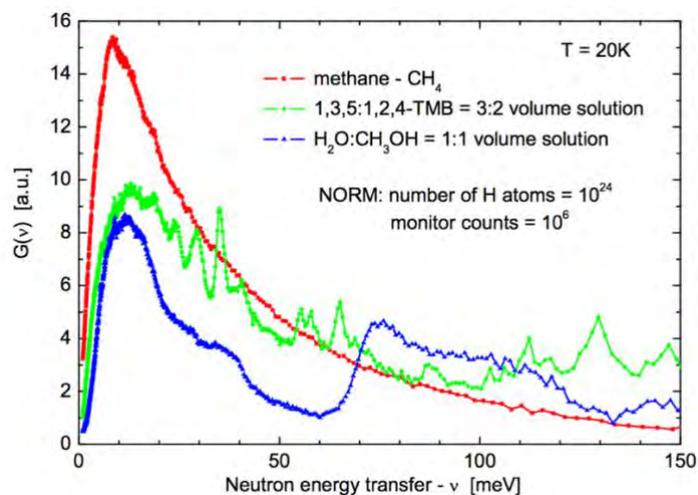


Рис. 12. Сравнение $G(v)$ (вибрационных плотностей состояний) спектров нейтронов из твердого метана и спектров нейтронов смеси жидкого

мезитилена (1,3,5-ТМВ) и псевдокумола (1,2,4-ТМВ) в аморфном состоянии (3:2 объемных частей) и 1:1 водно-метанольного раствора. $G(v)$ спектры нормированные на одинаковое количество атомов водорода и количество падающих нейтронов. Объем и толщина исследуемых образцов – идентичны [86].

Твердометановый замедлитель нейтронов по сравнению замедлителем на основе жидкого водорода дает до 3,5 раза больше выход холодных нейтронов (рисунок 13) [98].

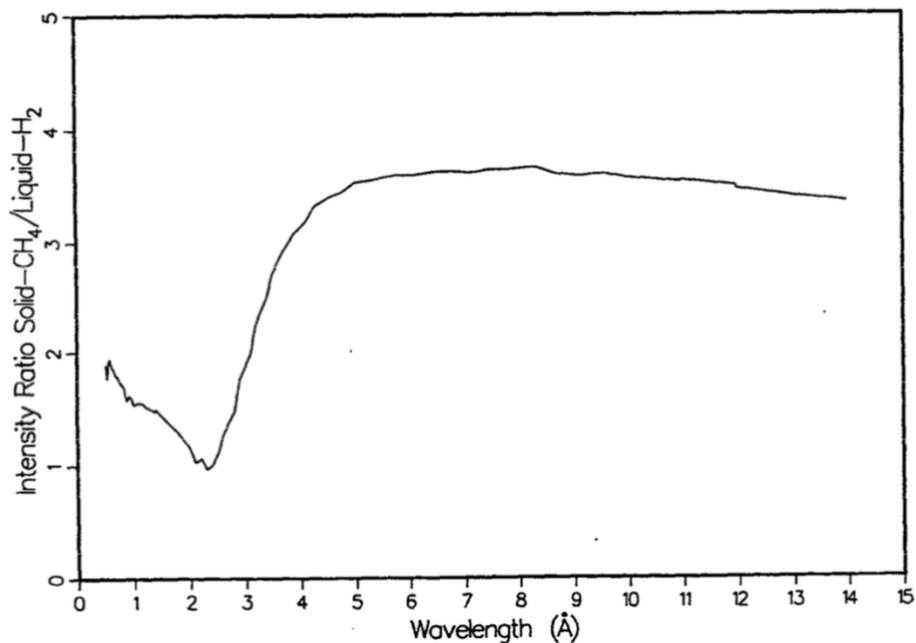


Рис. 13. Выигрыш в спектральной интенсивности нейтронов из твердометанового замедлителя по сравнению с жидководородным замедлителем.

Вместе с тем низкая радиационная стойкость (образование радикалов и радиолитического водорода) не позволяет использовать метан в твердом состоянии на мощных источниках без его периодической смены в камере замедлителя и отгонки радиолитического водорода посредством нагревания замедлителя до температур, близких к температурам плавления метана. Без проведения данных превентивных мер, камера замедлителя может быть

разрушена из-за возникновения давления на стенки за счет «распухания» метана под облучением. Экзотермические реакции рекомбинации накапливающихся радикалов могут начаться спонтанно и вызвать саморазогрев метана (рисунок 14) [99].

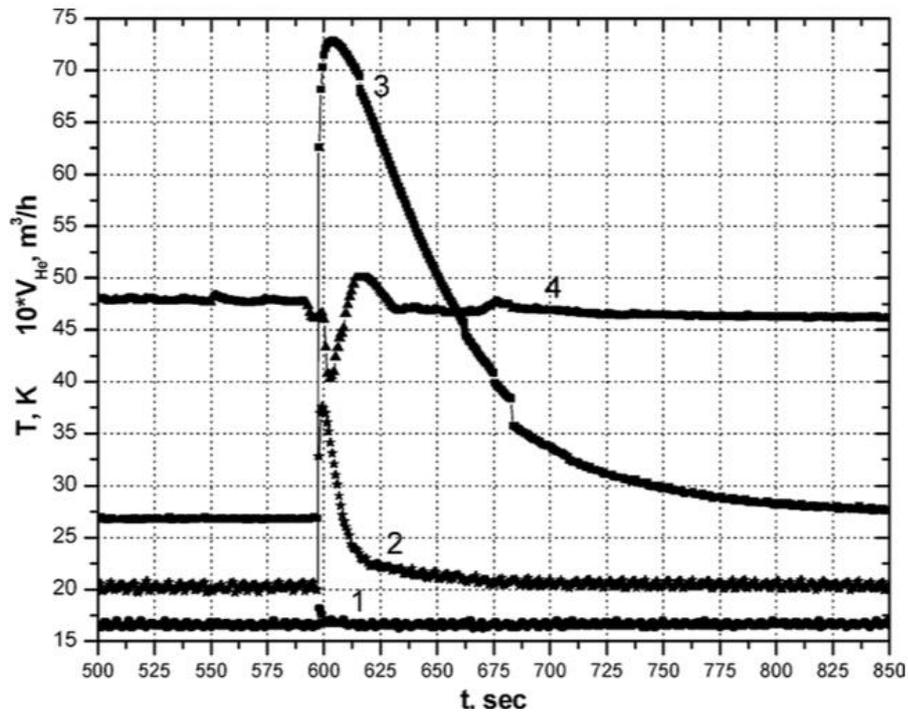


Рис. 14. Показания температур с термопар и расхода охлаждающего гелия в течение спонтанного выделения запасенной энергии в твердом метане после облучения в течении 11 часов при постоянной температуре 20-22 К (1 - температура охлаждающего гелия, 2 - температура медных стенок капсулы с материалом, 3 - температуры метана в 8 мм от стенки капсулы, 4 - расход гелия).

В результате экзотермических цепных реакций рекомбинации накопленных радикалов метан разогревается, но накопившийся в объеме твердого метана радиолитический водород не выходит из него до достижения определенной температуры, а создает давление внутри материала и на стенки камеры замедлителя рисунок 15 [100].

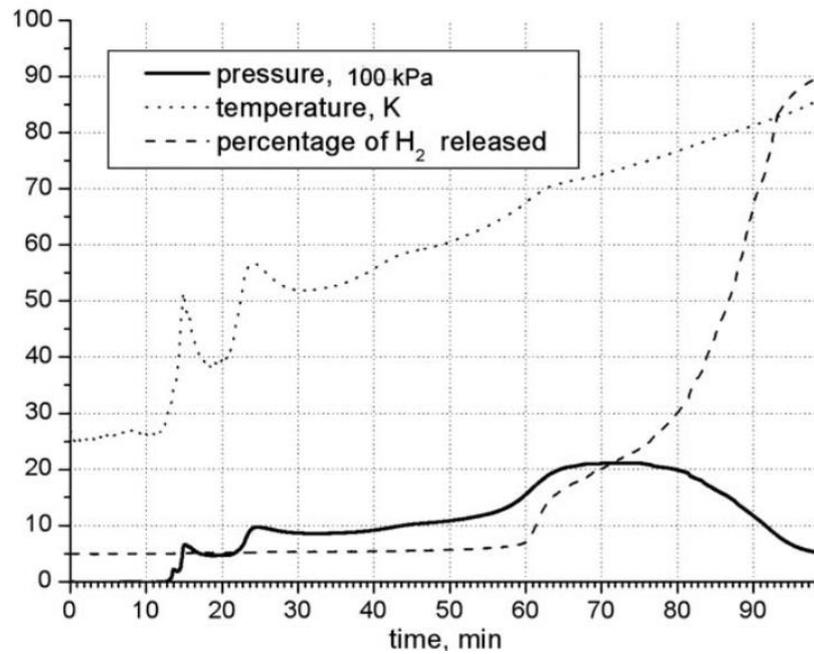


Рис. 15. Показания параметров в процессе нагрева твердого метана после облучения на реакторе ИБР-2 в течение 15,5 часов при температуре 25-26 К (один час облучения = 0,81МГр): сплошная линия – давление на стенке камеры в кПа; прерывистая линия – процент водорода, вышедшего из метана; прерывистая линия с точками - температура метана.

Следует отметить, что спонтанный саморазогрев наблюдался также для льда воды и для ряда других гидроксидов, перспективных для использования в качестве материалов для холодных замедлителей нейтронов (рисунок 16) [101].

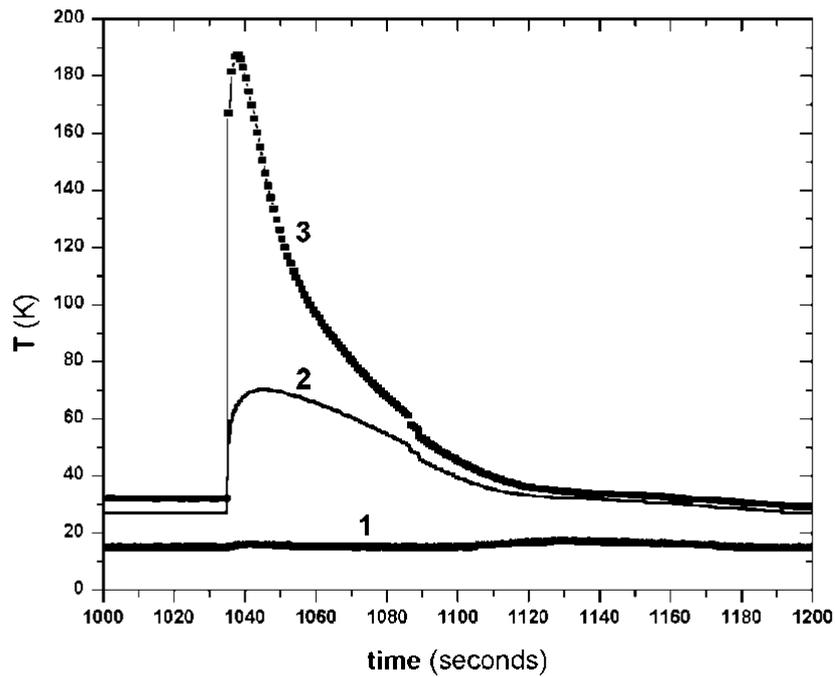


Рис. 16. Спонтанное высвобождение накопленной энергии в льде воды: 1- температура охлаждающего гелия; 2-температура стенок медной облучательной капсулы; 3 - температура льда в 8 мм от стенок капсулы.

Эксплуатация холодных замедлителей на основе твердого метана не раз приводила к разрушению камер на источниках нейтронов. В частности, на источнике IPNS (США) (рисунок 17 [102]), на ИБР-2 (Дубна) [70] и др. Детальные исследования поведения твердого метана, так же как и ряда других водородсодержащих материалов при низких температурах под облучением, были проведены на облучательных установках реактора ИБР-2 [99-101] и ниже будут рассмотрены подробнее.

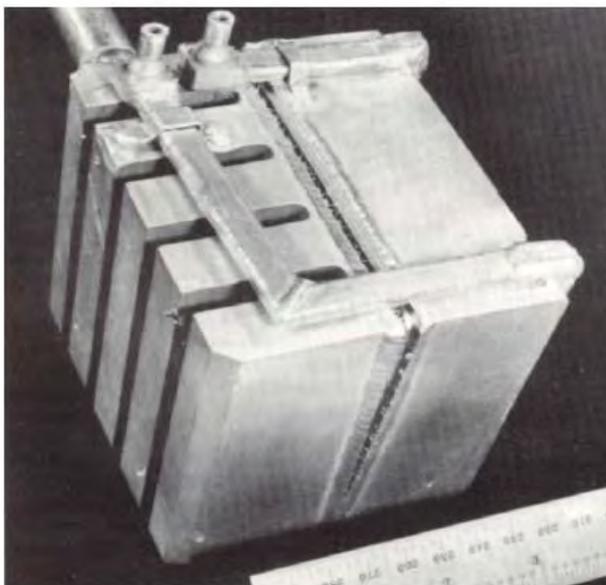


Рис. 17. Разрушенный метановый замедлитель IPNS.

Накопление радиолитического водорода и радикалов в твердом метане под облучением, а также накопление смол в камере замедлителя с метаном (рисунок 18 а, б) [103], приводящее к снижению потока холодных нейтронов и к необходимости частой замены камеры, значительно ограничивает использование метана в холодных замедлителях.



(a)



(b)

Рис. 18. Накопление депозитов смол и других образований в камере замедлителя после облучения метана (b) по сравнению с новой замедлителем (a).

На рисунке 19 [44] приведена технологическая схема холодного замедлителя на основе твердого метана, который функционировал на реакторе ИБР-2 в начале 90-х годов, но был выведен из эксплуатации, поскольку не в полной мере удовлетворял потребностям экспериментаторов на выведенных пучках. Технологическая схема замедлителя была выполнена по схеме, показанной на рисунке 7.

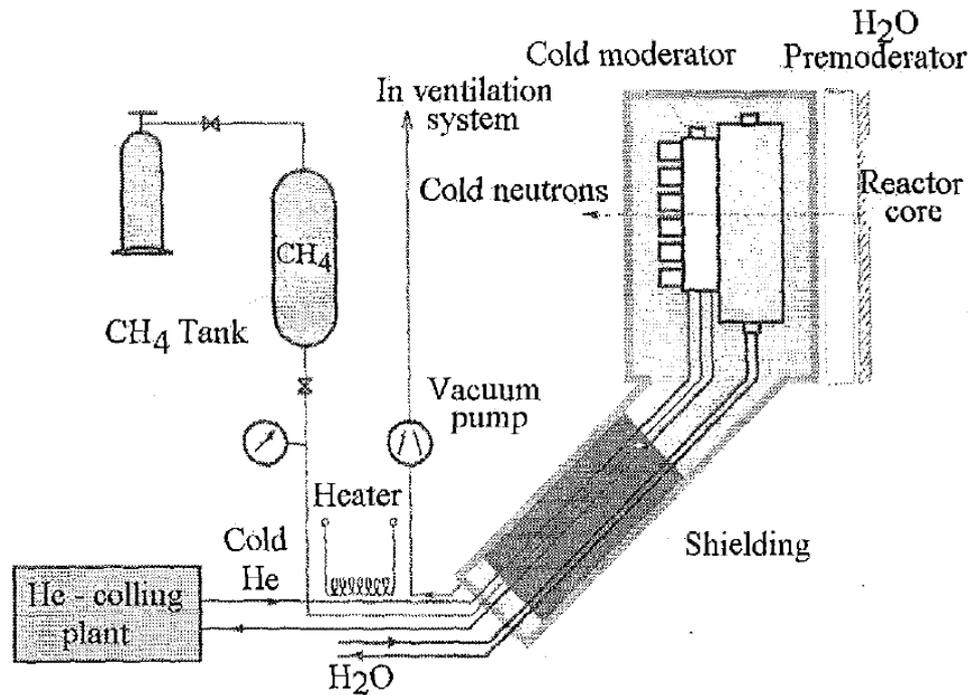


Рис. 19. Упрощенная схема технологической системы холодного замедлителя на основе твердого метана, который функционировал на ИБР-2.

На рисунке 20 приведена технологическая схема холодного замедлителя на основе жидкого метана на источнике ISIS (RAL, UK) [103].

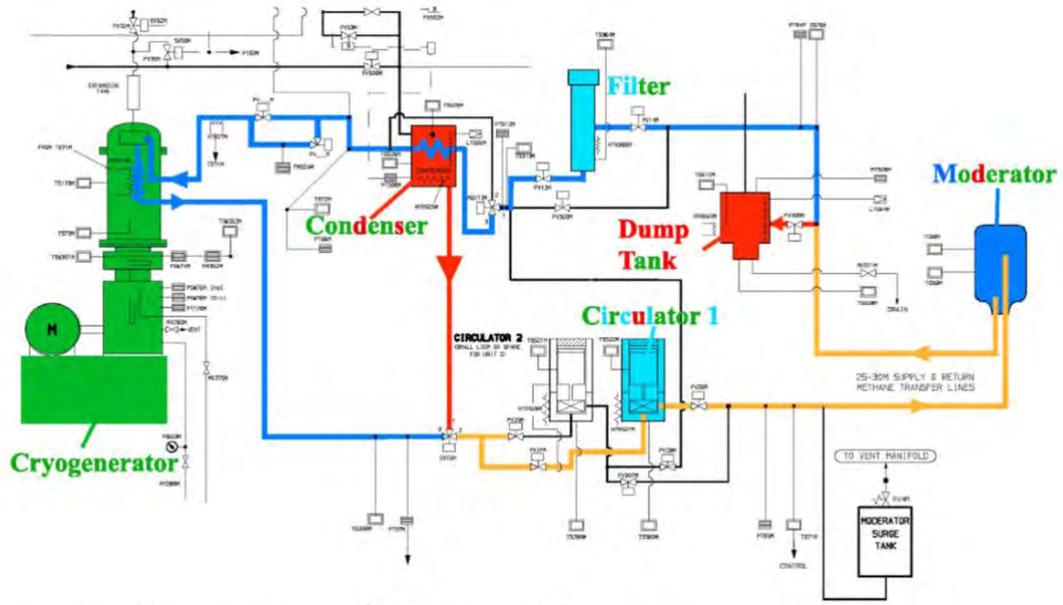


Рис. 20. Технологическая схема холодного замедлителя на основе жидкого метана на источнике ISIS.

Потенциально возможное развитие технологии применения твердого метана на высокоинтенсивных источниках нейтронов – это периодическая замена твердого метана в камере замедлителя (его прокачка в виде гранул) без остановки работы и нагрева для отгонки водорода. Подобная схема реализации была предложена в 90-х годах (рисунок 21) [104] для проектируемого в то время источника нейтронов ESS, но технологические сложности не позволили завершить разработку.

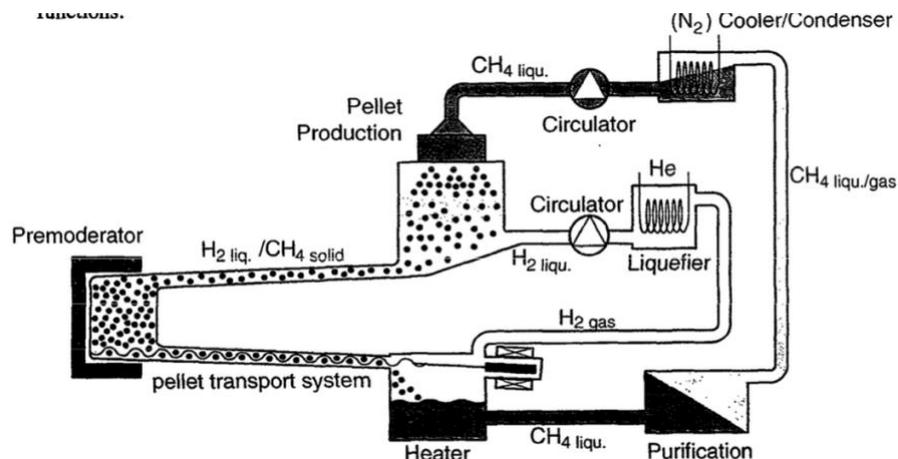


Рис. 21. Схема замедлителя нейтронов на основе гранул метана, загружаемых из зоны вне облучения путем транспортировки циркулирующим водородом и удаляемых из камеры замедлителя механическим путем.

Вместе с тем, отдельные гранулы из твердого метана были получены на экспериментальной установке по их производству в США (рисунок 22) [105].



Рис. 22. Гранулы метана с жидким гелием, протекающего через ячейку наблюдения.

Проблема в использовании гранулированного твердого метана заключается в том, что даже при температурах ~ 60 К, у гранул наблюдается высокая адгезия и они прилипают как к металлическим стенкам, так и слипаются между собой. Проведенные исследования [106] показали, что адгезия отдельных гранул твердого метана друг к другу и к металлам исчезает при достижении ими температуры 30 К.

Мезитилен

Мезитилен – 1,3,5 - триметилбензол, ароматический углеводород $C_6H_3(CH_3)_3$, производная бензола. Он имеет достаточно высокую плотность атомов водорода (Таблица 4) и низколежащие уровни возбуждения (рисунок 12) прежде всего за счет наличия трех метильных групп. Это положительно сказывается на выходе холодных нейтронов при уменьшении температуры замедлителя (рисунок 23) [81].

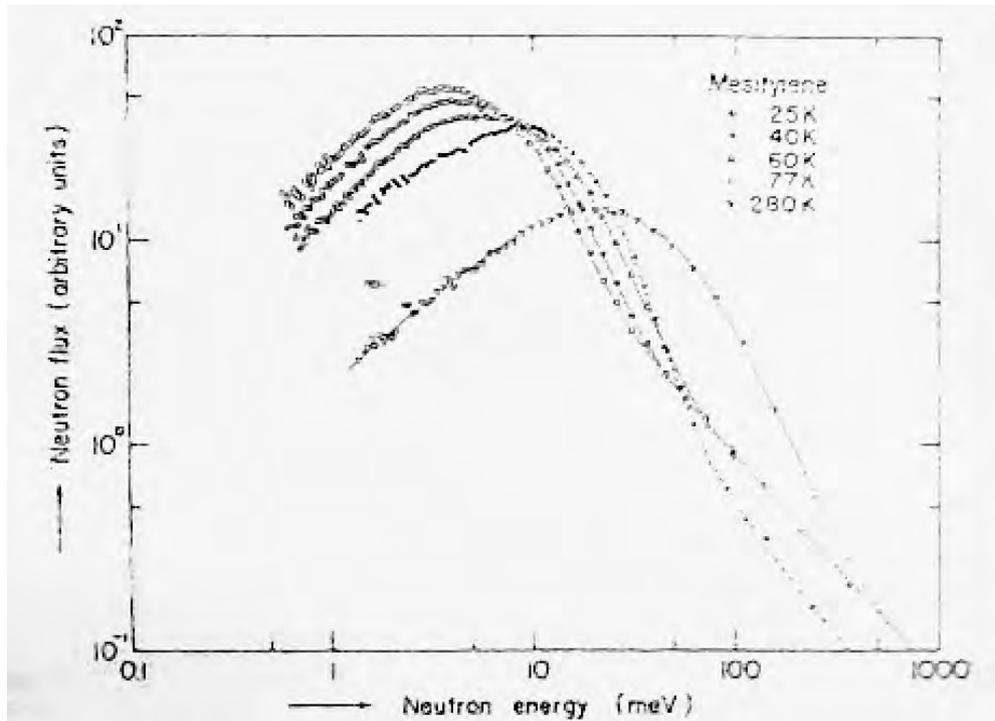


Рис. 23. Выход холодных нейтронов при уменьшении температуры замедлителя на основе мезитилена.

На основе мезитилена в мире работало несколько источников холодных нейтронов (таблица 1).

Физические и теплофизические свойства мезитилена следующие [107]:

- плотность при 20 °С – 0,86 г/см³, при 20 К – около 1 г/см³;
- теплоемкость твердого мезитилена при температуре 20 К – 0,2 Дж/г/К, при 80 К – 0,6 Дж/г/К [108];
- температура и теплота плавления – 228 К, 100 Дж/г;
- температура и теплота испарения (при давлении 1 бар) – 437К, 320 Дж/г;
- теплопроводность при 20К- 40 К – 0,2 Вт/м/К;
- теплоемкость пара мезитилена при температуре 600К – 2,3 Дж/г/К;
- давление насыщенных паров: 1,86 мм Hg при 20 град. С; 2,49 мм при 25 С, 14 мм при 55 С;
- вязкость: 0,00813 см²/с при 20 С, 0,0048 см²/с при 100 С;
- температура поджига паров - 50 С, 46 С (в замкнутом объеме);

- самовоспламенение: 550 - 559 град. С.

У твердого мезитилена, в зависимости от процедуры охлаждения, могут быть три различные фазовые состояния (рисунок 24) [109] .

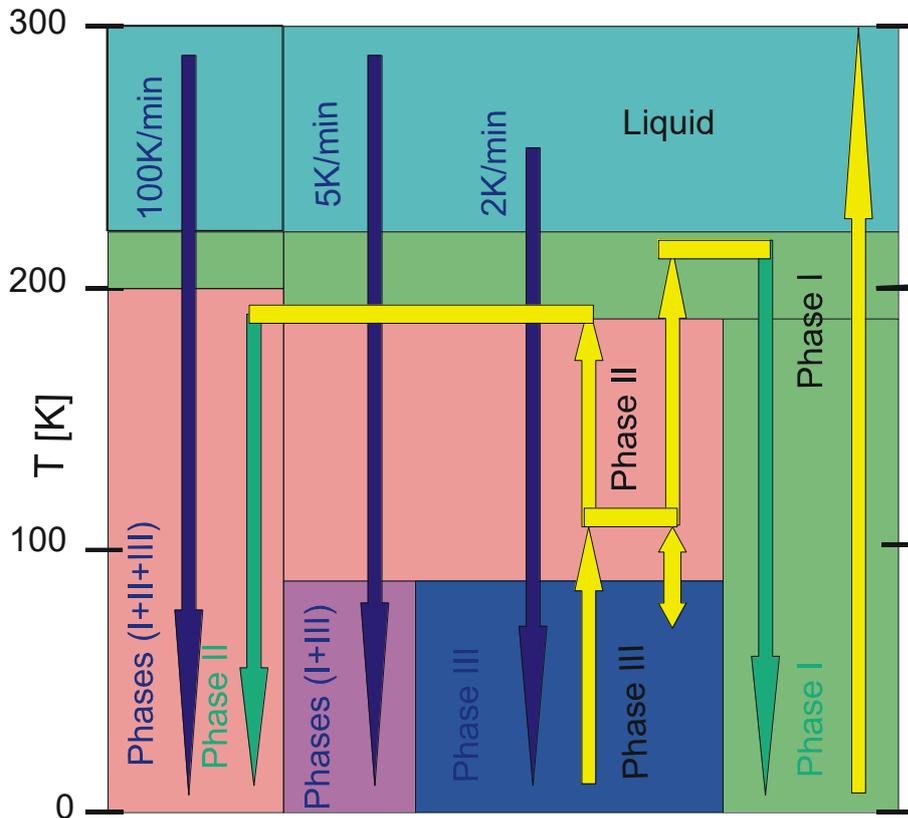


Рис. 24. Схема фазовых переходов в мезитиле.

В работе [109] также анализируется плотность фоновых состояний (рисунок 25) и делается вывод, что второе фазовое состояние (протонное стекло) наилучшее с точки зрения замедления нейтронов, но получается оно сложным путем и не стабильно во времени.

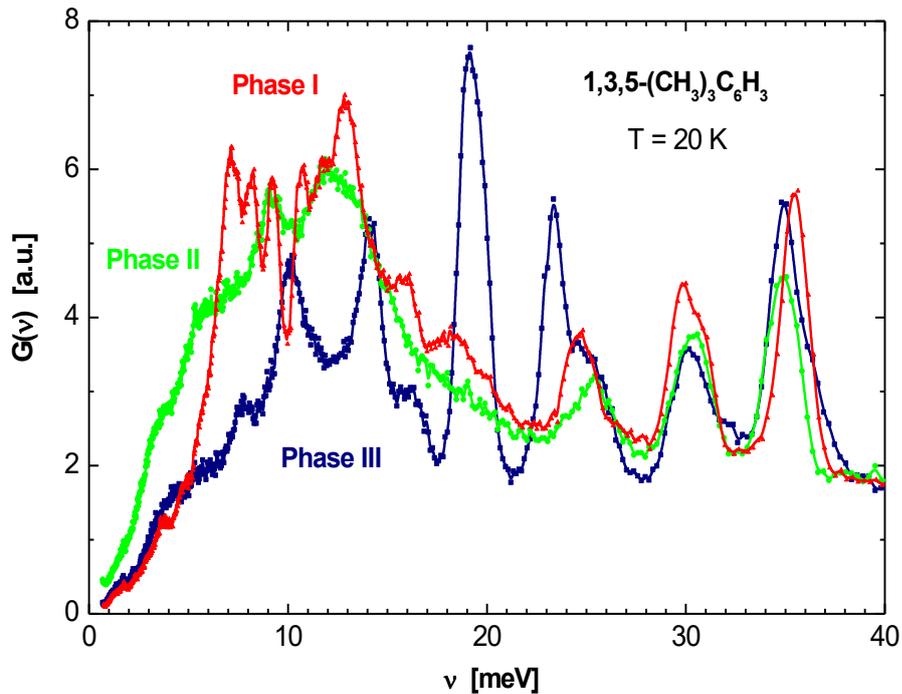


Рис. 25. Плотность фононных состояний в трех структурных модификациях твердого мезитилена.

Следует отметить три свойства мезитилена, наиболее привлекательные для использования его в качестве материала холодного замедлителя, а именно:

- Высокая радиационная стойкость. Сравнительные и абсолютные радиационные свойства даны в работах [101, 110 - 113]. В литературе нет указаний на радиационную полимеризацию мезитилена [85, 112, 113], что крайне важно для долгосрочности ресурса работы камеры замедлителя, которая не будет забиваться твердыми продуктами радиолиза.
- Наличие в молекуле мезитилена трех комплексов CH_3 , которые совершают слегка заторможенное вращение вокруг оси симметрии комплекса. При этом энергия вращательных колебаний составляет 7 мэВ в твердом кристаллическом мезитилене и 5 мэВ – в твердых смесях мезитилена с другими производными бензола, в которых доминирует структура «протонное стекло» [81, 86, 109]. Наличие

таких низких энергетических уровней молекулы способствует быстрой и более полной термализации нейтронов. Имеющиеся экспериментальные данные по сечениям неупругого рассеяния и результаты непосредственных измерений спектров холодных нейтронов показывают, что этот материал по выходу холодных нейтронов находится между твердым метаном (наилучший замедлитель) и жидким водородом и значительно лучше льда воды (рисунок 26) [81].

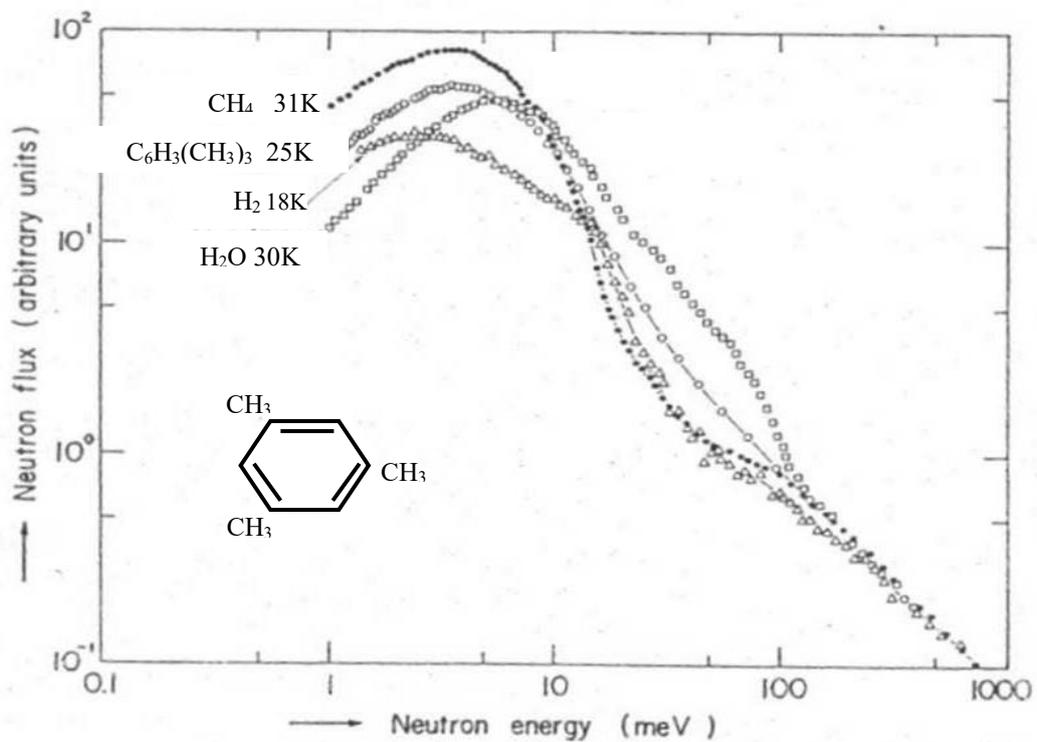


Рис. 26. Спектры нейтронов из холодного замедлителя с разным замедляющим материалом.

- Широкий диапазон температур, в котором мезитилен находится в конденсированных фазах. В твердой фазе он находится ниже 228 К, а в интервале -45°C - $+164^{\circ}\text{C}$ – в жидкой фазе. Варьирование температуры в процессе работы дает возможность оптимизировать спектр нейтронов в соответствии с требованиями экспериментов на выведенных пучках.

Мезитилен, и особенно его смесь с м-ксилолом или псевдокумоллом [86], в результате смешивания с которыми получается нужное фазовое состояние (протонное стекло), является весьма подходящим веществом холодного замедлителя для современных источников нейтронов, особенно средней интенсивности (исследовательских реакторов мощностью 1 - 5 МВт или spallation source 0,2 - 1 МВт), представляя собой хороший компромисс между функциональными и технологическими свойствами [107].

Пример схемы использования мезитилена с радиационной нагрузкой не более 0,05 Вт/г представлена на рисунке 27 [50].

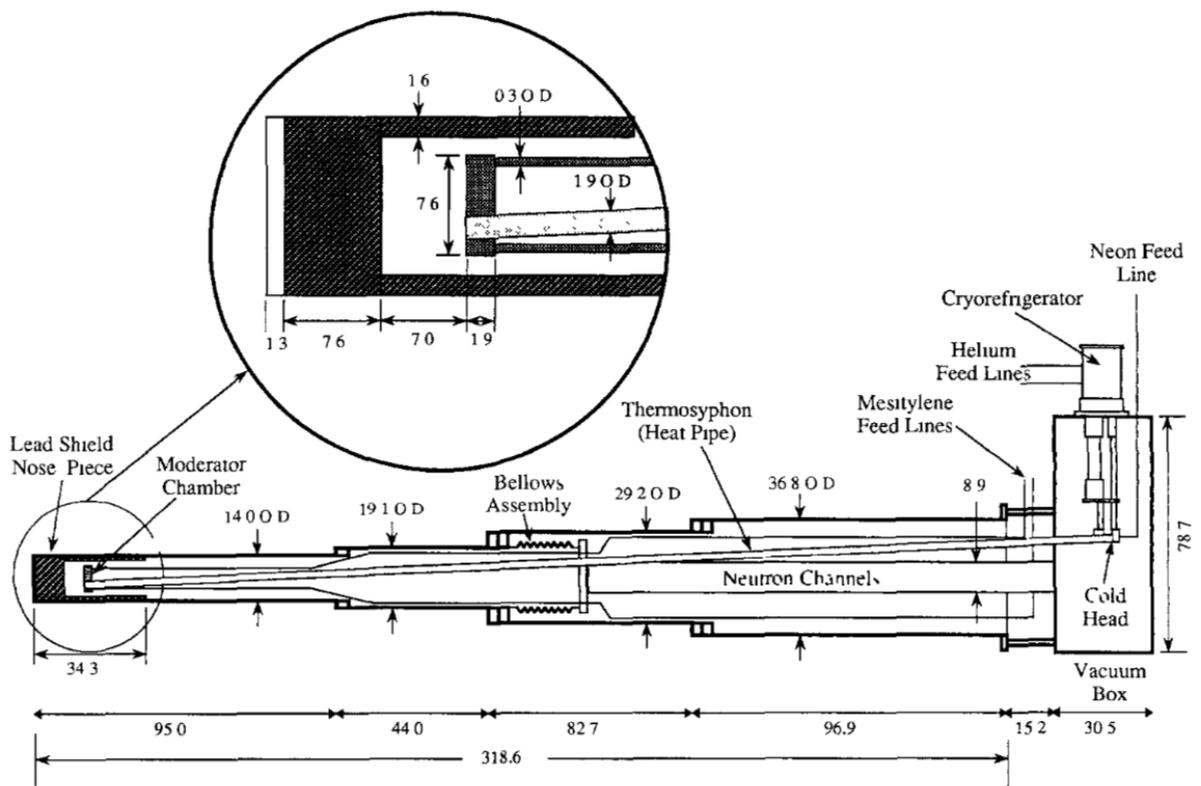


Рис. 27. Схема технологического обеспечения холодного замедлителя на основе мезитилена.

При соответствующей конструкции, например при заполнении камеры холодного замедлителя гранулами из мезитилена (рисунки 28, 29) [114], он может работать и при на порядок больших нагрузках - до $\sim 0,5-0,7$ Вт/г.

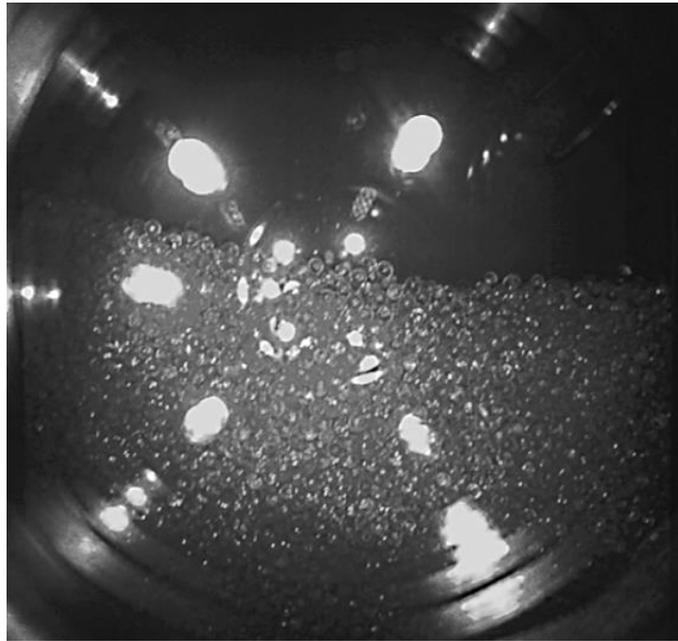


Рис. 28. Шарики (гранулы) из смеси мезитилена с м-ксилолом, охлаждаемые потоком холодного гелия. Температура $\sim 80\text{K}$ (диаметр шарика $\sim 3,5$ мм).

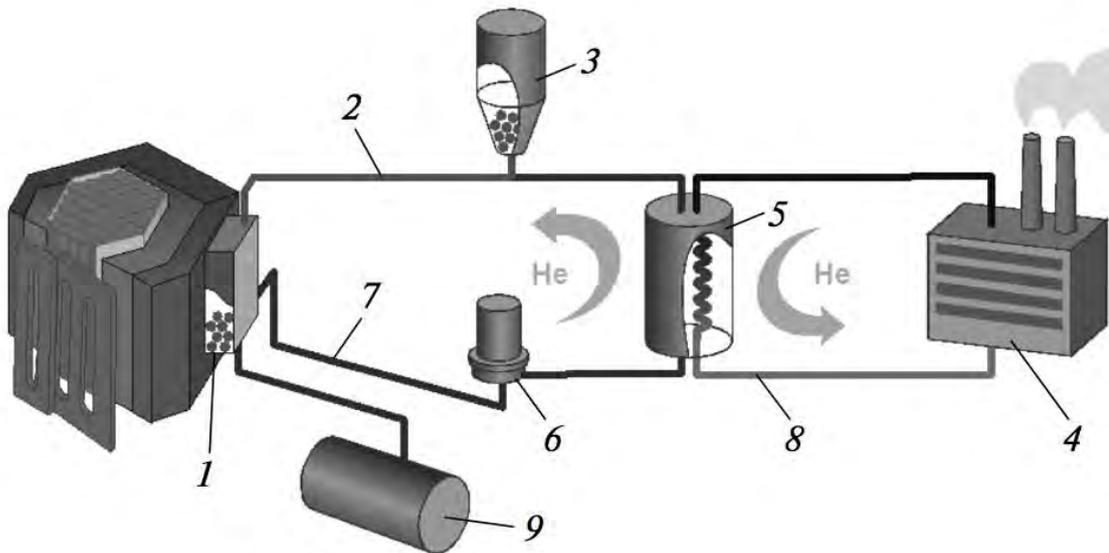


Рис. 29. Принципиальная технологическая схема холодного замедлителя реактора ИБР-2, где основные узлы: 1- холодный замедлитель, 2 – трубопровод первого контура охлаждения и загрузки шариков, 3- дозирующее шарики устройство, 4- криорефрижератор, 5- теплообменник, 6 – газодувка, 7- трубопровод первого контура охлаждения, 8 – трубопроводы второго контура охлаждения, 9 – объем для сора отработанного жидкого материала.

Выводы по главе 1.

Определены основные свойства, которыми должны обладать водородсодержащие материалы для их применения в холодных замедлителях. Проведен анализ некоторых водородсодержащих материалов для замедлителей нейтронов источника до холодных, в частности: жидкий водород, твердый метан, мезитилен. Проанализирован мировой опыт по технологии их использования на источниках нейтронов, в том числе импульсных. Выявлены основные проблемы, возникающие при использовании каждого из данных материалов. Представлены важные при выборе замедляющего нейтроны материала для холодных замедлителей данные, такие как: плотность протонов, температура плавления и кипения.

Глава 2. Исследования водородсодержащих материалов для холодных замедлителей нейтронов.

На источниках нейтронов в качестве замедляющего материала могут использоваться различные твердые водородсодержащие соединения при низких температурах (20 – 35 К), такие как твердый метан, мезитилен, гидрат метана и др. Как уже отмечалось, использование таких материалов вызывает ряд проблем, поскольку под облучением в них образуются свободные радикалы, которые при низкой температуре не рекомбинируют. В результате происходит накопление химической энергии, которая выделяется при экзотермических реакциях рекомбинации радикалов [44, 101, 115 - 123]. Феномен накопления химической энергии в твердых замороженных соединениях под воздействием ионизирующего облучения известен с 60-х годов [124, 125]. Вместе с тем, в результате декомпозиции материала, под действием излучения, образуется свободный водород, который из-за низкой температуры слабо диффундирует и остается в материале, не выходя в газовую полость. В быстрых процессах экзотермических реакций рекомбинаций радикалов, как спонтанных, так и индуцированных, материал нагревается и водород, не успевая выйти из матрицы, давит изнутри. В результате давление передается на стенки камеры замедлителя и она может быть повреждена. На трех созданных установках УРАМ-2 [116, 126], УРАМ-3М [100] на реакторе ИБР-2 и установке УРАМ-3 [127] на микротроне МТ-25 в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ проведено детальное изучение процессов накопления радикалов и их рекомбинаций, а также накопления радиолитического водорода, и измерены давления на стенки корпусов камер-имитаторов холодных замедлителей для нескольких перспективных твердых водородсодержащих материалов.

2.1. Изучение радиационно-стимулированных процессов в водородсодержащих материалах при низких температурах при облучении быстрыми нейтронами.

В процессе облучения при низких температурах $\sim 20 - 30$ К, в результате увеличения на несколько градусов температуры водородсодержащего материала, может произойти быстрая экзотермическая реакция рекомбинации радикалов. Вместе с тем ее возникновение не всегда связано с увеличением температуры материала. При накоплении критической концентрации радикалов запасенная энергия может выделиться и спонтанно, без каких-либо изменений в охлаждении материала.

Типичные энергии связи радикалов представлены в таблице 5 [123].

Таблица 5. Энергии связей радикалов

CH_3+CH_3	83 ккал/моль,	3,6 эВ
$\text{H}+\text{CH}_3$	101 ккал/моль	4,38 эВ
$\text{H}+\text{OH}$	117.5 ккал/моль	5,095 эВ
$\text{H}+\text{H}$	103,2 ккал/моль	4,476 эВ
$\text{H}+\text{OON}$	90 ккал/моль	3,9 эВ
$\text{HO}+\text{CH}_3$	90 ккал/моль	3,9 эВ
$\text{OH}+\text{OH}$	51 ккал/моль	2,21 эВ

Одна из задач, для решения которой была создана облучательная установка УРАМ-2 – это исследование процессов накопления и высвобождения энергии водородсодержащими материалами при низкой температуре под действием быстрых нейтронов и гамма квантов на реакторе ИБР-2 [101, 116 - 118, 128].

2.1.1. Описание установки УРАМ-2 и постановка экспериментов.

Облучательная установка УРАМ-2 позволяла проводить изучение замороженных газов и жидкостей в диапазоне температур 15 – 60 К, а также при комнатной температуре. В установке можно выделить 4 основных части: загрузочное устройство; облучательная головка; система охлаждения на основе жидкого гелия; контрольно-измерительная система.

Установка была смонтирована на длинной подвижной платформе, способной доставлять головную часть с коммуникациями в позицию облучения (2-3 см от поверхности замедлителя реактора ИБР-2) по изогнутому пути через биологическую защиту реактора (рисунок 30). Благодаря конструкционным особенностям установки, только головная часть была подвержена облучению во время экспериментов, что позволяет персоналу загружать и выгружать образцы и производить измерения вне зоны излучения.

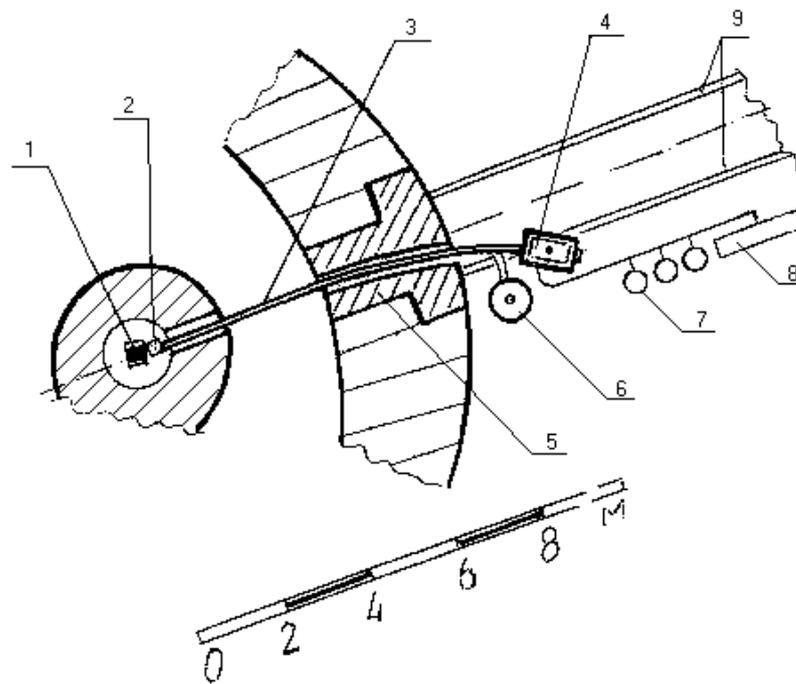


Рис. 30. Общий схематический вид облучательной установки УРАМ-2: 1- реактор ИБР-2; 2- головная часть установки; 3- транспортный путь, гелиевый трубопровод и электрические соединительные линии; 4- загрузочное устройство; 5- защитная пробка на рельсовом пути; 6-

сосуд Дьюара для жидкого гелия; 7- газовые баллоны; 8 - контрольно-измерительная система; 9- рельсовый путь.

Как показано на рисунке 31, головная часть установки соединена с блоком загрузки посредством транспортной трубы, которая позволяла загружать и выгружать образцы. Охлаждение расположенного в обучающей головке образца производилось посредством гелия, который подавался из сосуда Дьюара, охлаждал головку с образцом и затем собирался в газовых ресиверах. Измерение параметров во время экспериментов производилось непрерывно и сохранялось в ПК. Головная часть установки была помещена в кожух с высоким вакуумом, который обеспечивал тепловую изоляцию гелия и образца. За головной частью был расположен бериллиевый рефлектор для увеличения потока быстрых нейтронов на образце.

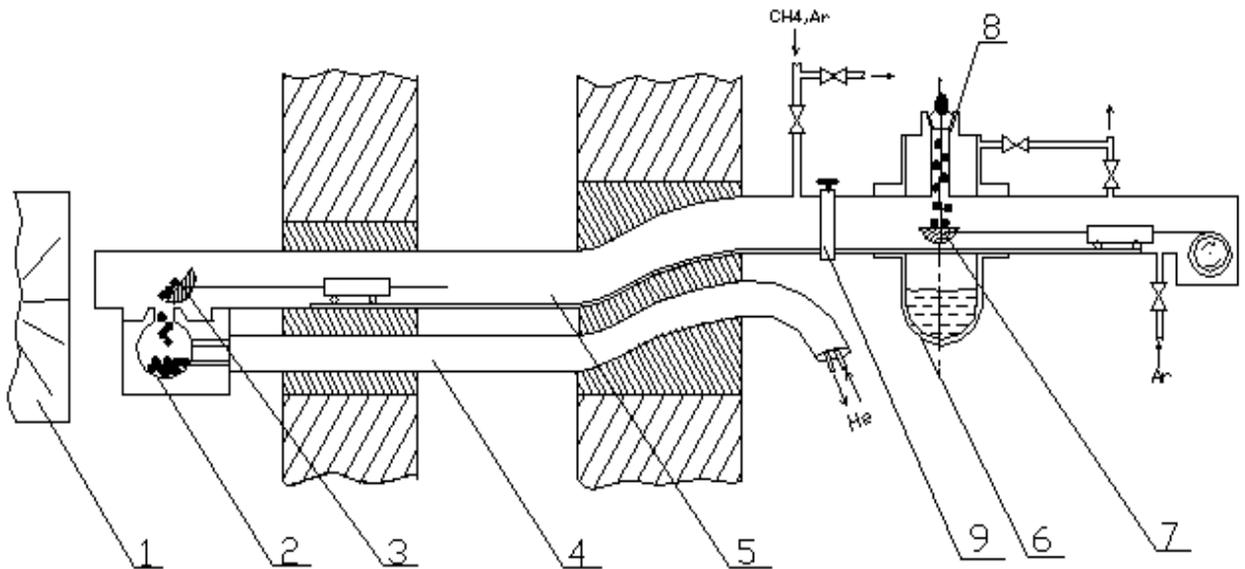


Рис. 31. Концептуальная схема облучательной установки УРАМ-2. ((1) реактор ИБР-2; (2) облучательная капсула; (3) подвижная чаша с тележкой в позиции облучения; (4) гелиевый трубопровод; (5) вакуумированный транспортный путь; (6) азотный криостат; (7)

подвижная чаша с тележкой в позиции для загрузки; (8) трубка для загрузки с пробкой; (9) вакуумный шибер).

Головная часть установки изображена на рисунке 32.

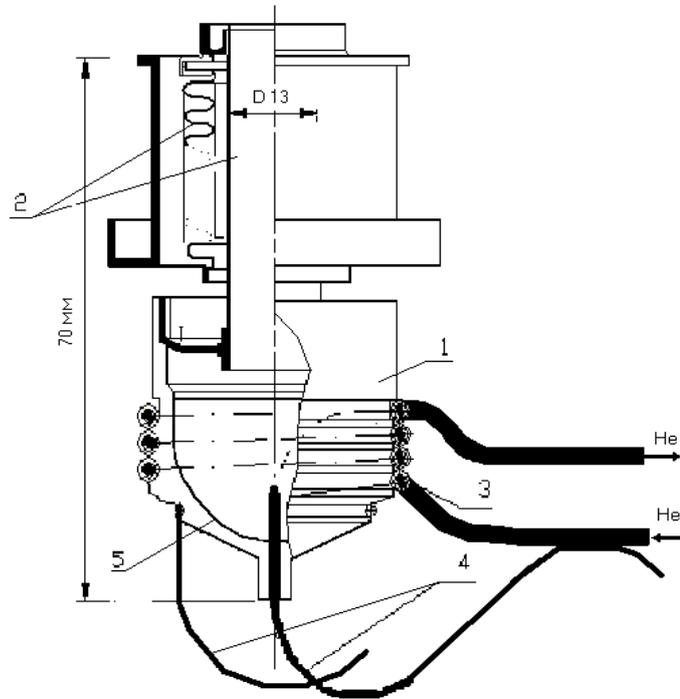


Рис. 32. Головная часть установки: (1) капсула; (2) подвеска (тепловой мост); (3) гелиевые трубки; (4) термопары; (5) облучательная полость.

Полость внутри капсулы имела полусферическую форму. Стенки капсулы были сделаны из чистой бескислородной меди (М1 чистоты по ГОСТ России, теплопроводность 1000 Вт/м/К при 20К). Площадь внутренней поверхности капсулы составляла 22 см², объем полости капсулы был равен 12см³. Суммарный тепловой приток (через тепловой мост и вакуумную оболочку) составлял ~ 1 Вт. Гелиевый теплообменник состоял из 3-х витков медной трубки с диаметром 3 мм, впаянной в стенку цилиндрической части капсулы. Внутренний подогрев стенок за счет ядерного тепла ~ 2 Вт. Суммарная тепловая нагрузка в материале, стенках, и гелиевых трубках составляла ~4,5 Вт.

Перед началом приготовления образца производилось охлаждение облучательной капсулы до температуры ~ 100 К. После того, как охлаждение было произведено, загружался материал для приготовления образца. Материал мог быть загружен в виде кусочков льда или в жидком виде через вакуумированную транспортную трубу с помощью транспортного челнока, который мог быть предварительно охлажден в азотном криостате. Помимо этого, через транспортную трубу можно было сконденсировать газ непосредственно в облучательную капсулу.

В случае загрузки жидкости, она заполняла объем капсулы в виде полусферы или сферического сегмента (в зависимости от количества жидкости). В случае приготовления образца из газовой фазы, образец можно было конденсировать в виде слоя, намороженного на внутреннюю поверхность капсулы или, растопив слой и затем заморозив, получить форму образца, как и в случае с жидкостью. Для увеличения теплообмена между загруженными кусочками льда и стенками капсулы, в капсулу конденсировался аргон так, чтобы кусочки льда оказались заключенными в аргоновую матрицу.

Для удаления образца из капсулы после проведения эксперимента, охлаждение капсулы прекращали, и под действием излучения образец испарялся, а газ откачивался.

Система охлаждения установки основана на использовании гелия в качестве теплоносителя, который доставлялся по гелиевому трубопроводу из 250 литрового сосуда Дьюара к облучательной капсуле (рисунок 32) под действием давления паров гелия в сосуде и затем собирался в ресивер. Благодаря такой системе охлаждения, существовала возможность облучения образца в течение долгого времени при стабилизированной низкой температуре. Изменение температуры в течение облучения не превышало 0,5 К. Регулирование температуры осуществлялось тремя способами:

- Регулированием прямого гелиевого потока. Это наиболее точный метод регулировки.

- Регулированием обратного гелиевого потока. Этот метод не так точен, как первый, и из-за осцилляций паро-жидкой смеси было возможно регулировать температуру в капсуле только до потока гелия не более $1\text{ м}^3/\text{ч}$.
- Посредством изменения мощности небольшого нагревателя, расположенного в прямом гелиевом потоке. Данный метод ограничен мощностью нагревателя $\sim 5\text{ Вт}$. Это позволяло изменять температуру образца в пределах 7 К .

Гелия из сосуда объемом 250 л было достаточно для обеспечения проведения непрерывного эксперимента при стабильной температуре капсулы 20 К в течение 60 часов .

Измерение температуры осуществлялось посредством термопар, соединенных с персональным компьютером, с частотами $1,25$ и 5 Гц . Всего было установлено 5 термопар (рисунок 33): одна внутри капсулы на расстоянии 8 мм от дна капсулы, две на внешней поверхности капсулы и две - измеряли температуру гелия, входящего и выходящего из капсулы.

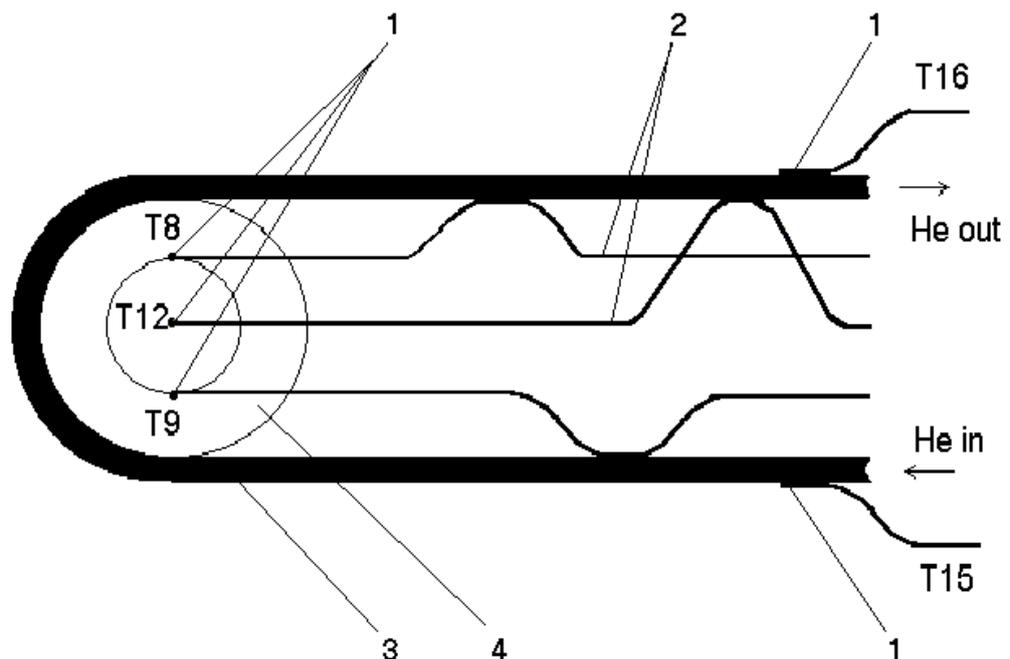


Рис. 33. Схема установки термопар: (1) термопары, (2) электрические линии, (3) гелиевый трубопровод, (4) облучательная капсула.

Давление газа измерялось посредством двух датчиков: 0 - 40 кПа, 0,1% точности при полной шкале и 0 - 200 Па, с точностью 20%. Расход гелия измерялся посредством двух расходомеров 0 - 3 м³/ч, 3% точность измерения и 0,5-5 м³/ч с точностью измерения 0,2 %.

2.1.2. Основные параметры установки УРАМ-2

- Поток быстрых нейтронов в позиции облучения: 3×10^{12} н/см²/сек [116, 123, 126];
- мощность поглощенной дозы: за счет гамма излучения ~ 20 Гр/сек, за счет замедления быстрых нейтронов ~ 90 Гр/сек (в воде);
- максимальное время непрерывного эксперимента: ~ 60 часов при температуре 20 К;
- рабочие температуры образца: 15 К – 60 К;
- загружаемые материалы: газы, жидкости, кусочки льда.

2.1.3. Обработка и анализ полученных экспериментальных данных.

В общей сложности на облучательной установке УРАМ-2 наработано на эксперимент ~ 700 часов. Исследованы водородосодержащие материалы (твердый метан, лед воды, гидрат метана, ароматические углеводороды и др.) при температурах от 15 до 60 К на предмет накопления и выделения энергии под облучением в потоке быстрых нейтронов и γ -квантов, а также накопление радиолитического водорода и температуры его выхода из образцов.

2.1.3.1. Методика обработка данных.

Обработка полученных результатов заключалась в нахождении из экспериментальных данных: энергии, выделившейся в результате реакции рекомбинации радикалов Q_V и температуры начала реакций T_{ign} [121, 129].

Оценка энергии, в зависимости от формы образца, осуществлялась посредством одного или нескольких методов:

1. Для тонкого слоя метана оценка Q_V осуществлялась при условии сохранения внутренней энергии образца и капсулы в течении 1 сек после начала реакции рекомбинации радикалов, поскольку тепло, отводимое гелием в течении такого короткого времени, ничтожно по сравнению с выделившейся энергией

$$Q_V = [H_{Cu}(T_{Cu,max}) - H_{Cu}(T_{ign})] \cdot \frac{m_{Cu}}{m_{methane}} + [H_{methane}(T_{Cu,max}) - H_{methane}(T_{ign})],$$

где m и H – массы и теплосодержания метана и меди соответственно,

T_{ign} – температура начала реакции рекомбинации,

$T_{Cu,max}$ – максимальная температура зафиксированная в меди во время реакции рекомбинации.

2. Посредством интегрирования тепловой энергии, отведенной гелием за время от начала реакций рекомбинаций и до момента восстановления температурного режима (за вычетом энергии вносимой посредством нейтронов и гамма квантов (4,5 – 5,2 Вт)).

Данный метод применим для оценки Q_V при спонтанных реакциях рекомбинаций радикалов.

3. Для образцов, имеющих форму шарового сегмента в месте расположения центральной термопары, величина Q_V может быть рассчитана по формуле:

$$Q_V = [H_{methane}(T_{max}) - H_{methane}(T_{ign})],$$

где H – теплосодержание метана,

T_{ign} – температура начала реакций рекомбинаций,

T_{max} – максимальная зафиксированная температура.

Рассчитанная по данному методу величина Q_V должна быть скорректирована ввиду того, что в объеме образца температура распределена неравномерно и осуществляется перенос тепла из-за наличия теплопроводности в образце. Величина данной корректировки оценена с помощью компьютерного моделирования нестационарной задачи переноса тепла и равна $10 \div 15 \%$.

2.1.3.2. Результаты обработки и анализа экспериментальных данных.

Твердый метан

После обработки данных более 20 экспериментов с различными образцами метана и температурами облучения были оценены величины накопленной энергии в зависимости от продолжительности и температуры облучения (рисунок 34) [128].

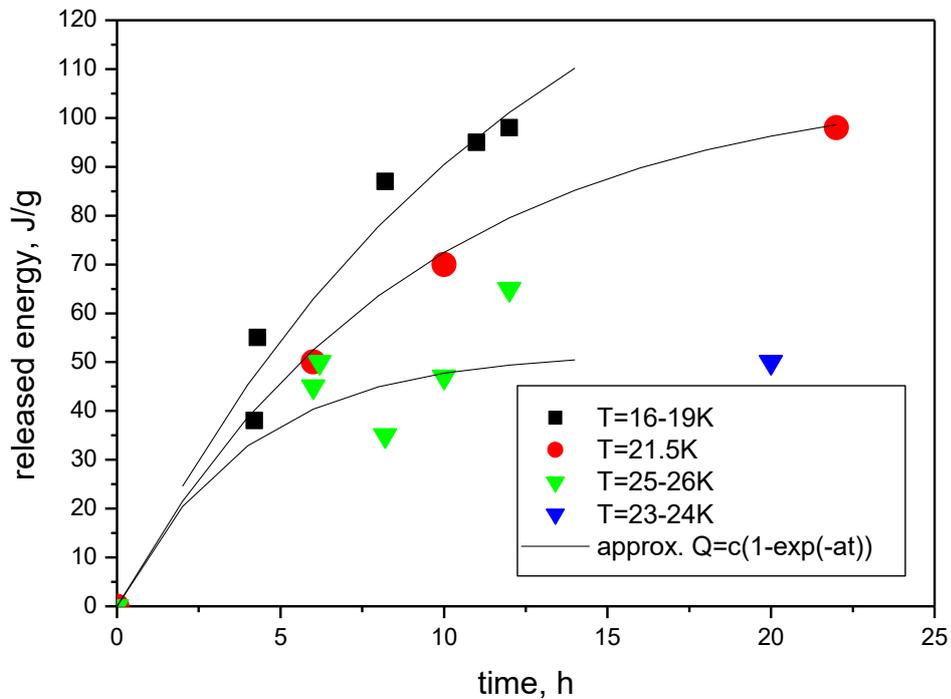


Рис. 34. Выделившаяся энергия в результате экзотермических реакций рекомбинаций радикалов в зависимости от продолжительности облучения (в часах) и температуры облучения метана.

В качестве основных результатов, полученных с твердым метаном, можно отметить следующие:

- Реакцию рекомбинаций радикалов всегда можно вызвать повышением температуры охлаждающего гелия, если энергия, накопленная в образце, превышает 35-40 Дж/г (более 4 часов облучения в условиях УРАМ-2, при толщине образца 0,3 мм). Для инициирования процесса рекомбинации скорость повышения температуры не должна быть слишком медленной, достаточно величины $\geq 0,5 \div 1$ К/мин [117].
- Максимальная скорость накопления энергии наблюдается в твердом метане при температуре ~ 20 К, $R \approx 12 - 14$ Дж/г/ч, что составляет $1,6\% \pm 0,2\%$ от поглощенной дозы. Величина насыщения энергии, которая зависит от температуры облучения и стремится к нулю при $T_{\text{облуч}} \sim 29$ К, составила $Q = 110 - 120$ Дж/г при $T_{\text{облуч}} = 21$ К (рисунок 35) [116]. Количество выделившейся энергии во время индуцированных внешним изменением охлаждения реакций рекомбинаций радикалов имеет линейную зависимость от температуры начала реакций.

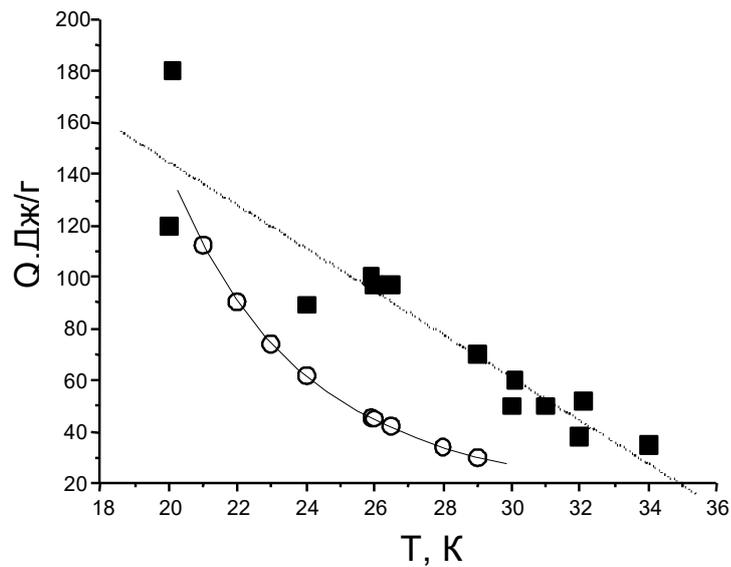


Рис. 35. Величина насыщения энергии в твердом метане. Черные квадраты – выделившаяся энергия во время индуцированных реакций рекомбинаций радикалов в твердом метане в зависимости от температуры начала реакции; пустые окружности – величины насыщенной энергии в зависимости от температуры облучения.

- Влияния толщины образца на инициализацию процесса реакции рекомбинации радикалов почти не наблюдалось. Только для относительно маленьких образцов (1,0 мм) необходима немного более высокая температура для начала реакции рекомбинации радикалов при тех же самых условиях облучения.
- Спонтанная реакция рекомбинации в метане наблюдалась только однажды (рисунок 14) при облучении 5 мм сегмента при температуре 20-22К в течении 11 часов. В то же время в сегменте с толщиной 2,5 мм при той же температуре облучения спонтанная реакция не началась даже после 26 часов облучения. Малая вероятность появления спонтанных реакций рекомбинации в экспериментах на УРАМ-2, в отличие от наблюдавшихся спонтанных реакций рекомбинаций в замедлителях на источниках нейтронов: ИБР-2, IPNS и KENS может быть объяснена

небольшим объемом облучаемого метана. Появление спонтанных реакций рекомбинаций в метане больше зависит от объема (массы) образца, чем от характеристических размеров (например, характеристическими размерам слоя/цилиндра является их толщина/радиус, соответственно, для любых объемов материала).

- Скорость накопления водорода составила $R_H=6 \cdot 10^{-7}$ моль/Дж при малых поглощенных дозах ~ 1 МГр и в два раза меньше при дозах $\gg 10$ МГр. Водород начинает выходить из метана только при достижении температуры материала $\sim 65 \div 70$ К. [99, 116, 128, 129].

Лед воды.

При облучении льда при температурах 20 К – 40 К нами наблюдались как спонтанные, т.е. не спровоцированные внешним изменением условий реакции, так и индуцированные реакции рекомбинации радикалов посредством незначительного изменения условий охлаждения образцов. Их возникновения во льде случались более часто, нежели в твердом метане или гидрате метана, но время, через которое происходила спонтанная реакция рекомбинаций во льде, не было постоянной величиной, а варьировалось от 5 до 11 часов.

Показания термопар во время развития спонтанных и индуцированных реакций рекомбинаций радикалов во льде приведены на рисунках 36 и 37 соответственно.

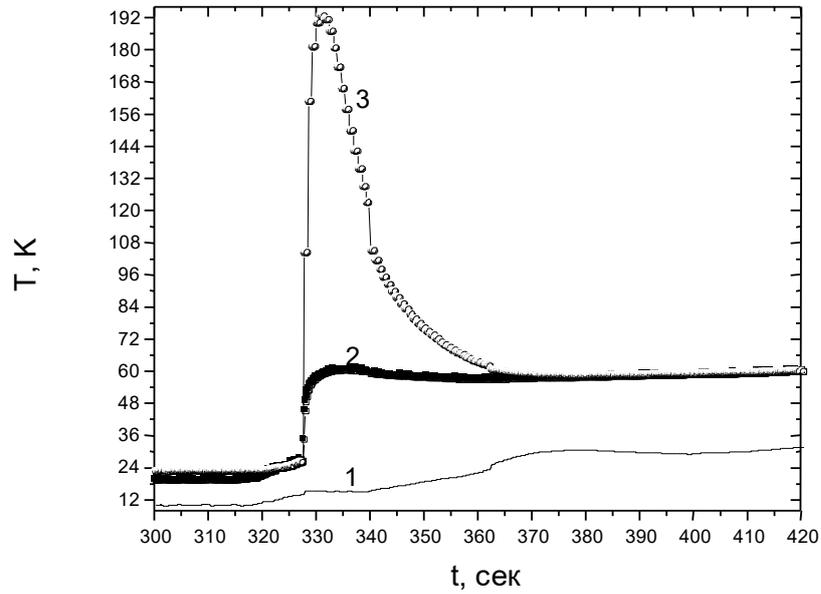


Рис. 36. Показания температур и расхода гелия во время индуцированной реакции рекомбинации радикалов в льде (1-температура гелия на входе в теплообменник капсулы, 2- температура стенок капсулы, 3- температура внутри образца). Время облучения 11 часов.

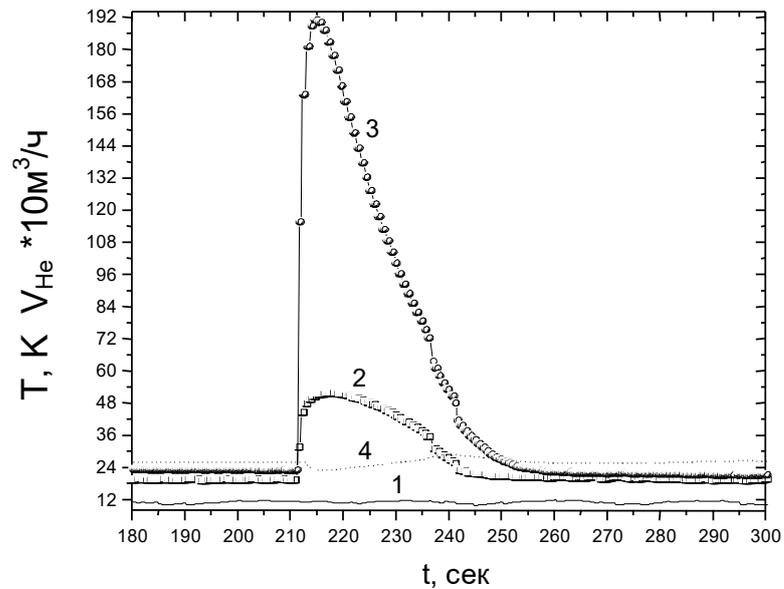


Рис.37. Показания температур и расхода гелия во время спонтанной реакции рекомбинации радикалов во льде (1-температура гелия на входе в

теплообменник капсулы, 2- температура стенок капсулы, 3- температура внутри образца, 4 – показания расхода гелия). Время облучения -10,5 часов.

Интенсивность накопления химической энергии радикалов во льде достигает $R \approx 20 - 24$ Дж/г/ч, что составляет $5,4\% \pm 0,4\%$ от поглощенной дозы. Величина насыщения по энергии, зависящая от температуры, стремится к нулю при $T_{облуч} = 45-50$ К (получена экстраполяцией зависимости $Q(T_{облуч})$) и оказалась равной $Q = 300$ Дж/г при $T_{облуч} = 20 - 25$ К. Чем выше температура облучения, тем быстрее наступает насыщение:

$$\tau [ч] \sim 0,53 (50 - T_{irr}).$$

Как видно из рисунка 38, кривая насыщения энергии имеет экспоненциальную зависимость, однако насыщение не будет достигнуто, поскольку спонтанная реакция рекомбинаций возникнет раньше [129].

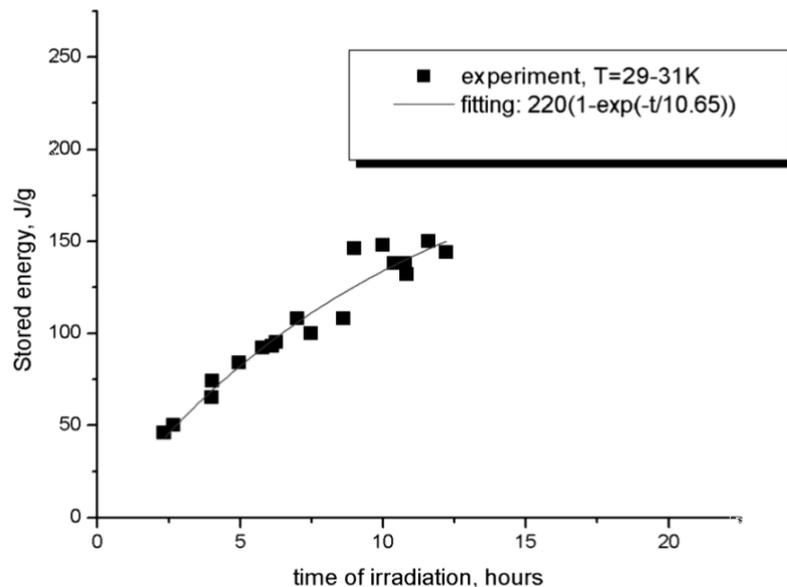


Рис. 38. Накопленная энергия в зависимости от времени облучения льда ($T=29-31$ К).

Одним из условий возникновения спонтанной реакции рекомбинации является достижение критической концентрации радикалов, но это условие не единственное. Подтверждением тому служит ряд экспериментов, которые проводились на одном образце непрерывно до тех пор, пока не произойдут несколько спонтанных реакций. Причем при каждой из них достигались такие температуры образца, что в нем заведомо все радикалы рекомбинировали. На рисунке 39 изображена диаграмма выделившейся энергии для одного из таких экспериментов. Из диаграммы видно, что при каждой последующей реакции рекомбинации количество выделившейся энергии и время облучения до ее возникновения меньше. Возможно, что накопленные повреждения в материале, которые не исчезали с повышением температуры, являлись стимуляторами возникновения спонтанной реакции рекомбинаций радикалов в образце при меньшей полученной дозе.

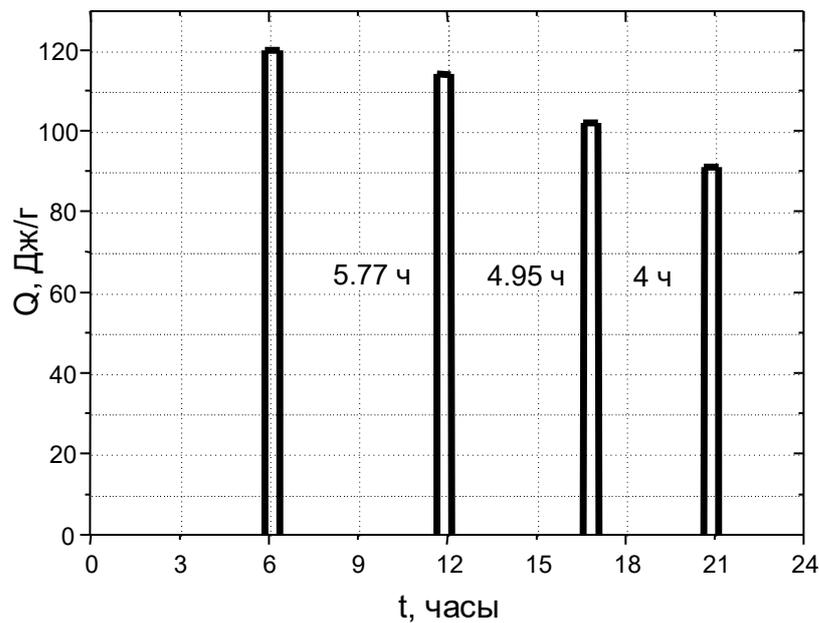


Рис. 39. Диаграмма выделенных энергий при быстрых спонтанных реакциях рекомбинаций при непрерывном облучении образца льда.

В результате экспериментов со льдом воды, помимо приведенных выше, получены следующие результаты:

- Спонтанные реакции рекомбинаций радикалов наблюдались, когда сегменты льда облучались в течение 5 - 11 часов при температуре <34 К, независимо от размеров образца.
- Время и запасенная энергия в спонтанных реакциях рекомбинаций варьировались от эксперимента к эксперименту при одинаковых условиях облучения. Это может быть объяснено не всегда идентичными процессами заморозки воды, что приводило к появлению небольшой части аморфной фазы льда, которая уменьшает скорость производства радикалов. Если образцы льда (шарики с диаметром 5 мм) получали путем замораживания капель воды в жидком азоте (быстрая заморозка), то скорость накопления энергии была в 2,53 раза меньше, чем у льда полученного медленным замораживанием воды [128].
- Для времени облучения 3 часа и более термически индуцированные реакции рекомбинации наблюдались всегда.
- Максимальная запасенная энергия составляет 148 - 110 Дж/г и лишь немного зависит от температуры облучения в диапазоне температур 19 - 42К.
- Для температуры облучения <35 К - 36 К вероятность и периодичность спонтанных реакций рекомбинаций в шариках зависит от температуры облучения. Для температуры облучения большей 35К-36К и любой продолжительности облучения, ни спонтанной реакции рекомбинаций, ни индуцированной в шариках льда, не наблюдалось.
- Накопление водорода во льде воды составляет $R_H = 3,4 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж.
- Под действием излучения наблюдалось ухудшение теплопроводности льда. В течение 10 часов облучения (доза ~ 4 МГр) теплопроводность льда изменилась с 40 Вт/м/К до 0,4 Вт/м/К (рисунок 40) [129].

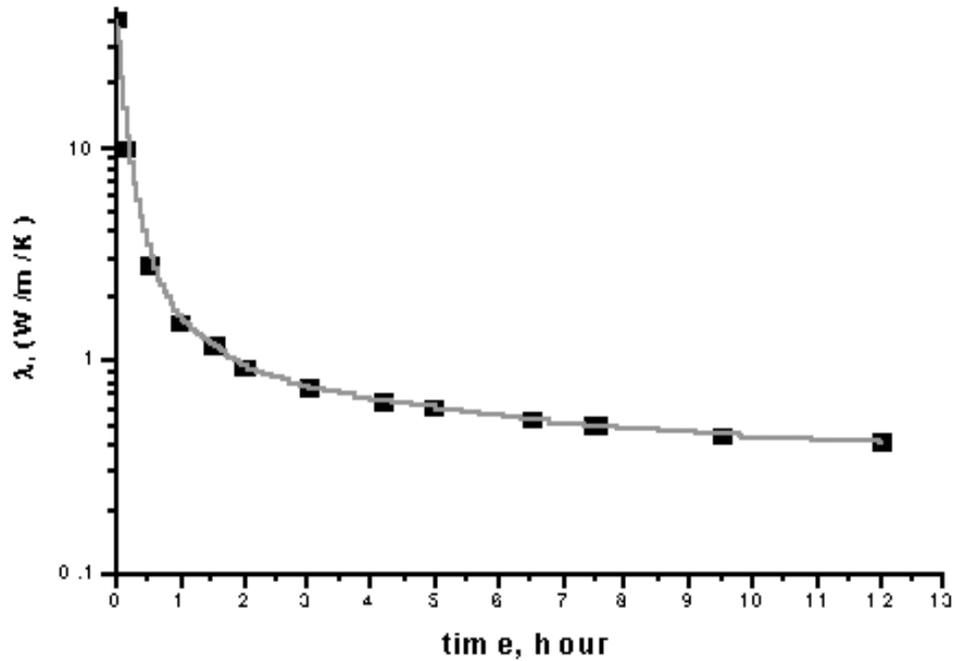


Рис. 40. Динамика изменения теплопроводности льда под облучением.

Гидраты и ароматические углеводороды

В восьми проведенных экспериментах с гидратом тетрагидрофурана и гидратом метана (клатратом) было отмечено, что их поведение схоже с поведением льда воды под облучением, но с меньшим накоплением радикалов (в $\sim 2,5 - 3$ раза), и, соответственно, меньшей накапливаемой энергией. Спонтанные реакции рекомбинаций (рисунок 41) появлялись при накоплении энергии $Q \sim 80-100$ Дж/г с величиной поглощенной дозы $>5,1$ МГр после 13 часов облучения при температуре 20 К. Оцененная скорость накопления энергии составила 10 Дж/г/ч.

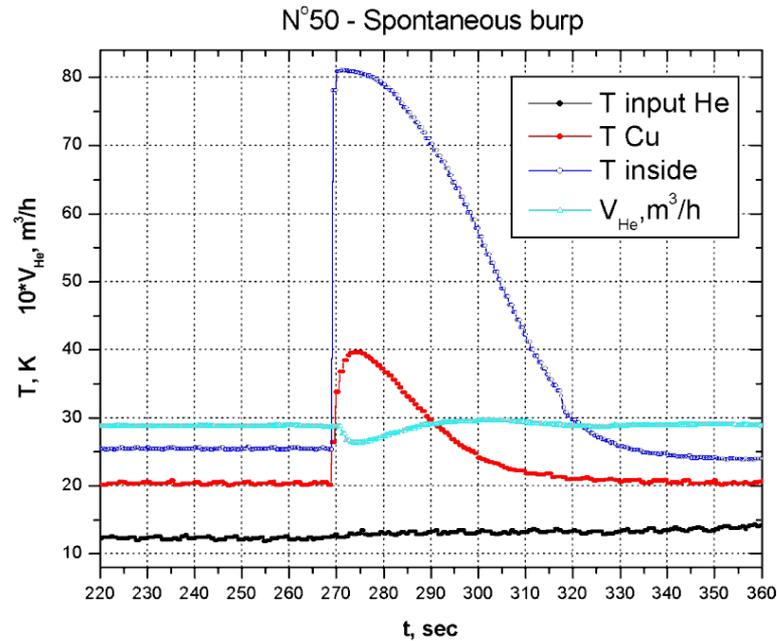


Рис. 41. Показания температур и расхода гелия во время спонтанной реакции рекомбинации радикалов в гидрате метана ($T_{\text{input He}}$ - температура гелия на входе в теплообменник капсулы, T_{Cu} - температура стенок капсулы, T_{inside} - температура внутри образца, V_{He} - поток гелия). Время облучения 13 часов.

При температуре облучения >25 К спонтанных реакций рекомбинаций радикалов не наблюдалось даже при большем времени облучения [117]. Вместе с тем, индуцированные реакции рекомбинаций за счет уменьшения теплоотвода от образца могли быть стимулированы (рисунок 42).

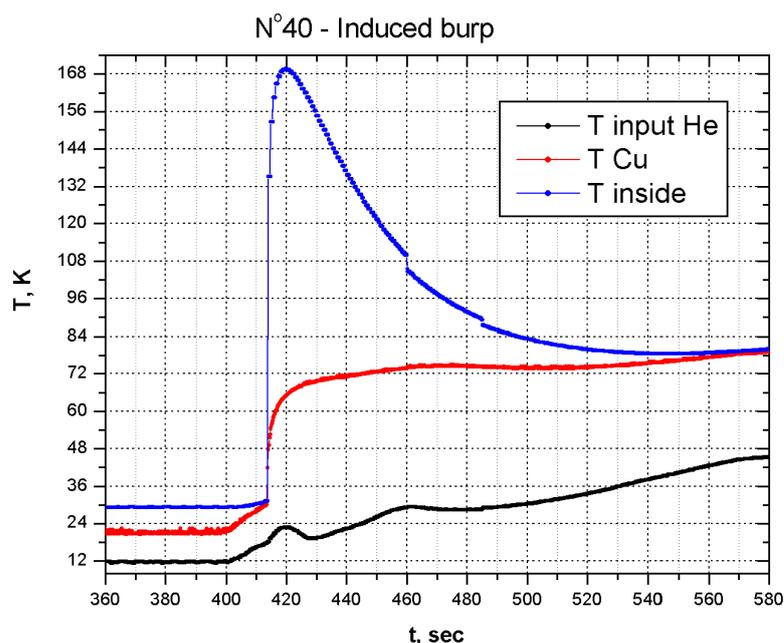


Рис. 42. Показания температур и расхода гелия во время индуцированной реакции рекомбинации радикалов в гидрате тетрагидрофурана ($T_{\text{input He}}$ - температура гелия на входе в теплообменник капсулы, T_{Cu} - температура стенок капсулы, T_{inside} - температура внутри образца). Время облучения 14,5 часов.

Радиационные эффекты в ароматических углеводородах (мезитилене в разных фазовых состояниях и смеси мезитилена с толуолом) проявились значительно слабее, чем в других изученных твердых водородсодержащих материалах. Во всех экспериментах не наблюдались спонтанные реакции рекомбинаций. Очень слабая экзотермическая реакция рекомбинации зафиксирована после 45 часов облучения с полученной дозой ~ 20 МГр (рисунок 43 (a, b)) [118].

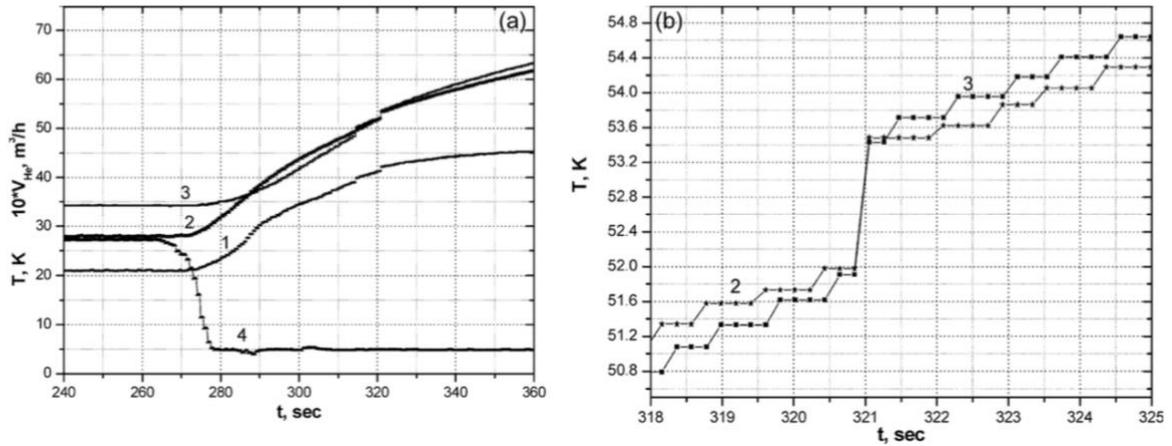


Рис. 43. (а) Показания термопар и расхода гелия в течение индуцированной реакции рекомбинации радикалов в мезитилене (1 - температура охлаждающего гелия, 2 - температуры медных стенок облучательной капсулы, 3 - температура мезитилена в 8 мм от стенок камеры, 4 - расход гелия). (б) Измененный масштаб измеряемых температур для интервала времени от 318 до 325 сек. Показания термопар в течение индуцированной реакции рекомбинации радикалов в мезитилене (2 - температура стенок облучательной капсулы, 3 - температура мезитилена в 8 мм от стенок капсулы).

Отсутствие спонтанных реакций рекомбинаций может быть объяснено относительно малой величиной накопленной энергии < 1 Дж/г ($< 0,02\%$ поглощенной дозы).

2.2. Экспериментальные работы по изучению давления на стенки камеры при облучении материала холодного замедлителя в твердом состоянии.

Опыт эксплуатации холодных замедлителей с твердым водородсодержащим материалом при низких температурах ($\sim 20 - 30$ К) показал, что при облучении твердый водородсодержащий материал под действием радиации подвержен декомпозиции с образованием

радиолитического водорода, который не выходит из материала, а создает давление внутри материала, которое передается на стенки камеры замедлителя. В результате, как уже отмечалось ранее, камеры замедлителей разрушались, например, твердометановый замедлитель на источнике IPNS (США) (рисунок 17) [102] и гребенчатый метановый замедлитель на ИБР-2.

Основной целью серии экспериментальных работ на специально разработанных и созданных установках УРАМ-3М [100, 127] на третьем канале реактора ИБР-2 и установке УРАМ-3 на ускорителе электронов «МТ-25» в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ [112, 130] было определение величины давления на стенки камеры от метана, мезитилена и смеси мезитилена с *m*-ксилолом при низких температурах при их облучении.

2.2.1. Экспериментальные работы на установке УРАМ-3М на реакторе ИБР-2.

Экспериментальная установка УРАМ-3М [100] предназначена для измерения давления, создаваемого твердым метаном на стенки камеры во время отогрева после его облучения на реакторе ИБР-2 потоком быстрых нейтронов при низких температурах. Водород, как в атомной, так и в молекулярной форме, является основным продуктом радиолиза метана. Четыре молекулы метана разлагаются в среднем на три молекулы водорода. Величина относительного производства водорода (R_{H_2} моль/г от CH_4) была получена экспериментальным путем и определяется формулой [127, 131]:

$$R_{H_2} = 3 \cdot 10^{-4} * D' * (t + D_0/D' * (1 - \exp(-D' t/D_0))),$$

где D' является мощностью поглощенной дозы, МГр/ч ($1 \text{ Вт/г} = 3,6 \text{ МГр/ч}$), D_0 является постоянным членом $\sim 8 \text{ МГр}$ и t - время облучения в часах. При малых дозах она составляет $6 \cdot 10^{-7}$ моль/Дж.

Как правило, твердометановый замедлитель работает при температурах 20-30К, и радиолитический водород, находясь в конденсированном состоянии, при облучении не вызывает какого-либо измеримого внутреннего

давления и «распухания» метана [131]. Но при нагревании метана газообразный водород создает внутреннее давление в матрице твердого метана, которое передается на стенки камеры замедлителя и может привести к их повреждению [102, 115]. Поэтому при проектировании холодных замедлителей на основе твердого метана необходимо учитывать этот эффект для определения частоты периодических отжигов с целью отгонки водорода.

2.2.1.1. Описание установки.

Установка УРАМ-3М (рисунок 44) была создана на базе оборудования установки УРАМ-2 на канале 3 реактора ИБР-2 с изменением головной части и контрольно-измерительной системы.

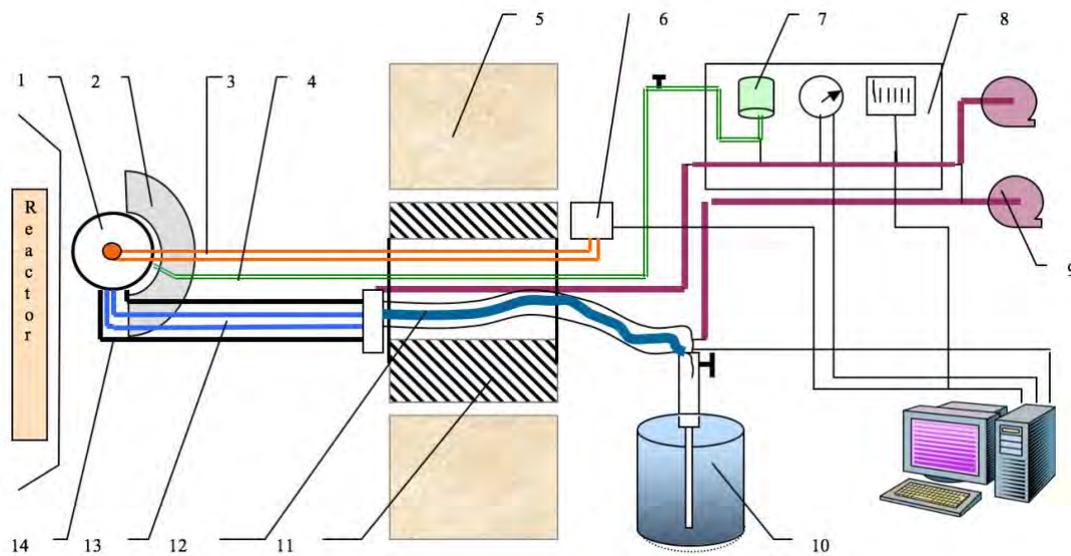


Рис. 44. Принципиальная схема УРАМ-3М (1 – камера с образцом, 2 – бериллиевый рефлектор, 3 – коаксиальные кабели датчиков перемещений, 4 – трубки подачи метана, 5 - биологическая защита, 6 – адаптеры и усилители, 7 – емкости для метана и гелия, 8 – технологический пульт, 9 – вакуумный насосы, 10 – сосуд с жидким гелием (250 л), 11 - подвижный защитный блок, 12, 13 – гелиепровод, 14 – вакуумная и несущая труба).

Установка позволяла облучать твердый метан внутри цилиндрической камеры диаметром 35 мм и толщиной 15 мм, заполненной алюминиевой «губкой» с открытыми порами размером 2 - 4 мм при температуре 25-35 К в течение до двух суток непрерывно при дозе 0,11 Вт/куб. см. Для охлаждения камеры использовался жидкий гелий из сосуда емкостью 250 л. Под давлением паров гелия в сосуде гелий в виде паро-жидкой смеси и газа по гелиепроводу диаметром 5 мм и длиной около 16 м (2 метра из которых – гибкий сильфон) проходит к облучаемой камере. Поток гелия регулируется как холодным, так и теплым вентилями (вручную). Тонкая регулировка температуры гелия осуществляется путем нагрева части вакуумной оболочки гелиепровода внешним электрическим нагревателем (мощность до 120 Вт). Полезный поток тепла от нагревателя – до 5 Вт.

Устройство облучаемой камеры с вакуумным кожухом показано на рисунках 45 и 46 [132]. Сама камера и вакуумный кожух были изготовлены из стали 12Х18Н10Т. Две плоские стенки камеры толщиной 1,5 мм и диаметром 50 мм служили мембранами, которые перемещались под давлением радиолитического водорода во время отогрева после облучения.

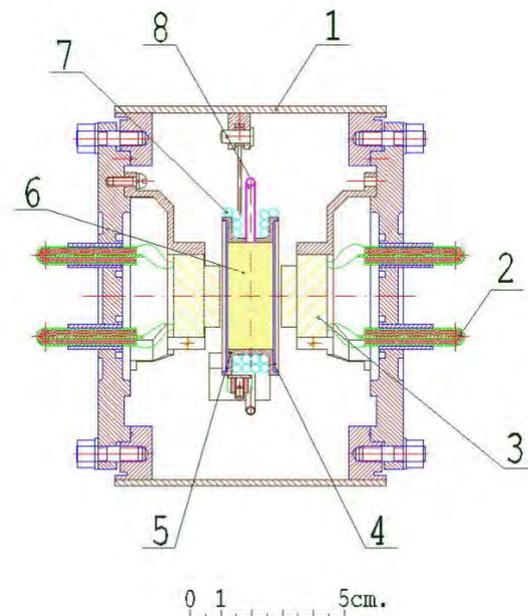


Рис. 45. Камера с вакуумным кожухом, сечение в вертикальной плоскости перпендикулярно оси установки (1– цилиндрический корпус

вакуумного кожуха; 2 – коаксиальные кабели датчиков перемещений; 3 - датчики перемещений; 4 – мембраны камеры; 5 – цилиндрическая оболочка камеры с образцом; 6 – образец (алюминиевая «губка» с твердым метаном); 7 – витки медной трубки - теплообменник; 8 – стальная трубка для газообразного метана и выхода водорода); 9 – датчики температуры; 10 – стальная струна для фиксации камеры; 11 – стальная трубка для подачи гелия).

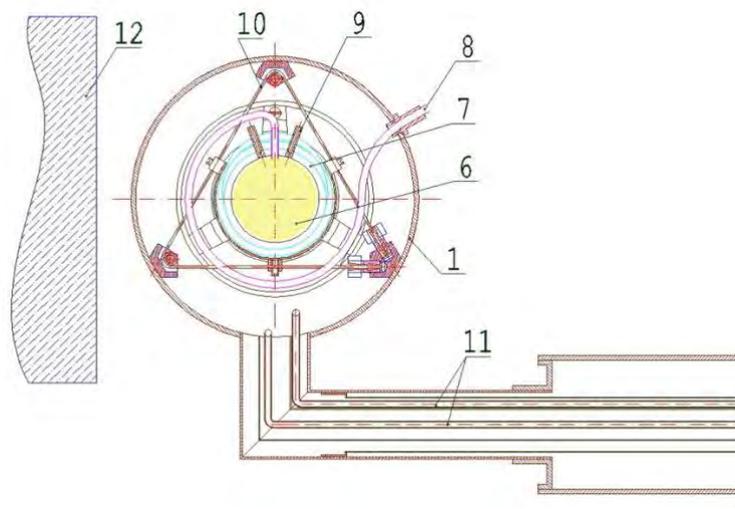


Рис. 46. Камера с вакуумным кожухом, сечение в вертикальной плоскости по оси установки (1– цилиндрический корпус кожуха; 6 – образец (алюминиевая «губка» с твердым метаном); 7 – витки медной трубки; 8 – стальная трубка для газообразного метана и выхода водорода; 9 – датчики температуры; 10 – стальная струна для фиксации камеры; 11– трубки подачи гелия).

Перемещение мембран регистрировалось двумя датчиками индукционного типа. Их чувствительность – 1,5 В/мм при максимально-ожидавшемся смещении менее 0,4 мм. Показания датчиков были проградуированы на смещения мембран при температуре жидкого азота посредством подачи избыточного давления газообразного гелия в камеру. Использование двух датчиков позволяло скорректировать температурные смещения камеры. Камера пространственно-ориентирована и закреплена

внутри вакуумного кожуха натянутой стальной нитью. С противоположной реактору стороны находился бериллиевый рефлектор толщиной 4 см для увеличения мощности дозы в метане и выравнивания дозы по объему камеры.

Чтобы предотвратить переполнение камеры метаном при конденсации и возможное в дальнейшем блокирование выхода водорода, были предусмотрены следующие меры:

- Количество конденсируемого метана строго контролировалось по изменению давления в известном газовом объеме.
- Внутри подающей газ трубки (внутренний диаметр 4,4 мм) коаксиально проходил медный капилляр (1,5 × 0,2 мм), впаянный на выходе из вакуумного кожуха и имеющий свободный конец вблизи шейки камеры. Из-за высокой теплопроводности меди шейка камеры всегда имела температуру выше 100 К.

На образующую поверхность камеры были спирально навиты и напаяны 6 витков медной трубки (3 × 0,5 мм), которые являлись теплообменником между камерой и охлаждающим гелием.

Гелиепровод состоял из стальной трубки 6 × 0,5 мм, изолированной 8 - 10 слоями тонкой мятой алюминиевой фольги и помещенной в вакуумированную (до $\sim 10^{-5}$ мбар) трубу диаметром 40 мм. Тепловые развязки выполнены в трех местах. Самая длинная (40 мм), находилась в компенсаторе и представляла собой изогнутый сильфон. Отводящая часть гелиепровода в районе от камеры до компенсатора шла параллельно подводящей части в той же вакуумированной трубе и имела тепловую развязку в виде медного витка в компенсаторе. Далее она проходила по вакуумно-изолированному трубопроводу до водяного нагревателя, а затем

через расходомеры на технологическом пульте. Сброс на газгольдер для компримирования осуществлялся через регулирующий вентиль.

Напротив внешнего электрического нагревателя, расположенного в 400мм (по его центру) от выхода вакуумной трубы гелиопровода из компенсатора, имелась оголенная и закопченная часть гелиевой трубки длиной 100 мм, что повышало КПД нагревателя. Мощность нагревателя 5 - 7 Вт поглощалась гелием при температуре обогреваемой трубы 500 - 550⁰ С. Нагреватель, выполненный традиционно в виде стальной трубки с магниевой изоляцией, был навит на вакуумной трубе гелиопровода и припаян к ней в нескольких местах серебряным припоем, обмотан асбестовым шнуром и закрыт сверху фольгой из нержавеющей стали. Электроотводы выполнены радиационно-стойким проводом с каптоновой изоляцией. Напряжение питания – 40В.

Газо-вакуумная технологическая часть была предназначена для создания вакуума в объеме головной части и в гелиопроводе, дозированной подачи метана в камеру и его откачки, сбора отработанного газа, подачи давления в камеру для градуировки датчиков перемещения. Схема приведена на рисунке 47.

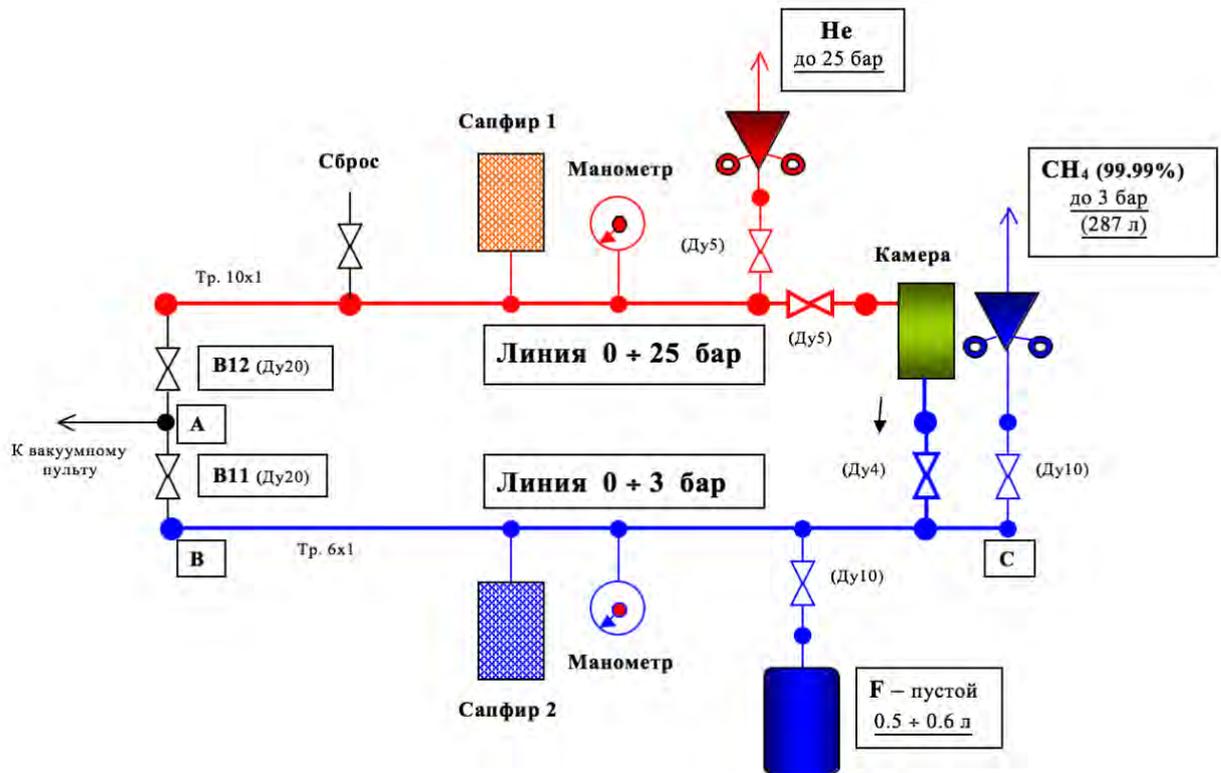


Рис. 47. Газо-вакуумная технологическая схема. («Сапфир - электронные вакуумметры»)

2.2.1.2. Основные параметры установки и измерительная система.

Основные параметры установки УРАМ-3М:

- плотность потока быстрых нейтронов ($E > 0,4 \text{ MeV}$): $2 \cdot 10^{12} \text{ н/см}^2/\text{с}$;
- мощность дозы: 0,22 Вт/г в метане, 0,02 Вт/г в металле;
- максимальное время непрерывного облучения – 2 суток;
- температура образца: 25 - 100 К.

Внешний теплоприток на камеру составил 1 Вт (расчетные данные). Тепловая мощность, вносимая излучением в конструкционные материалы камеры вместе с теплообменником и крепежными элементами, составила ~ 4 Вт (масса металла - 190 г). Вместе с тепловыделением в образце (1,4 Вт) полное тепловыделение в камере составляло $\sim 7 - 7,5$ Вт. Температура гелия на входе в теплообменник на испытаниях вне реактора была 15 К при

расходе гелия 3,7 (норм. м³/ч). Соответственно, согласно тепловому расчету, выполненному по программе трехмерной теплопередачи COSMOS [133], при облучении в течение 2-х суток (расход гелия 240 л) температура образца в центре достигает 28 К, а на периферии – 25 К (рисунок 48).

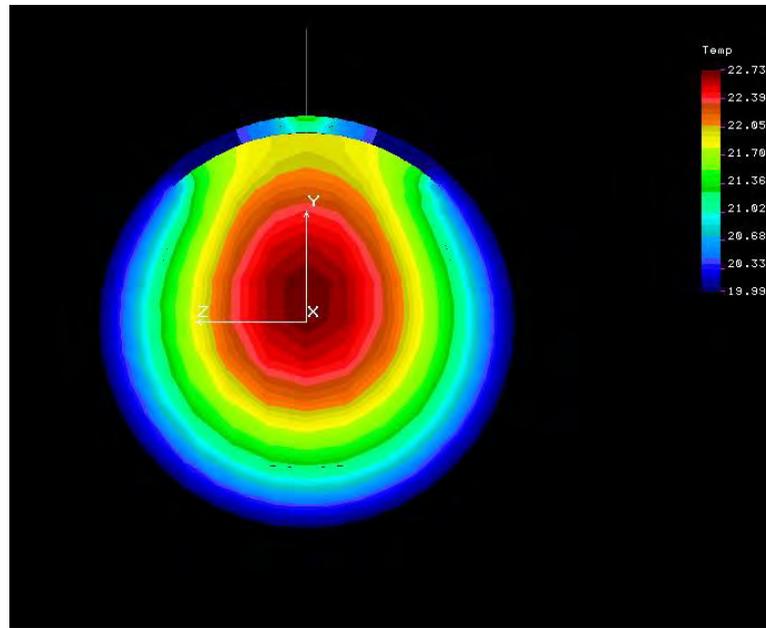


Рис. 48. Распределение температур в метане и стенках камеры при температуре входного гелия 10 К.

Измерение температуры камеры производилось двумя термопарами ТХК (хромель-копель) в стальной оболочке, припаянной сплавом олово-свинец на длине 3 - 4 см в промежуток между витками змеевика и далее, через 10 см – к отводящей гелий трубке. Кроме того, измерялась температура на входной и выходной трубках гелиопровода вблизи соединения их с медной трубкой змеевика.

Компьютерная регистрация проводилась для следующих параметров:

- температура медного змеевика (т.е. стенок камеры);
- температура гелия на входе и выходе из змеевика;
- перемещение мембран;

- давление газа в объеме подачи метана и сбора водорода (0-1,6бар) с погрешностью 0,1% от полной шкалы (датчиком САПФИР);
- давление газа при калибровке датчиков перемещения (0- 25 бар) (датчиком САПФИР);
- объемный расход гелия в интервале 0,5-5 м³/час с погрешностью 0,2%;
- мощность нагревателя.

Частота опроса всех параметров – 2 Гц.

Малый расход гелия 0 - 3 м³/час измерялся поплавковым датчиком с погрешностью 3%. Измерение давления в газовых объемах дублировалось с помощью образцовых манометров.

2.2.1.3. Проведение экспериментов и анализ экспериментальных данных.

Для проведения экспериментов с твердым метаном, головная часть установки придвигалась к реактору ИБР-2 на 3-ем канале на расстояние 20 мм от замедлителя. Отвакуумированная головная часть охлаждалась до температуры 90,6 К (температуры конденсации метана) и после завершения процесса конденсации метана температура понижалась до 25-30 К на время всего эксперимента.

После определенного времени облучения температура повышалась до 90 К с заданной скоростью (от 0,3 - 5 К/мин) путем снижения расхода гелия и включением нагревателя. В переходном режиме велась запись показаний датчиков давления газа в емкости и показаний датчиков, фиксирующих перемещение мембран.

После насыщения давления в объеме сбора водорода (что означало – выход всего накопившегося водорода из метана), камера наполнялась гелием

до измеренного давления водорода для проверки калибровки датчиков. Затем метан испарялся, а камера нагревалась до 355 К и откачивалась в течение времени, достаточного для удаления продуктов разложения метана. После этого установка была готова к следующему эксперименту.

В экспериментах с твердым метаном варьировались несколько параметров (ряд экспериментов по облучению проводился с метаном с добавлением BF_3 газа, обогащенного B_{10} до 83%, что увеличило мощность дозы до 0,5 Вт/г, без увеличения времени облучения) (Таблица 6).

Таблица 6. Экспериментальные данные полученные на установке УРАМ-3М.

<i>No</i>	<i>A</i>	<i>B</i>	<i>C</i>	<i>D</i>	<i>E</i>	<i>F</i>	<i>G</i>	<i>H</i>	<i>I</i>
1	430	6.0	25- 27	18.8	2.5-3	13.7	24	81-87	~3 %
2	406	5.7	25- 30	17.1	1.5-2	13	24	83-85	~10%
3	450	9.16	30- 35	28.3 ^{**})	4-5	21.5	10	86-88	~10%
4	400	15.5	25- 26	37.3	~0.5	21	21	67-72	3 %
5	400	6.7	27- 30	19.3	-***)	20.5	~20	>85	~10%
6	406	24.2	30- 35	51.4	0.6- 1.4	24	24	66-74	6 %
7	400	29.5	30- 39	60.0	1-2	24.5- 25	20	64-72	~11 %

8	391	9.8	30-31	23.4	0.3	13	21	69-79	0.7 %
9*	383	7.5	85	39	-	-	-	-	-
10	367	18	23	80	10-15	19.7	16	68- 74	28%

где: А – Количество загруженного метана в ммоль; В – время облучение *), час; С - температура облучения, К; D - количество накопленного H₂, ммоль; E - скорость нагрева, К / мин; F - пиковое давление на мембрану, P_{max} бар; G - доля вышедшего H₂ до момента достижения показаний давления P_{max} , %; H – температурный диапазон выхода водорода, К; I - максимальная скорость выхода водорода, мин⁻¹.

*) 1 час облучения \equiv 0,81 МГр (для экспериментов №№ 1-8); **) Расчетное значение; ***) Нагрев камеры за счет заполнения теплым газом метаном;) Эксперименты № 9 и № 10 были сделаны с метаном, с добавкой бора; эксперимент № 9 был проведен для проверки влияния добавки бора на количество водорода.

На рисунке 49 приведено максимальное давление на мембраны от суммарно накопленного в твердом метане водорода. Шесть из девяти экспериментальных точек легли на кривую, которая может быть аппроксимирована полиномом третьей степени. Эксперименты, соответствующие этим точкам, выполнены в аналогичных условиях (камера не переполнена и скорость нагрева лежала в пределах 0,5 - 15 К/мин), за исключением температуры облучения. Три другие экспериментальные точки отличаются условиями эксперимента - либо заполнением камеры (эксперимент № 3), либо способом нагрева (в эксперименте № 5 нагрев метана осуществлен добавкой теплого газа метана, а в № 8 – с очень низкой скоростью). Последнее обстоятельство не является существенным для практики, поскольку для получения меньшего на ~20% давления на

мембраны, необходимо потратить дополнительный час для поддержания скорости нагрева.

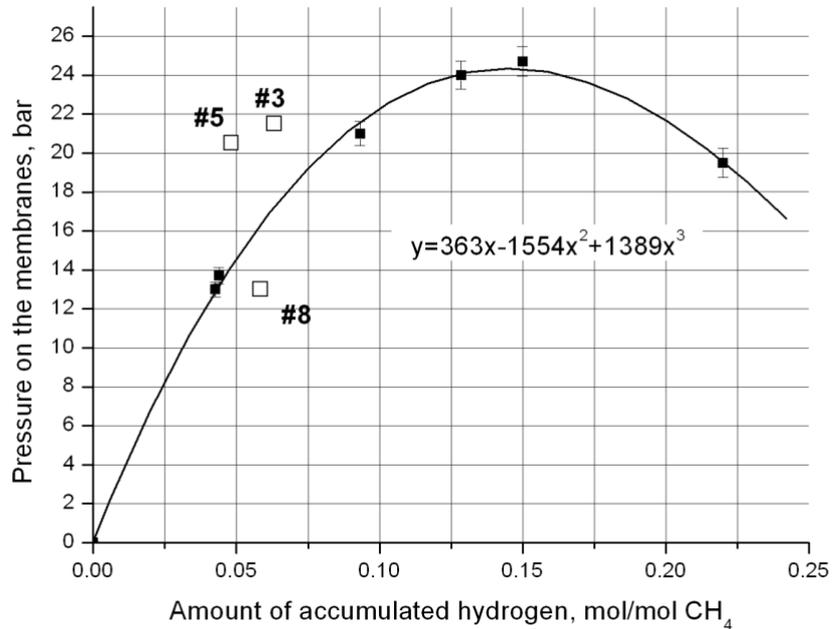


Рис. 49. Пиковое значение давления во время нагревания облученного метана в зависимости от количества накопленного водорода. Черные квадраты - эксперименты с нормальным количеством метана в камере и с средней или высокой скоростью нагрева после облучения; полые квадраты - эксперименты с различными параметрами нагрева.

Обобщая результаты экспериментов, следует отметить следующие закономерности в поведении давления на мембране при нагреве образцов метана:

- давление на мембрану всегда достигает пикового значения при температуре в диапазоне 72-79 К (после длительного облучения), до этого момента только около 20% накопленного водорода выходит в газовый объем во всех экспериментах;
- скорость высвобождения водорода зависит от температуры не монотонно: в пределах 64 – 72 К (для больших доз радиации) она резко

усиливается и затем возвращается к экспоненциальному росту (рисунок 50);

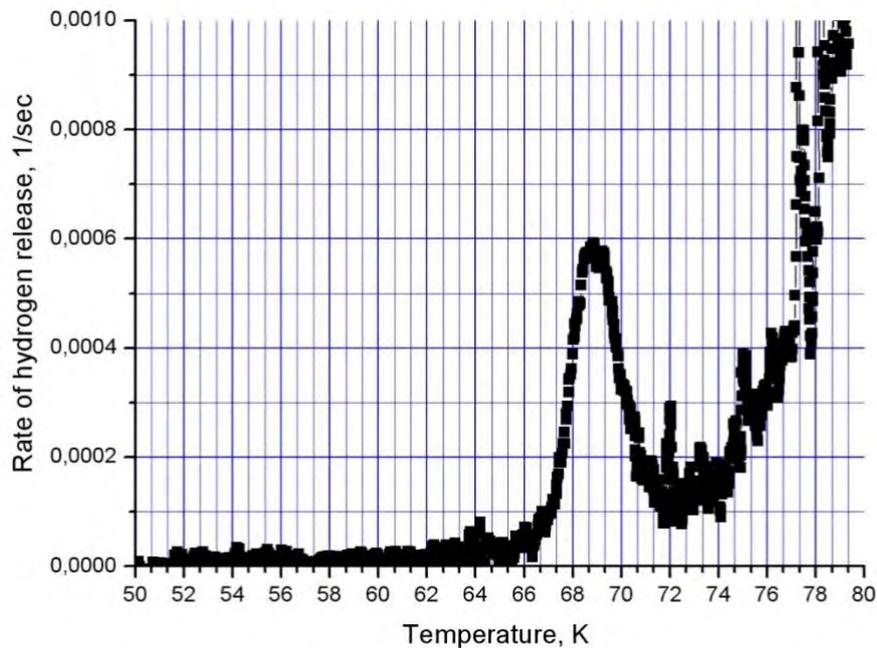


Рис. 50. Скорость выхода водорода (отношение к количеству не вышедшего водорода) от температуры.

- перед началом выхода водорода при $T > 64$ К, зарегистрированы смещения мембран в результате «распухания» метана. Величина смещений составляет около половины пикового значения, которое происходит при скачке температуры от 40 К до 60 К. Анализ баланса тепла в камере показал, что в данный момент в метан вносится дополнительная энергия, которая составляет около 60 Дж/г.

Для твердого метана с облучением до дозы > 20 МГр при нагревании пиковое значение давления на мембраны достигает максимума около 2,5МПа (смещение мембраны 0,4 мм, соответственно), а затем падает вниз, поскольку резко начинает выходить накопленный радиолитический водород, вне зависимости от скорости нагрева (рисунок 51). Поскольку диаметр мембраны больше, чем диаметр алюминиевой губки, максимальное давление на

мембране создавалось на 10% больше, то есть около 2,7 МПа. В экспериментах №1, № 4 и №10 наблюдались индуцированные реакции рекомбинаций радикалов, которые накапливались во время облучения. Поскольку скорость их протекания достаточно высока, то они не оказывают заметного влияния на значение пиковой нагрузки на мембранах. Эффективная длительность реакций рекомбинаций изменялась от $\leq 0,2$ сек (0,2 сек определяется временным разрешением опроса термопар в эксперименте) до ~ 1 сек в соответствии с запасенной энергией в конкретной точке образца

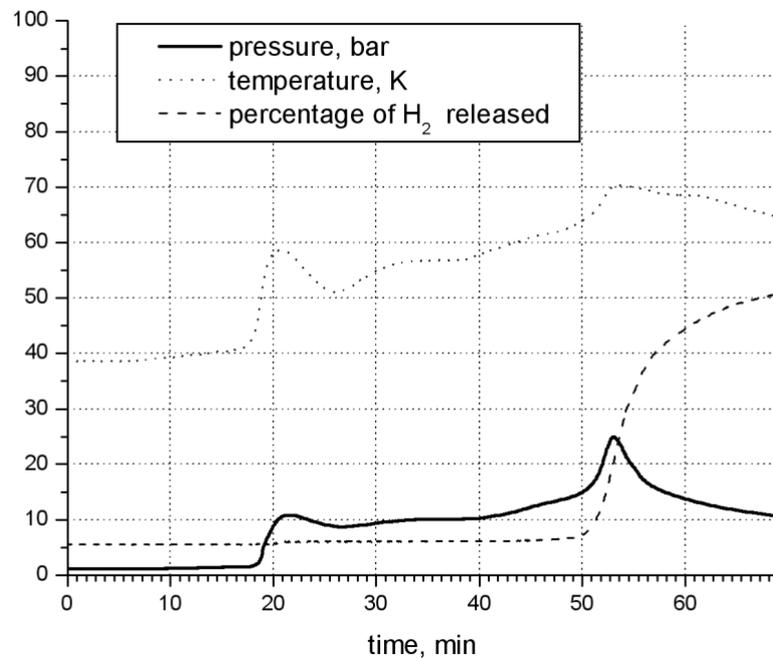


Рис. 51. Показание параметров эксперимента в процессе нагрева метана (эксперимент № 7).

2.2.2. Экспериментальные работы с мезитиленом и его смесью с т-ксилолом на установке УРАМ-3 на микротроне МТ-25.

Целью экспериментальных работ с мезитиленом и его смесью с т-ксилолом на установке УРАМ-3, которая была установлена на микротроне МТ-25 в Лаборатории ядерных реакций, являлось определение давления на оболочку экспериментальной цилиндрической камеры (ТВЭЛ) при его

отогреве после облучения при температурах жидкого азота [112]. Исследуемыми образцами, которыми заполнялся твэл, были чистый мезитилен и его смесь (в отношении 3:1) с *m*-ксилолом. Давление на оболочку твэла может создаваться как от температурного расширения замороженного образца, так и (что и является главной целью) от накопленного в процессе облучения водорода. При повышении температуры в образце давление водорода увеличивается и передается на оболочку твэла вследствие «распухания» образца.

Энергия электронов в пучке ускорителя «МТ-25» – 9,5 МэВ, а ток пучка электронов изменялся в каждом цикле измерений и был в пределах от 2,5 до 6,2 мкА.

2.2.2.1. Описание установки и методика измерений.

Основой экспериментальной установки (рисунок 52 а) является азотный криостат. В среде жидкого азота механизмом вертикального перемещения передвигалась трубка с экспериментальным твэлом (рисунок 52 б). Шаг перемещения вверх-вниз – 85 мм. Период перемещения ~7 секунд, причем вниз твэл двигается быстрее – за 2,5 секунды. Перемещение трубки было необходимо для равномерного облучения электронами всего объема образца. Размер пучка электронов был около 15 мм.

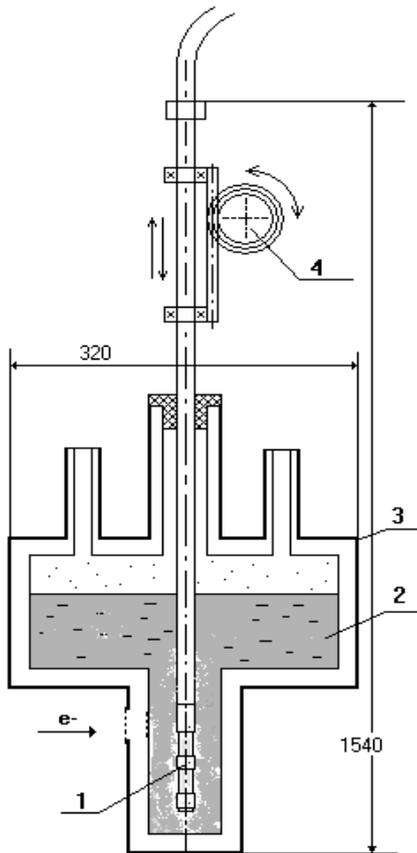


Рис. 52 а). Схема экспериментальной установки:

1 – экспериментальный твэл; 2 – жидкий азот; 3 – криостат;
4 – механизм вертикального перемещения.

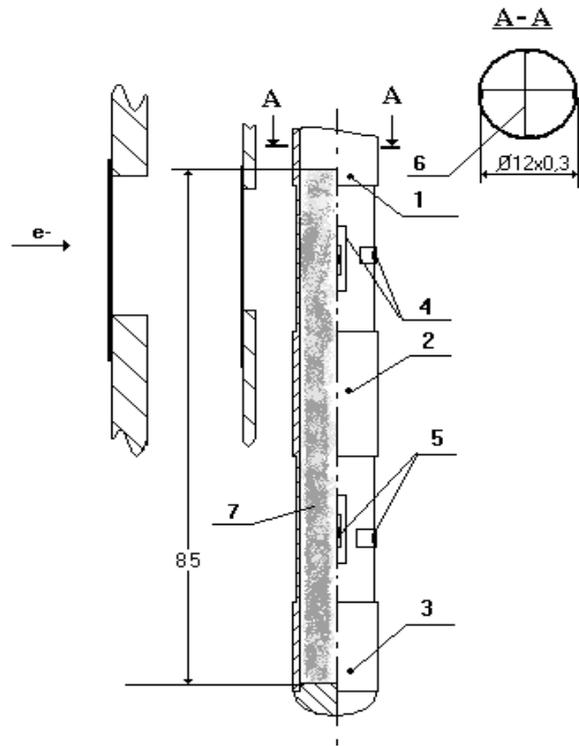


Рис. 52 б). Схема экспериментального твэла:

1, 2, 3 – верхняя, средняя и нижняя термопара; 4, 5 – верхний и нижний тензометрический мост; 6 – медная фольга; 7 – исследуемый образец.

Экспериментальный твэл представляет собой стальную трубку диаметром 12 мм с толщиной стенки 0,3 мм, с утоньшением в местах установки измерительных тензометрических мостов до толщины $\sim 0,1 \div 0,15$ мм с целью повышения чувствительности приборов. С одного конца экспериментальный твэл был заглушен и заполнялся 10 см³ мезитилена (или смесью мезитилена (75%) с *m*-ксилолом (25%)). Высота столба замороженного образца ~ 85 мм. В экспериментальный твэл для снижения

перепада температуры по радиусу была вставлена медная фольга толщиной 0,1 мм в виде «креста», позволяющая получить наименьший перепад температур в образце (рисунок 53). Когда в трубке фольги нет, то распределение температуры в мезитилене подчиняется соотношению:

$$T(\eta) = \frac{q_v \cdot R^2}{4 \cdot \lambda} \cdot (1 - \eta^2), \text{ где } \eta = \frac{r}{R}, T - \text{ температура в образце на}$$

расстоянии r - от центра твэла, q_v - удельное тепловыделение в образце, а λ - теплопроводность образца.

При установке медной фольги распределение температуры в мезитилене описывается уравнением в частных производных в пространстве цилиндрических координат:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} = -\frac{q_v}{\lambda},$$

с граничными условиями:

$$\begin{aligned} r = 0, T(0, \theta) &= 0; \\ r = R, T(R, \theta) &= 0; \\ \theta = 0, \frac{\partial T(r, 0)}{\partial \theta} &= 0; \\ \theta = \pm \theta_0, T(r, \pm \theta_0) &= 0. \end{aligned}$$

где θ - угол в системе цилиндрических координат.

Расчет температурного распределения проведен для параметров $q_v = 1,0 \text{ Вт/см}^3$ и $\lambda = 0,2 \text{ Вт/м К}$. Его результаты для угла $\theta = 0$ (область в образце с наибольшей температурой) представлены на рисунке 53.

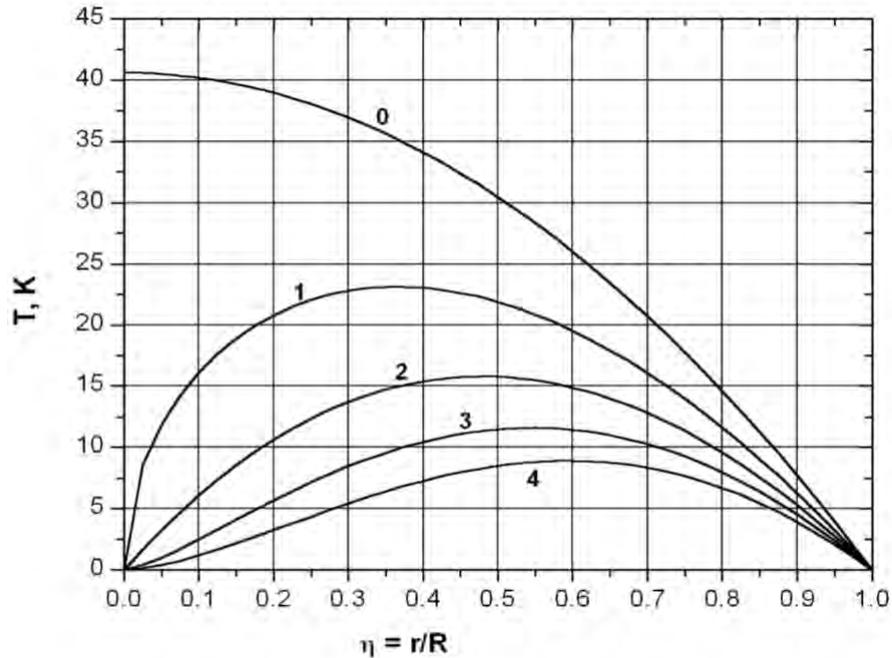


Рис. 53. Распределение температуры по радиусу трубки ($R = 57$ мм). Кривые соответствуют вариантам: 0 – внутри трубки фольги нет; 1 – фольга расположена по радиусу трубки ($\theta_0 = \pi$); 2 – фольга расположена по диаметру трубки ($\theta_0 = \pi/2$); 3 – фольга делит трубку на три части ($\theta_0 = \pi/3$); 4 – фольга делит трубку на четыре части, «крест» ($\theta_0 = \pi/4$).

Экспериментальный твэл высотой ~ 150 мм переходил в стальную, более толстую трубку, которая была соединена с газовой полостью для сбора водорода и других газов и была подсоединена к механизму вертикального перемещения. Пучок электронов проходил через две тонкие мембраны криостата, жидкий азот и затем попадал на экспериментальный твэл.

В двух контрольных точках твэла, в которых уменьшена толщина стенки для контроля номинального давления были установлены 2 осевых и 2 кольцевых тензорезистора типа ВТ-358 или ЕТ-286 (рисунок 52 б (п. 4, 5)), которые в целях увеличения чувствительности, надежной компенсации температурных и прочих влияющих факторов подключались к универсальной информационно-измерительной системе ORION-3530 фирмы

"SOLARTRON" по схеме полного тензометрического моста. Передача выходной информации на ПК производилась через интерфейс типа RS 232.

Для измерения температур были установлены 3 термопары типа ТМК (1, 2, 3) (рисунок 52 б). Информация от термопар передавалась на ПК с использованием преобразователей «Adam» и после обработки по специально написанной для этого программе записывалась в текстовый файл.

Для контроля давления в газовой полости использовался первичный преобразователь типа «Сапфир-2». Информация о значении давления в газовой полости с преобразователя «Сапфир-2» также передавалась данной программе и записывалась в тот же текстовый файл.

Температурная характеристика тензометрических мостов определялась по результатам обработки сигналов в процессе разогрева экспериментального твэла от 77 К до $\sim 220 \div 250$ К. Она использовалась при обработке результатов измерений номинального давления на оболочку экспериментального твэла в качестве поправки.

2.2.2.2. Проведение экспериментов и анализ полученных экспериментальных данных.

Перед каждым циклом облучения экспериментальный твэл заполнялся мезитиленом или его смесью с m-ксилолом, в объеме 10 см³, при комнатной температуре. Далее исследуемый образец замораживался путем заливки в криостат малых порций жидкого азота. При температуре экспериментального твэла <200К криостат заполнялся жидким азотом полностью. Затем, газовая полость над исследуемым образцом вакуумировалась, в нее подавался гелий до достижения давления в полости ~ 60 мбар и включался ускоритель электронов. При облучении экспериментального твэла начинал работать механизм вертикального перемещения трубки.

Во время замораживания твэла, его облучения и при дальнейшем разогреве температура твэла контролировалась тремя медь-константовыми

термопарами, установленными на разной высоте. Опрос средней термопары проводился через $\sim 0,2$ секунды, а верхней и нижней термопары – через ~ 5 секунд.

После окончания облучения начиналась подготовка к отогреву экспериментального твэла и его разогрев. Для этого выключался механизм вертикального перемещения, сливался жидкий азот из криостата, в вакуумную изоляцию криостата подавали гелий и включали нагреватель, находившийся в области расположения экспериментального твэла.

В самом начале подъема температуры твэла гелий из вакуумной изоляции откачивался и выключался нагреватель. Начинались измерения номинальных значений давления в экспериментальном твэле и давления в газовой полости трубки. Измерения проводились в процессе разогрева экспериментального твэла от 77К до $\sim 220 \div 250$ К (температуры плавления мезитилена и смеси мезитилена (75%) и m-ксилола (25%)). Скорость опроса измерительных каналов (тензометрических мостов) ~ 10 измерений в секунду с интервалом между измерениями 5 секунд. Интервал между измерениями давления в газовой полости ~ 5 секунд.

Оценка плотности тепловыделения (q_p , Вт/г) проводилась из экспериментальных данных изменения температуры оболочки твэла во время его облучения.

На рисунке 54 приведен пример изменения температуры оболочки твэла во время его движения и прохождения головки термопары через пучок электронов. Отличие средней температуры оболочки от температуры жидкого азота объясняется наводками от аппаратуры ускорителя. Движение твэла вверх и вниз (с шагом 85 мм) происходит с периодом $\sim 7,1$ секунды, причем твэл движется вниз за 2,5 секунды, а вверх - за 4,6 секунды. Из рисунка 54 также можно определить, что при движении вверх оболочка твэла за время прохождения пучка электронов $\Delta t \cong 0,9$ сек. нагревается в среднем на $\Delta T \cong 2,4$ К.

Отсюда можно оценить диаметр пучка электронов в районе твэла и плотность тепловыделения в стали (теплоемкость при температуре жидкого азота $C_p = 0,2$ Дж/г К):

Диаметр пучка – $0,9 \times 85/4,6 \cong 16,5$ мм.

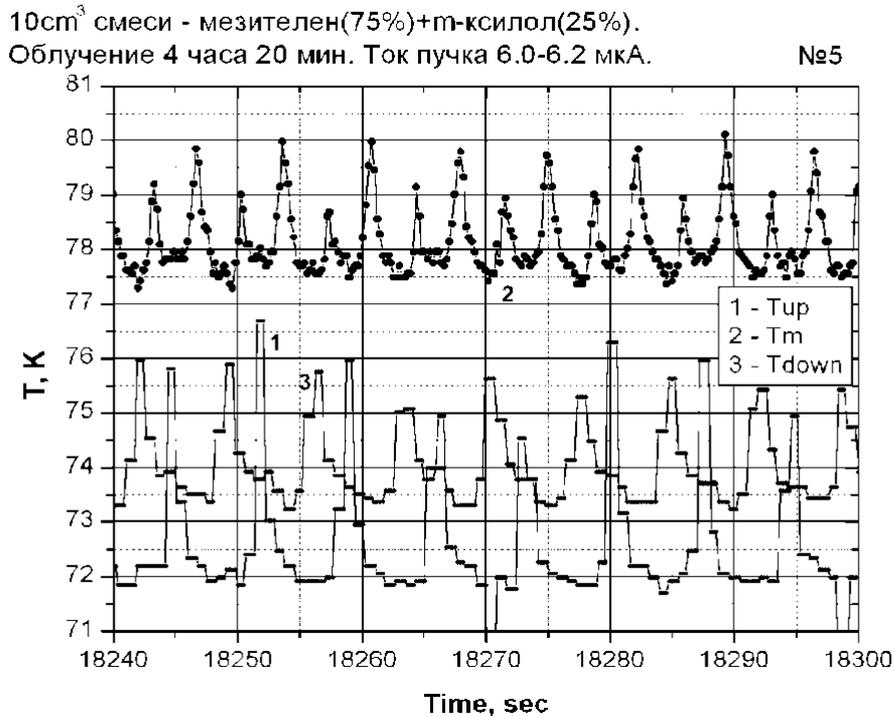


Рис. 54. Изменение температуры оболочки твэла при его движении во время работы ускорителя электронов (1, 2 и 3 – показания верхней, средней и нижней термопары, соответственно).

Диаметр пучка определен точнее, чем тепловыделение, поскольку в оценке тепловыделения присутствует неопределенность в подогреве оболочки ΔT из-за возможных перетечек тепла по высоте твэла и оттока тепла от оболочки к жидкому азоту.

Тепловыделение – $q_p = C_p \cdot \Delta T / \Delta t \cong 0,53$ Вт/г при токе электронов $\sim 6,0$ мкА.

Всего проведено шесть экспериментов, три из которых с мезитиленом и три со смесью мезитилена и *m*-ксилола (Таблица 7). Во всех экспериментах высота образца была 85 мм.

Таблица 7. Сводная таблица результатов экспериментов на УРАМ-3 на микротроне МТ-25

Номер цикла облучения	Ток пучка электронов	Интегральное время облучения	Образец *)	Температура начала подъема давления	Температура снижения давления до «нормального»	Максимальное давление на оболочку твэла
	мкА	ч	-	К	К	МПа
2	2,8	5	М	110	215	0,68
3	4,6	7,7	М	150	220	2,7
4	5,1	2,5	М-К	150	230	0,5
5	6,1	4,3	М-К	140	210	0,7
6	5,9	5,75	М-К	145	160	0,7

*) М – мезитилен; М-К – смесь мезитилена (75%) с *m*-ксилолом (25%).

Экспериментальные данные по давлению на стенки твэла и динамике выхода водорода с наибольшими временами облучения приведены на рисунках 55 и 56.

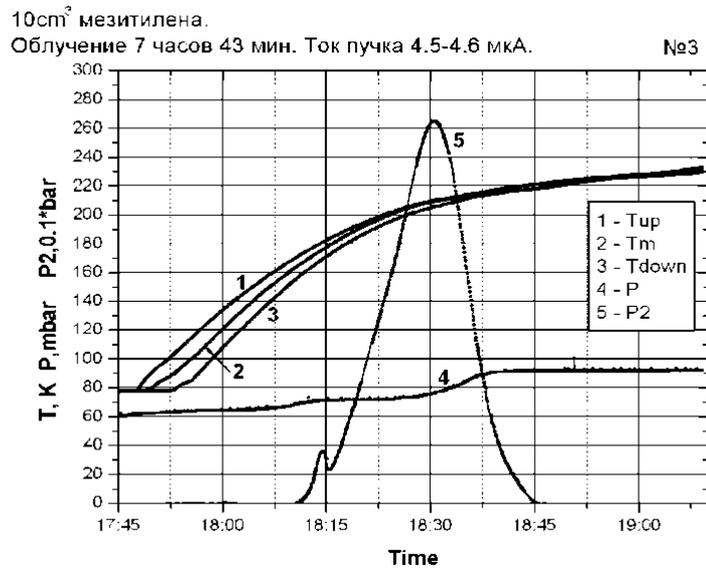


Рис. 55. Экспериментальные данные по измерениям параметров твэла при отогреве после облучения на ускорителе электронов: температура мезитилена (кривые 1, 2, и 3 по показаниям верхней, средней и нижней термодары (Tup, Tm, Tdown), К.; 4 – давление в газовой полости (P, мбар); 5 – давление по показаниям тензометрического моста.

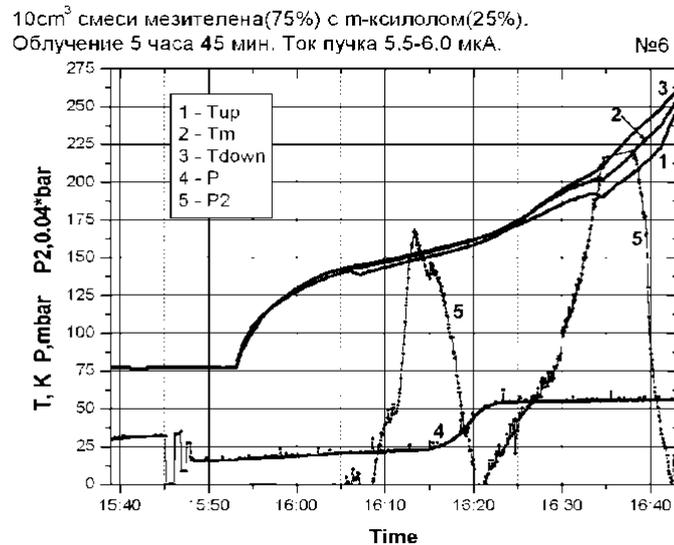


Рис. 56. Экспериментальные данные по измерениям при отогреве твэла со смесью мезитилена и m-ксилола после облучения на ускорителе электронов (кривые 1, 2, и 3 соответствуют показаниям верхней,

средней и нижней термопары (T_{up} , T_m , T_{down}), K ; 4 – давление в газовой полости (P , мбар); 5 – давление по показаниям тензометрического моста.

Выход водорода, накопленного в процессе облучения мезитилена и смеси мезитилена (75%) с *m*-ксилолом (25%), показан на рисунке 57.

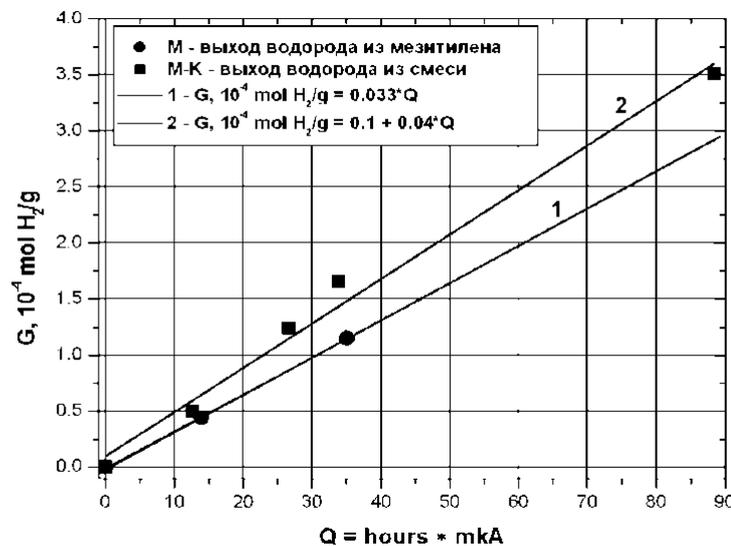


Рис. 57. Выход водорода из мезитилена и из смеси мезитилена с *m*-ксилолом в зависимости от времени облучения и тока пучка электронов.

Расчет выхода водорода проводился по изменению давления в газовой полости при отогреве образца после облучения, при этом учитывалось изменение давления от повышения температуры. Объем газовой полости $\sim 1055 \text{ cm}^3$.

По оси абсцисс на рисунке 58 отложен параметр Q , пропорциональный поглощенной дозе облучения. Нормировка на абсолютное значение поглощенной дозы дает радиационный выход водорода – 0,145 молекул $\text{H}_2/100 \text{ эВ}$, что на 0,1 молекул $\text{H}_2/100 \text{ эВ}$ меньше литературной величины для

газообразного мезитилена [113] и в два раза меньше выхода водорода при облучении нейтронами твердого мезитилена [134]. Эти различия связаны, по-видимому, с фазовым состоянием вещества и разной линейной передачей энергии в треках протонов отдачи и электронов.

Из анализа экспериментальных данных следует, что начало подъема давления в экспериментальном твэле для твердого мезитилена зафиксировано в диапазоне температур $105 \div 150$ К, а температура снижения давления до «нормального» лежит в диапазоне $135 \div 230$ К соответственно.

Накопление водорода в мезитилене и в его смеси с *m*-ксилолом пропорционально поглощенной дозе облучения в пределах изученных величин доз, причем в мезитилене выход водорода на ~20% выше, чем в смеси (рисунок 58).

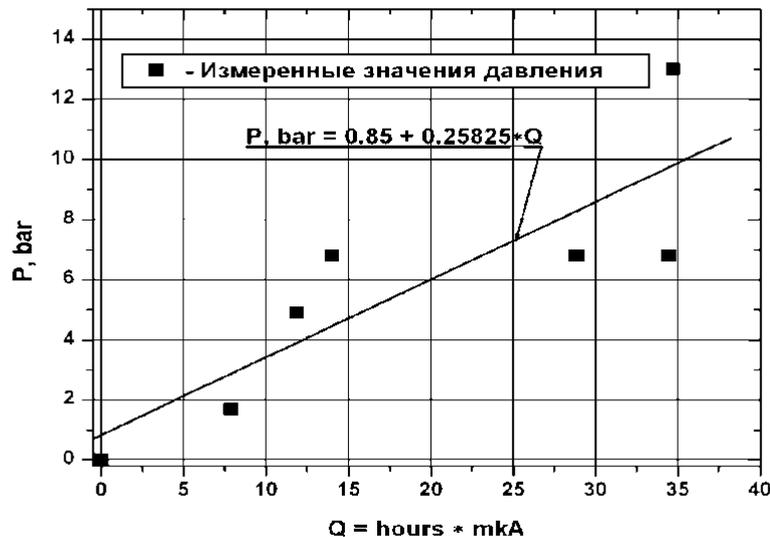


Рис. 58. Давление накопленного водорода на оболочку экспериментального твэла при его разогреве в зависимости от времени облучения и тока пучка электронов – Q . Параметр Q пропорционален поглощенной дозе облучения.

Значения номинального давления в экспериментальном твэле, для длительности облучения ~5 час, лежат в пределах 0,48 – 0,68 МПа. Максимальное значение номинального давления в твэле зафиксировано после 7,7 часов облучения и составило 2,65 МПа.

Выводы по главе 2.

Проведенная серия экспериментов на специально созданных облучательных установках УРАМ-2, УРАМ-3 и УРАМ-3М на реакторе ИБР-2 и микротроне МТ-25 позволили наблюдать спонтанные и индуцированные выделения энергии в результате экзотермических реакций рекомбинаций радикалов, накопленных в процессе облучения; измерить давление на стенки облучательных камер за счет накопленного радиолитического водорода в метане и мезитилена, величины которых достигали 2,7 МПа; оценить величины накопленного радиолитического водорода, образовавшегося в результате декомпозиции твердых водородсодержащих материалов под облучением. Величины давления на стенки камер для мезитилена и метана оказались соизмеримыми, что может говорить о схожем механизме высвобождения водорода, когда требуется небольшое расширения материала для образования трещин, через которые выходит водород. Смесь мезитилена и м-ксилола показала на 20% меньший выход водорода, чем выход из мезитилена. Величины накопленных энергий в зависимости от времени облучения были оценены для льда воды, метана, мезитилена, гидратов метана и тетрагидрофурана при температурах от 20 до 35К.

Под действием излучения впервые наблюдалось ухудшение теплопроводности льда. Так, в течении 10 часов облучения (доза ~ 4МГр) теплопроводность льда изменяется с 40 Вт/м/К до 0,4 Вт/м/К.

Основываясь на результатах экспериментов на установках УРАМ-2, УРАМ-3 и УРАМ-3М, можно рекомендовать рабочие температуры для использования твердых водородсодержащих материалов в качестве замедлителей нейтронов, которые позволяют избежать возникновения

спонтанных реакций рекомбинаций радикалов (Таблица 8) [99, 101, 112, 116 – 118, 128, 129]. В той же таблице приведены данные о величине накопления радиолитического водорода и температуре, при которой он способен выходить из материала в газовый объем, скорость накопления энергии от поглощенной дозы, максимальное давление на стенки облучательной камеры, наличие или отсутствие спонтанных реакций рекомбинаций радикалов.

Таблица 8. Основные результаты экспериментов на установках УРАМ-2, УРАМ-3, УРАМ-3М

Материал	Скорость накопления энергии от поглощенной дозы	Максимальное давление на стенки облучательной камеры, МПа	Накопление водорода и температура его выхода из материала	Спонтанные реакции рекомбинаций радикалов	Рабочая температура для избежания саморазогревов вещества замедлителя, К
Метан	1,6%±0,2%	2,7	$6 \cdot 10^{-7}$ моль/Дж, T=70К	Да	>28-30
Лед воды	5,4%±0,4%	-	$3,4 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж	Да	>40
Мезителен	<0,02%	2,65 *)	$3,9 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж; T=130К	Нет	>15
Гидраты метана и тетрагидро	2,4%	-	-	Да	>25К

фурана					
--------	--	--	--	--	--

*) – результат полученный при облучении электронами

Отсутствие спонтанных реакций рекомбинаций радикалов и низкий уровень накопления энергии в мезитилене и его смеси с м-ксилолом, а также малая по сравнению с твердым метаном скорость накопления водорода, позволяют рассматривать его как наиболее подходящий с точки зрения радиационной стойкости твердый водородсодержащий материал для холодных замедлителей нейтронов. Вместе с тем, следует учитывать, что в мезитилене при длительном облучении возникают сопоставимые с твердым метаном давления на стенки камеры, в которой он облучается и необходимо предусмотреть либо свободное пространство между слоями/кусочками мезитилена для его расширения, либо делать камеры замедлителей способными выдержать соответствующие давления.

Полученные результаты по давлению метана на стенки камеры нашли свое применение при проектировании холодного замедлителя для источника холодных нейтронов на основе твердого метана для TS-2 ISIS (RAL, UK).

Глава 3. Численный расчет и оптимизация конфигурации комплекса комбинированных замедлителей ИЯУ ИБР-2.

Комплекс комбинированных замедлителей нейтронов модернизированной ИЯУ ИБР-2 состоит из теплых (водяных) и холодных замедлителей. Для наиболее эффективного размещения замедлителей, выбора замедляющих материалов и их толщин была выполнена работа по оптимизации комплекса замедлителей для каналов №№ 1, 2, 4 – 11 [129], с последующими небольшими уточнениями для замедлителя центрального направления, которые касаются 1-го канала. Для него предусмотрен дополнительный водяной замедлитель, дающий тепловой спектр. Канал №3 предназначен для радиационных исследований, на нем предусмотрена возможность получения более жесткого спектра. Замедлитель для каналов №№12-14 остается без изменений, т.е. плоский замедлитель с наполнением водой комнатной температуры. Оптимизация для каналов №№ 1, 2, 4 – 11 выполнялась при помощи программы MCNP (программа транспорта частиц на основе метода Монте Карло) [135].

В расчетах использованы библиотеки нейтронных сечений для низких температур, которые прошли апробацию на установке JESSICA [74, 75] в Юлихе и экспериментах на установке ДИН-2ПИ [136] в ОИЯИ.

3.1. Исследование замедляющей способности водородсодержащих материалов на установке JESSICA.

Создание источников на основе холодных нейтронов требует получения новых сведений о существующих материалах и проведения исследований для получения нейтронных данных (сечений) для перспективных материалов. Если для большинства материалов при комнатных температурах уже имеются библиотеки с нейтронными данными, такие как JENDL [137], ENDF/B [138], JEF [139], которые используются программой, моделирующей транспорт нейтронов MCNP [135], то для

некоторых водородсодержащих материалов при низких температурах (20 – 30 К), когда при взаимодействии нейтронов важен учет химических связей в молекулах вещества, такие данные либо недостаточно точные, либо библиотек с данными вообще не существует. Усилия нескольких групп ученых были направлены на создание данных, описывающих такие взаимодействия в приемлемой для использования в MCNP форме в виде таблиц закона рассеяния $S(\alpha, \beta)$, которые являются специальным видом библиотек типа ENDF, где α - передача момента, а β - передача энергии [140 - 142].

Данные в таблицах библиотек представлены для нейтронов с энергиями менее 4 эВ. Неупругие и упругие сечения рассеяния представлены в зависимости от энергии нейтронов, причем неупругие сечения даны всегда, а упругие только тогда, когда их учет приводит к искажению результатов. Набор равновероятных конечных энергий дан для каждой из нескольких начальных энергий, так же, как и равновероятностные наборы косинусов углов для пар начальных и конечных энергий. Для упругого сечения рассеяния приведены данные в случае когерентного и некогерентного рассеяния [129, 135].

Создание таблиц является нетривиальной задачей, поскольку предварительно необходимо поставить эксперименты по получению спектров неупругого рассеяния нейтронов на веществе, например, как приведенные на рисунке 59 для твердого метана при 24 К [86]. Из данных экспериментов, с примененными приближениями, например, некогерентным однофононным рассеянием, по плотности фононных состояний можно восстановить неупругие сечения рассеяния нейтронов [86, 142 - 144].

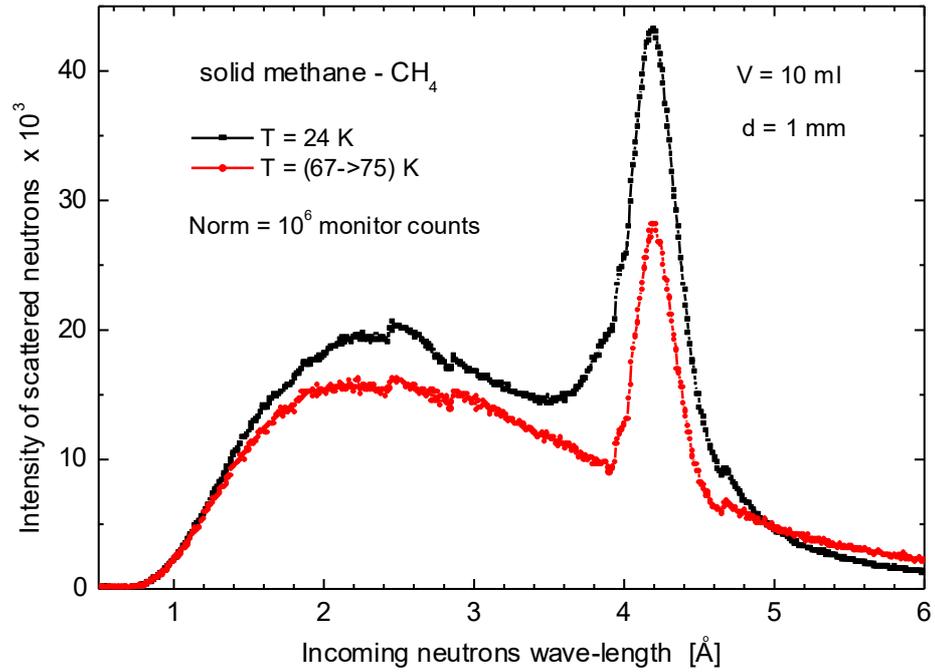


Рис. 59. Экспериментальные спектры неупругого рассеяния нейтронов на твердом метане.

Закон рассеяния $S(\alpha, \beta)$ в некогерентном случае (когда присутствует случайность, например, в ориентации кристаллитов или спиновая ориентация) связан с дважды дифференциальным сечением рассеяния следующим соотношением [144, 145]:

$$\sigma(E_0 \rightarrow E, \mu) = \frac{\sigma_b}{2kT} \sqrt{\frac{E}{E_0}} \exp(-\beta/2) \cdot S(\alpha, \beta),$$

где:

$$\alpha = \frac{E + E_0 - 2\sqrt{EE_0}\mu}{Ak_B T} \text{ - передача момента,}$$

а

$$\beta = \frac{E - E_0}{k_B T} \text{ - передача энергии,}$$

E_0 и E – энергия нейтрона до и после взаимодействия в лабораторной системе координат,

μ – косинус угла рассеяния в лабораторной системе,

σ_b – характеристическое связанное сечение рассеяния в материале,

$k_B T$ – энергия в эВ,

A – отношение масс рассеивающего центра и нейтрона,

S – закон рассеяния.

Пример построенных сечений неупругого рассеяния в зависимости от энергии нейтронов для некоторых водородсодержащих веществ при низкой температуре представлен на рисунке 60 [135].

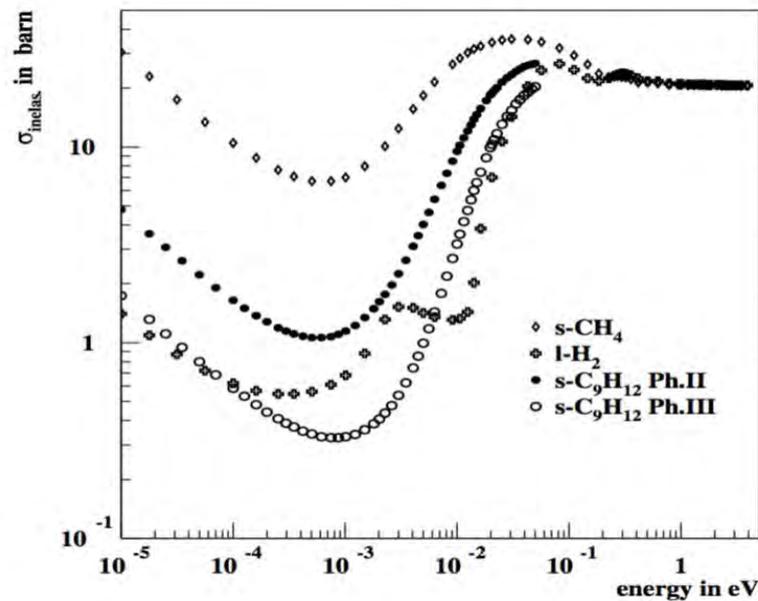


Рис. 60. Сечения неупругого рассеяния для метана, водорода и мезитилена (во втором и третьем фазовых состояниях) при $T = 20\text{K}$.

Для анализа соответствия указанных выше законов рассеяния $S(\alpha, \beta)$, было необходимо провести сравнение полученных в экспериментах результатов с расчетными результатами, полученными методом Монте Карло при описанной геометрии эксперимента, с использованием данных библиотек с сечениями.

3.1.1. Описание установки JESSICA.

Установка JESSICA [74, 75] была создана в рамках международной коллаборации 12 исследовательских лабораторий и представляла собой полномасштабную экспериментальную установку, предназначенную для проверки работы сборки мишени из жидкой ртути для проектировавшегося Европейского источника нейтронов (ESS) [146] с отражателем и камерой холодного замедлителя, которую можно было заполнять различными водородсодержащими материалами при низкой температуре. Одной из задач, для которых создавалась установка JESSICA, являлось исследование эффективности замедления нейтронов в перспективных для использования в холодных замедлителях материалах, а также проверка созданных для этих материалов библиотек с сечениями рассеяния, которые необходимы для программы расчета транспорта нейтронов MCNP [135].

Установка была создана в Forschungszentrum Juelich (Германия) на синхротроне COSY [147]. Нейтроны генерировались за счет реакций испарения, индуцированных короткими импульсами протонов ускорителя в мишени. Большая часть в энергетическом распределении нейтронов находится в диапазоне 2 – 3 МэВ. Параметры пучка протонов приведены в таблице 9 [73, 148].

Таблица 9. Параметры пучка протонов источника для экспериментов на установке JESSICA

Энергия пучка	1,3 ГэВ
Ширина импульса	< 1 мксек
Интенсивность	$10^8 - 10^9$ протонов на импульс
Частота импульсов	5×10^{-2} сек ⁻¹

Мишенью установки JESSICA для реакций испарения служит 35-литровая мишень из жидкой ртути, окруженная отражателем с диаметром 1,3

м и высотой 1,3 м, заполненным на 80% свинцовыми стержнями. Оставшиеся 20 % предназначались для охлаждения, которое не потребовалось из-за низкой мощности тепловыделения. В сборке предусматривалось пространство для установки четырех замедлителей. Они располагались в так называемой геометрии "крыла" в положении над и под мишенью, что давало возможность детектировать замедленные нейтроны только с поверхности замедлителя и уменьшить фон от мишени. Три замедлителя - водяные замедлители комнатной температуры, а в нижней части устанавливался холодный замедлитель.

На рисунке 61 представлена схема установки JESSICA [75].

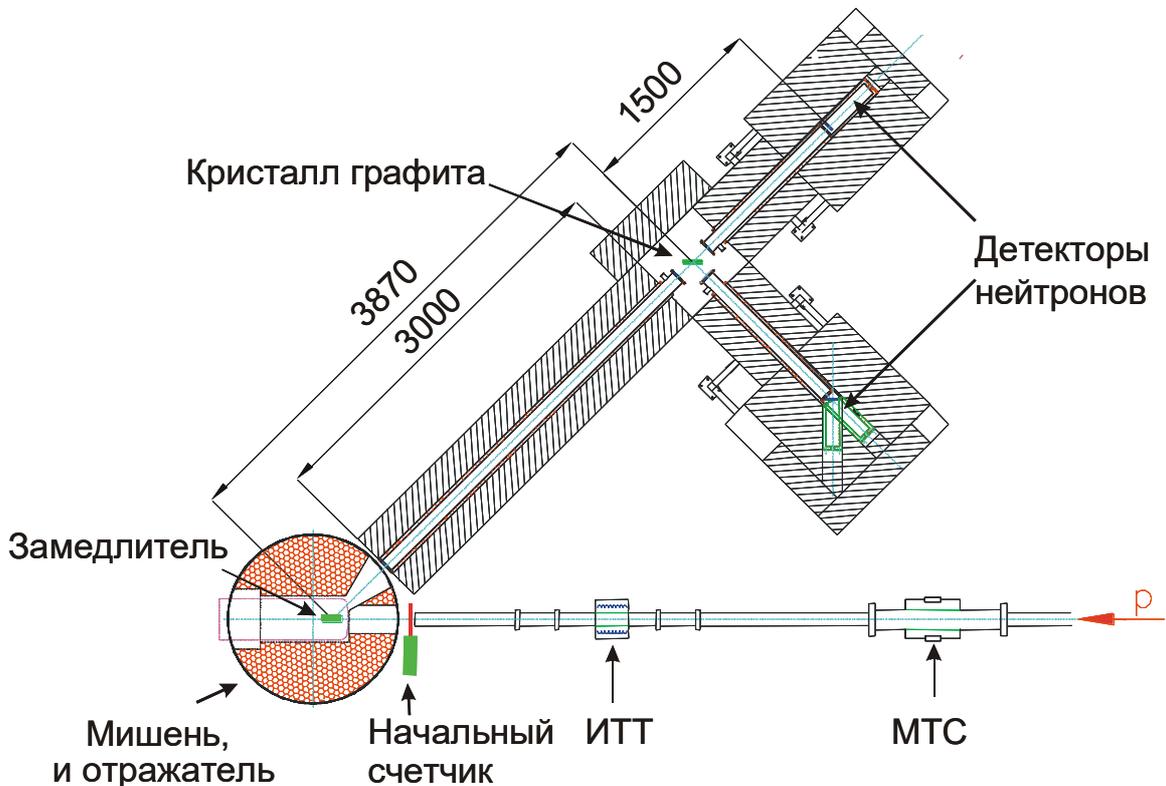


Рис. 61. Схема экспериментальной установки JESSICA. Размеры приведены в мм.

Два протонных монитора – интегрирующий трансформатор тока (ИТТ) и монитор тока стенки (МТС) располагались по направлению пучка протонов перед мишенью. ИТТ служил для измерения тока, вызванного магнитным полем пучка протонов в кольце, окружающем протонный пучок. МТС

измерял ток, отраженный от металлической трубы. Данные с обоих протонных мониторов важны для нормировки нейтронных данных, полученных время-пролетным методом, т.е. для получения энергетического спектра нейтронов и сравнения его с результатами MCNP моделирования. Между окончанием фокусирующего канала и отражателем располагался пластиковый сцинтиллятор, который генерировал стартовый сигнал для аппаратуры сбора данных, когда протонный пучок проходил сквозь сцинтиллятор.

Для проведения экспериментов, основанных на время-пролетной методике [73], холодный замедлитель располагался под углом 45° к оси протонного пучка. В качестве детектора нейтронов использовался LiGdВО-детектор, окруженный борированным полиэтиленом. Пролетная база для нейтронов составляла 5,37 м (от поверхности замедлителя до поверхности детектора). Для уменьшения фона от быстрых нейтронов, рассеянных на стенах помещения, нейтроноводная труба диаметром 10 см, состоящая из двух коаксиальных труб с заполнением пространства между ними оксидом бора, располагалась внутри полиэтилена [75].

Холодный замедлитель (рисунок 62) «М» представлял собой алюминиевый контейнер с размерами $15 \times 12 \times 5 \text{ см}^3$, соединенный в вакуумной изоляции с холодной головкой с блоком компрессора. Оборудование было смонтировано на поднимающейся платформе с тележкой, которая позволяла устанавливать замедлитель близко к мишени и отодвигать, получая доступ для заполнения камеры замедляющим нейтроны материалом в твердом или жидком состояниях. Охлаждение замедлителя было разделено на два уровня. Первый уровень, с дополнительно установленным нагревательным элементом, позволял получить температуру $\sim 80 \text{ К}$, которая была необходима для проведения экспериментов при заполнении камеры посредством конденсации материала из газового состояния, например, газами, имеющими точку конденсации вблизи данной температуры, в частности метаном. Второй уровень позволял охладить камеру замедлителя

до ~ 8 К. Подобная система давала возможность варьировать температуру замедлителя в экспериментах в широком диапазоне температур от 10 К до 300 К, в зависимости от загруженного материала [149].

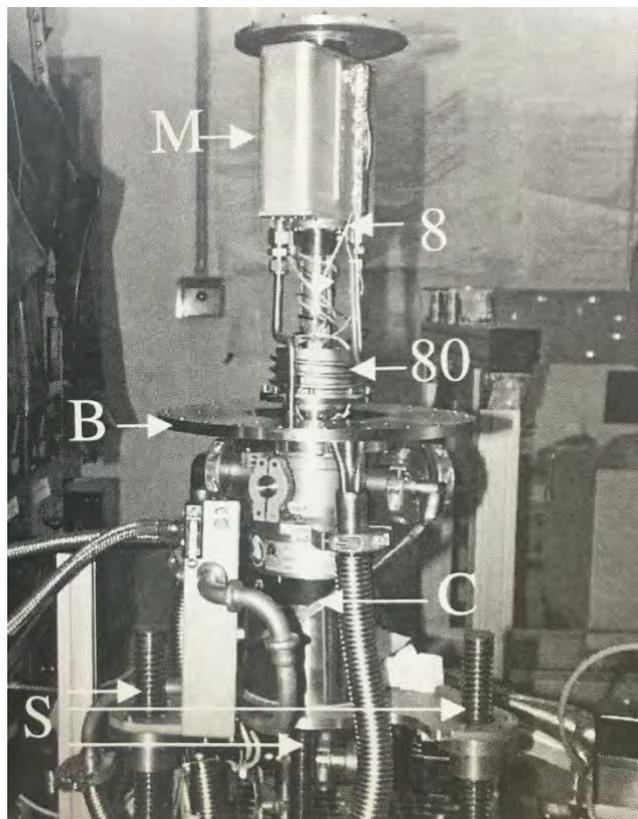


Рис. 62. Корпус замедлителя М на холодной головке со снятым вакуумным кожухом.

В некоторых экспериментах, например, со льдом, использовался замедлитель с цилиндрической геометрией и специальным углублением для дополнительного выхода нейтронов (эффект нейтронной пушки). Диаметр цилиндра 9,5 см, высота 11 см, диаметр дополнительного отверстия - 3,6 см [150].

3.1.2. Анализ результатов экспериментов с замедляющими материалами на установке JESSICA.

3.1.2.1. Лед воды, метан и гидрат метана.

Проведенные эксперименты со льдом и метаном показали, что максимум интенсивности в спектрах нейтронов из льда находится в диапазоне энергий $\sim 5 - 6$ мэВ (рисунок 4) [73 ÷ 75], а из твердого метана в диапазоне $\sim 1 - 2$ мэВ [150].

Гидрат метана - материал, который при криогенных температурах находится в твердом состоянии. В нем одна молекула метана заключена между 5,75 молекул воды. За счет такой комбинации молекул предполагалось, что данный материал при использовании его в качестве замедлителя, даст более широкий спектр в максимуме за счет сочетания молекул воды и метана. Результатами экспериментов с одинаковой геометрией замедлителя с метаном, льдом и гидратом метана при температуре 20К стали измеренные спектры нейтронов (рисунок 63) [148, 150].

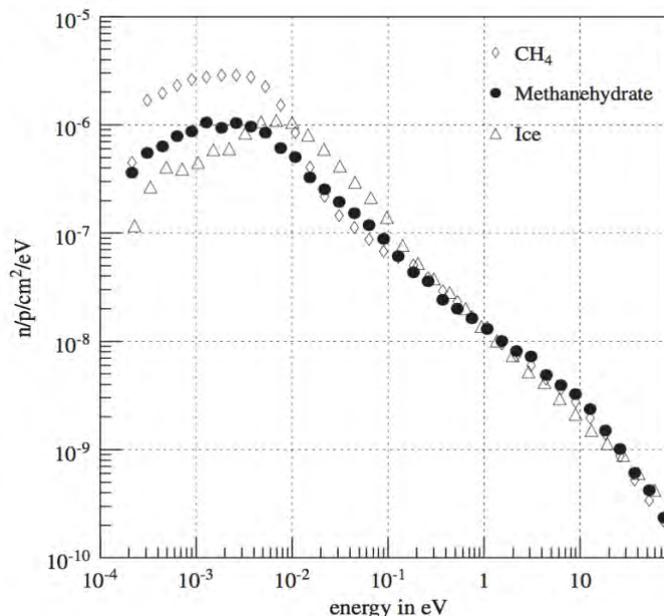


Рис. 63. Измеренные спектры энергетического распределения нейтронов из льда, метана и гидрата метана. Приведенные данные нормированы на

падающий протонный пучок и скорректированы на фон и эффективность детектора.

Как видно из спектров, для диапазона энергий 3 мэВ - 1 эВ интенсивность выхода нейтронов из гидрата метана примерно в два раза меньше, чем из льда. Позиции в энергетическом диапазоне максимумов спектров из метана и гидрата метана совпадают, но интенсивность выхода нейтронов из твердого метана выше. Это говорит о том, что гидрат метана лучше замедляет нейтроны до низких энергий, чем лед, но хуже, чем просто метан. Интенсивность выхода холодных нейтронов из гидрата метана в ~ 2 раза меньше, чем из метана, что может быть объяснено меньшей плотностью атомов водорода в гидрате метана [148].

Сравнение результатов моделирования (с синтезированными библиотеками сечений для гидрата метана) и экспериментальных спектров показало достаточно хорошее согласие [151].

3.1.2.2. Мезитилен и его смесь с м-ксилолом.

Мезитилен, состоящий из бензольного кольца с тремя метильными группами $C_6H_3(CH_3)_3$, в качестве потенциального замедляющего материала изучался еще в 70-х годах прошлого века группой исследователей из Японии [81], но работы не учитывали фазовые состояния материала, которые влияют на выход холодных нейтронов. Преимущество мезитилена в качестве замедляющего материала, с одной стороны - это высокая плотность водорода и, с другой стороны - слабозаторможенное вращение метильных групп. Полученные экспериментальные данные неупругого рассеяния нейтронов дали более глубокое понимание структуры и динамики твердого мезитилена и его смеси с другими ароматическими углеводородами [109, 152]. Вращательные уровни в диапазоне низких частот делают мезитилен перспективным материалом для получения холодных нейтронов. Как

отмечалось ранее, исследования показали, что мезитилен имеет три кристаллографические фазы: фаза I, фаза II и фаза III. Существование определенной фазы или смеси фаз сильно зависит от условий замораживания (рисунок 24) [109].

Из-за медленной скорости охлаждения замедлителя на установке JESSICA, в экспериментах была получена только III-я фаза. Фазы I и II гораздо лучше подходят для замедления нейтронов до низких энергий, потому что их вибрационные уровни сдвинуты ниже 15 мэВ, в то время как в фазе III имеются вибрационные уровни с большими энергиями: 19,2 мэВ и 23,2 мэВ [109]. Полученные из экспериментов на установке JESSICA спектры энергетического распределения нейтронов при заполнении замедлителя мезитиленом, твердым метаном, жидким водородом и льдом при температуре $T = 20$ К приведены на рисунке 64 [151].

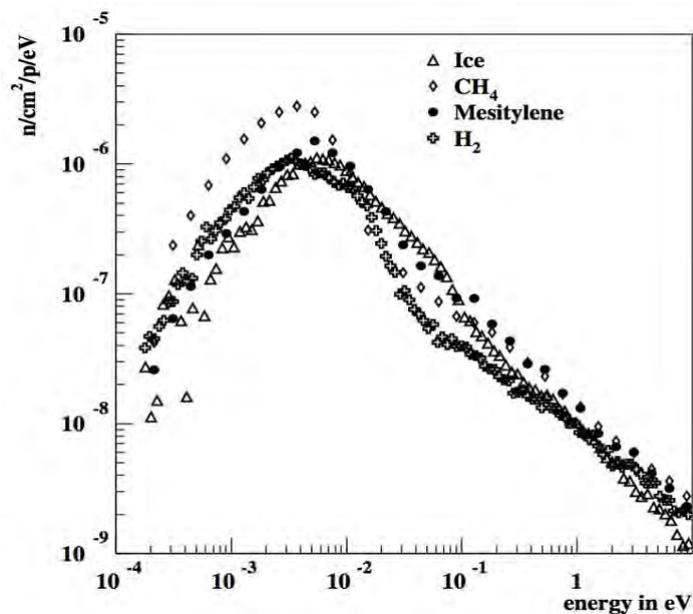


Рис. 64. Измеренные энергетические спектры для льда, метана мезитилена и жидкого водорода при $T = 20$ К. Приведенные данные нормированы на падающий протонный пучок и скорректированы на фон и эффективность детектора.

Наилучший результат по выходу холодных нейтронов дает твердый метан. Из анализа спектров видно, что мезитилен (фаза 3) показывает схожий

спектр с жидким водородом. В диапазоне энергий от 20 мэВ до 1 эВ мезитилен превосходит жидкий водород по выходу нейтронов. Дополнительное увеличение выхода нейтронов может быть достигнуто с использованием II-ой фазы мезитилена.

С помощью созданных Аргентинской группой таблиц с данными закона рассеяния для мезитилена $S(\alpha, \beta)$ [153] было проведено Монте-Карло моделирование с помощью программы MCNP [135]. Библиотеки с данными созданы на основе частотного спектра из экспериментальных данных (рисунок 25) [109, 141, 155]. Частотный спектр содержит непрерывную часть, содержащую поступательные и вращательные движения молекулярной системы, и набор δ -Эйнштейн осцилляторов, представляющих высокочастотные внутримолекулярные колебательные моды. После обработки данных для фазы II и фазы III с помощью LEAPR модуля NJOY [154], была создана новая библиотека с данными для MCNP. Построенные графики сечений неупругого рассеяния для мезитилена (фазы II и III), а также для метана и жидкого водорода, представлены на рисунке 60 [151].

С помощью библиотек данных для мезитилена был смоделирован эксперимент на установке JESSICA. Результаты сравнения эксперимента и расчета представлены на рисунке 65 [151].

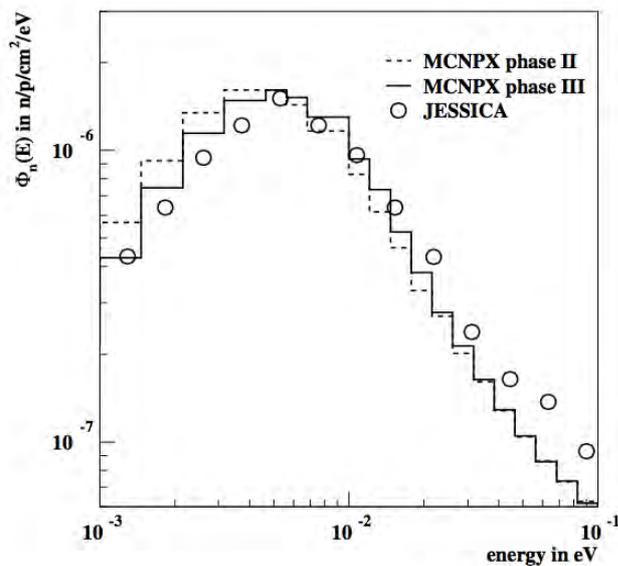


Рис. 65. Сравнение измеренного (фаза III) и смоделированного энергетического спектра (фаза II и III) для мезитиленового замедлителя установки JESSICA, $T = 20$ К.

Как видно из графиков, результаты сравнения экспериментальных данных с расчетными (фаза 3) для нейтронов с энергией ниже 10 мэВ показывают удовлетворительный результат, расхождение составляет менее 15%. Расчеты также показали, что при использовании мезитилена (фаза II) интенсивность нейтронов с энергией близкой к 1 мэВ была бы выше примерно на 30 – 40 %. Однако, в дополнение к трудности получения фазы II, она является не стабильной и со временем переходит в фазу I и III.

Из экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов, проведенных на установке HERA [193], установлено, что фаза II (протонное стекло) получается также в результате смешивания мезитилена с псевдокумоллом или м-ксилолом, но при значительно более простой процедуре замораживания. Полученная таким образом фаза II является стабильной. Несимметричная молекула м-ксилола в смеси в твердой фазе формирует кристалл с относительно малым барьером для вращения метильных групп, что способствует термализации нейтронов (рисунок 66) [86].

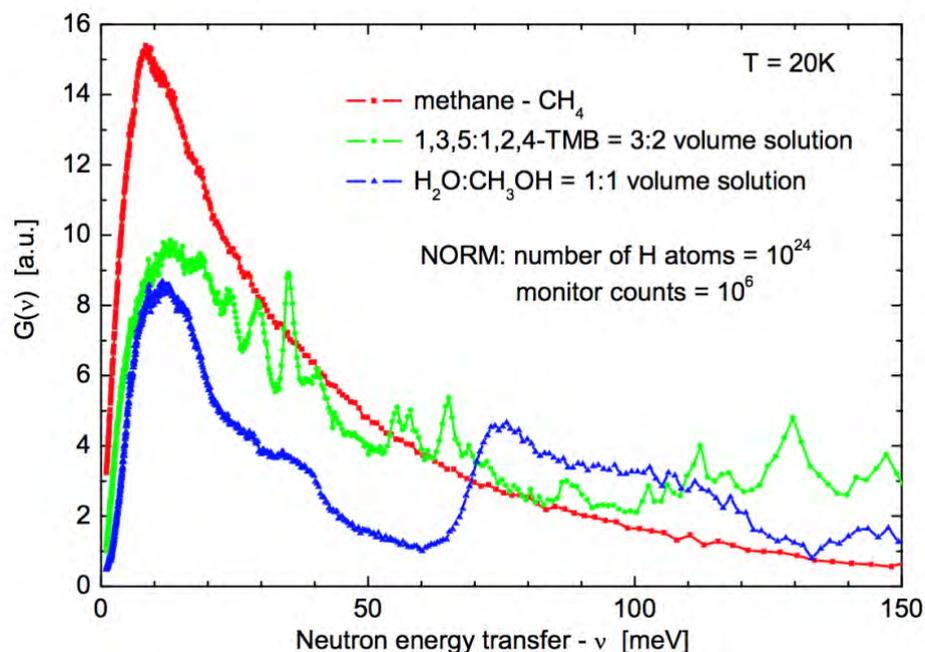


Рис. 66. Сравнение $G(\nu)$ спектров твердого метана с 3:2 объемным раствором жидкого мезитилена (1,3,5-ТМВ) и псевдокумола (1,2,4-ТМВ) в аморфной фазе и 1:1 водно-метанольным раствором. Спектры $G(\nu)$ нормированы на одинаковое количество атомов водорода и падающих нейтронов. Объем и толщина исследуемых образцов - идентичны. $G(\nu)$ - плотности фононных состояний.

3.2. Замедление нейтронов на мезитилене при низкой температуре.

Для предварительной проверки созданных библиотек сечений для мезитилена в условиях ИБР-2 и получения данных по влиянию температуры на выход холодных нейтронов, на спектрометре неупругого рассеяния ДИН2-ПИ [136] был поставлен эксперимент по рассеянию моноэнергетических нейтронов на камере-имитаторе холодного замедлителя с заполнением ее мезитиленом. Параметры эксперимента были приближены к параметрам реального замедлителя, но могли дать только качественную оценку. Схема эксперимента представлена на рисунке 67 [156].

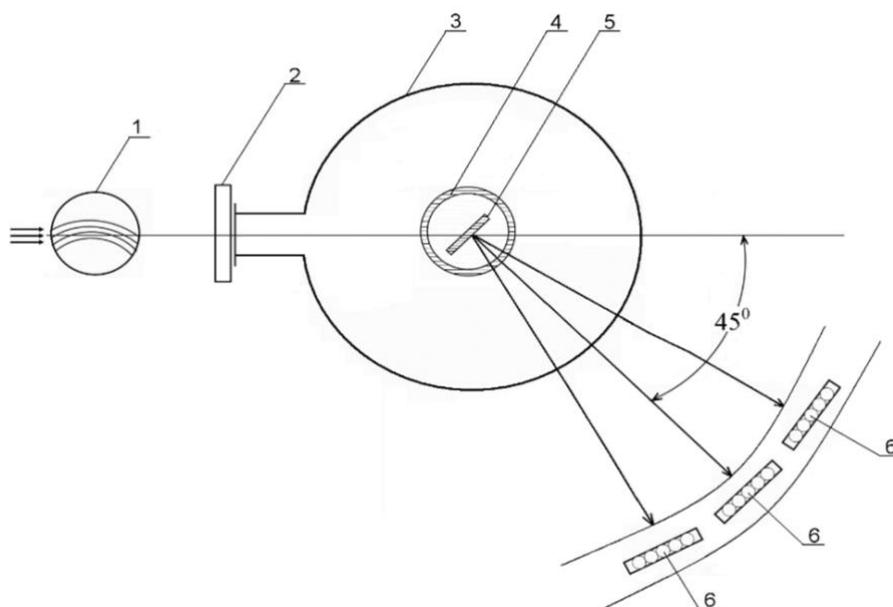


Рис. 67. Общая схема эксперимента (1- основной прерыватель; 2- мониторинговая камера; 3- вакуумированная камера образца; 4 - криогенное устройство; 5- кассета (камера-имитатор холодного замедлителя) с

мезитиленом; 6- кассеты детекторов, в которых регистрируются нейтронные спектры, испускаемые мезитиленом).

Алюминиевая камера с размерами 120 x 60 x 20 мм³ заполнялась мезитиленом и устанавливалась на криогенную головку криорефрижиратора замкнутого цикла, которая обеспечивала температуру в камере от 10 К до комнатной. Камера помещалась в центре шахты образца спектрометра и располагалась под углом 45° к оси нейтронного пучка. Мезитилен охлаждался до необходимой температуры. Спектры, излучаемые поверхностью кассеты, регистрировались детекторами, расположенными в направлениях, близких к нормали излучающей поверхности.

Эксперименты выполнялись при четырех значениях энергии монохроматических нейтронов, падающих на камеру с мезитиленом: 10, 30, 50, и 100 мэВ. При каждой из этих энергий измерения излучаемых камерой спектров нейтронов проводились при температурах кассеты: 10, 30, 50 и 100 К. В моделировании были использованы библиотеки сечений мезитилена при 20 К (рисунок 68) [156].

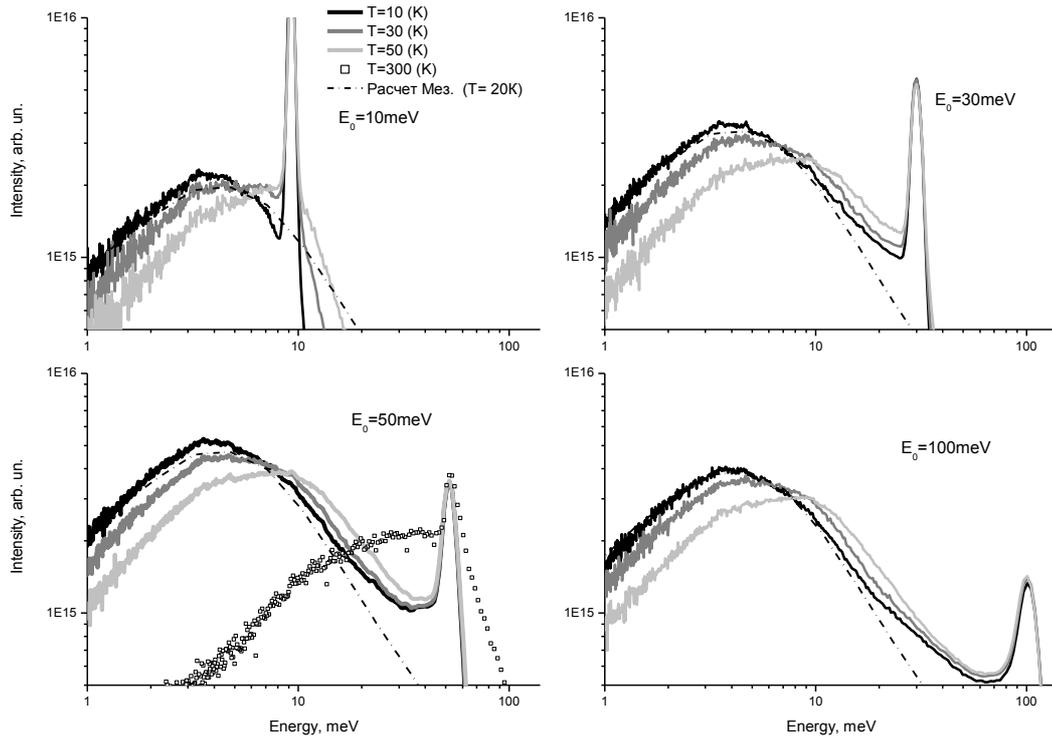


Рис. 68. Спектры, полученные из мезитилена (при $T = 10, 30, 50$ К) при пропускании через него моноэнергетических нейтронов (10, 30, 50 и 100 мэВ). Пунктирная линия – результаты численного Монте-Карло моделирования.

Из рисунка видно, что низкоэнергетическая область спектра ($E < 10$ мэВ) неплохо совпадает с кривой, рассчитанной для мезитилена при температуре 20 К. Форма низкоэнергетической области спектра не чувствительна к энергии нейтронов источника, однако, можно считать, что к спектральной картине, которая будет иметь место в случае реального замедлителя, ближе всего спектр, соответствующий падающей энергии $E_0 = 50$ мэВ, так как эта энергия наиболее близка к предполагаемой средней энергии тепловых нейтронов, поступающих из предзамедлителя комнатной температуры в криогенную часть замедлителя [156].

3.3. Обоснование выбора материала и конфигурации холодных замедлителей комплекса замедлителей для ИЯУ ИБР-2.

Материал для холодного замедлителя должен обладать хорошими замедляющими свойствами (низколежащими уровнями возбуждения молекул, высокой плотностью протонов, малым сечением захвата нейтронов), высокой радиационной стойкостью, способностью работать при температуре ~ 20 К и др. При оптимизации пространственного размещения и геометрических размеров замедлителей ИЯУ ИБР-2 (рисунок 69) были рассмотрены несколько водородсодержащих материалов для холодных замедлителей. Среди них: твердый метан, водород, лед, мезитилен.

Интенсивность потока холодных нейтронов от источника, вместе с приведенными выше параметрами, зависит также и от оптимальной комбинации толщин предзамедлителя (вода комнатной температуры) и материала холодного замедлителя [157].

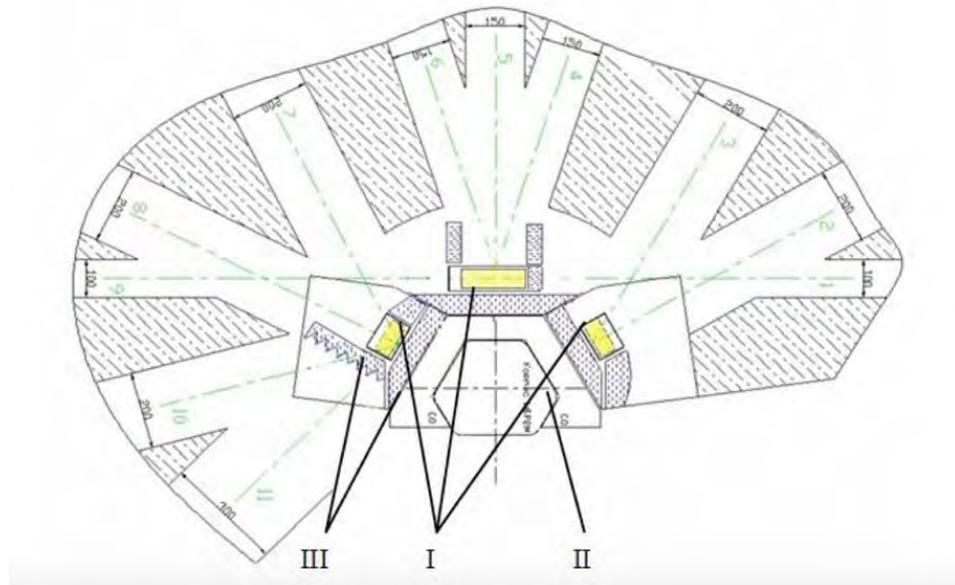


Рис. 69. Горизонтальное сечение модернизированной ИЯУ ИБР-2 и ее окружения на отметке 6.0 м: I - холодные замедлители; II – активная зона реактора, 3 - водяные предзамедлители и водяной гребенчатый замедлитель.

3.3.1. Анализ рассмотренных и изученных материалов. Выбор замедляющего материала для холодных замедлителей нейтронов ИЯУ ИБР-2.

Расчеты проведены для одного из комбинированных замедлителей модернизированной ИЯУ ИБР-2 методом Монте-Карло по программе MCNP с дополнительными библиотеками сечений рассеяния для водородсодержащих материалов при низкой температуре, апробированными на установке JESSICA. Необходимые для расчета константы представлены в библиотеках в полной мере [153, 158, 159]. При моделировании одновременно оптимизировали толщины водяного предзамедлителя и холодного замедлителя для четырех материалов: метан, водород, лед, мезитилен (фаза II). Результаты численных расчетов сравнивали по интенсивности выхода холодных нейтронов из данных материалов при оптимальной толщине. Получили, что выход холодных нейтронов из метана по сравнению с мезитиленом, водородом и льдом при одинаковой температуре выше (рисунок 70) [157]. Этот результат подтверждает экспериментальные данные, полученные Японской группой [181], а также данные, полученные на установке JESSICA [151] и расчетные данные Аргентинской группы [159].

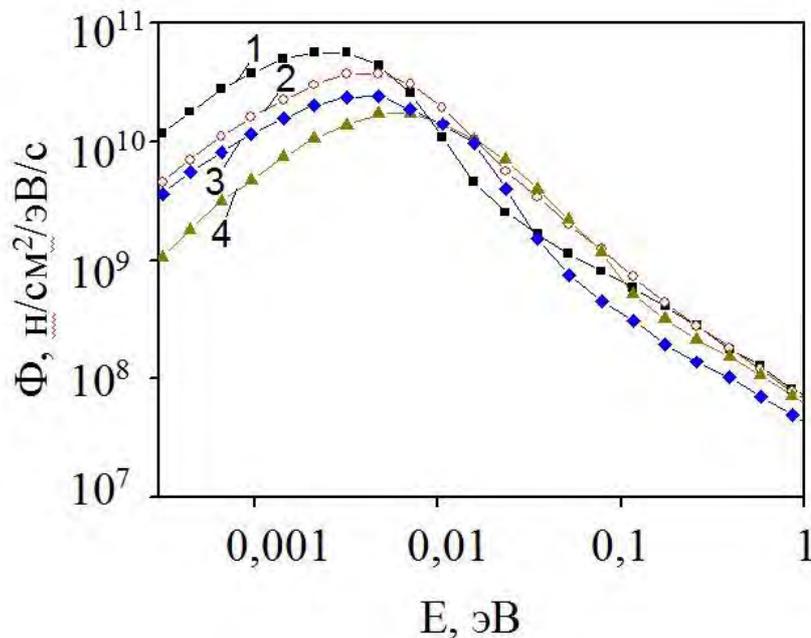


Рис. 70. Спектры нейтронов холодного замедлителя из метана (1), мезитилена (2), водорода (3), льда воды (4) с оптимизированной для максимального выхода толщиной 2, 2, 4, 3 см, соответственно.

Несмотря на высокую замедляющую способность твердого метана, из-за радиационных эффектов в нем, детально рассмотренных во второй главе, а именно: накопление радикалов, способных к спонтанной экзотермической реакции рекомбинации; накопление водорода, который не выходит из твердого метана при облучении пока температура не достигнет 60 К, а создает давление на стенки замедлителя вследствие радиационного распухания, использование твердого метана одним блоком без частого периодического нагрева до 60 - 70 К (для отгонки водорода и инициирования реакции рекомбинации радикалов) не представляется возможным. Сравнительно продолжительный режим непрерывной работы твердого метанового замедлителя (4 - 5 суток) в условиях ИЯУ ИБР-2 возможен только при температуре выше 60 К и уменьшении радиационной нагрузки за счет увеличения толщины предзамедлителя. В то же время, мезитилен или его смесь с м-ксилолом значительно превосходят метан по радиационной стойкости и могут работать при более низкой температуре и с оптимальным по толщине предзамедлителем. В результате мезитилен при 20 К оказывается более эффективным для использования в холодных замедлителях модернизированной ИЯУ ИБР-2, причем его температура должна быть как можно ниже, чтобы обеспечить более интенсивный поток холодных нейтронов (рисунок 71) [160].

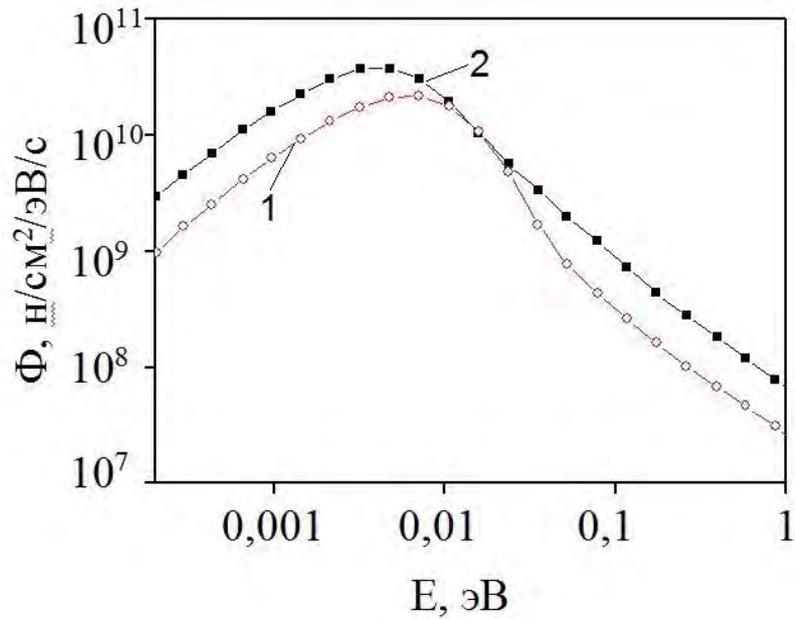


Рис. 71. Спектры нейтронов из холодного замедлителя на основе метана при температуре 60 К и толщине предзамедлителя 9 см (1) с учетом радиационных эффектов и мезитилена при температуре 20 К и толщине предзамедлителя 5 см (2).

Данный результат, вместе с результатами исследований радиационной стойкости и неупругого рассеяния нейтронов, позволил сделать выбор в пользу мезитилена во втором фазовом состоянии (смеси мезитилена с м-ксилолом) в качестве материала для использования в холодных замедлителях нейтронов комплекса комбинированных замедлителей ИЯУ ИБР-2.

3.3.2. Задачи по формированию спектра нейтронов с заданными требованиями для спектрометров на выведенных пучках ИЯУ ИБР-2.

После выбора материала, с помощью Монте Карло моделирования был оптимизирован комплекс комбинированных замедлителей модернизированной ИЯУ ИБР-2 для каналов № 1, 2, 4 – 11 [5, 129, 161, 162, 187]. Для удовлетворения требований экспериментаторов на выведенных пучках при оптимизации в составе комбинированных замедлителей

использованы три холодных замедлителя, расположенные ортогонально осям каналов № 2, 5 и 8 (рисунок 72).

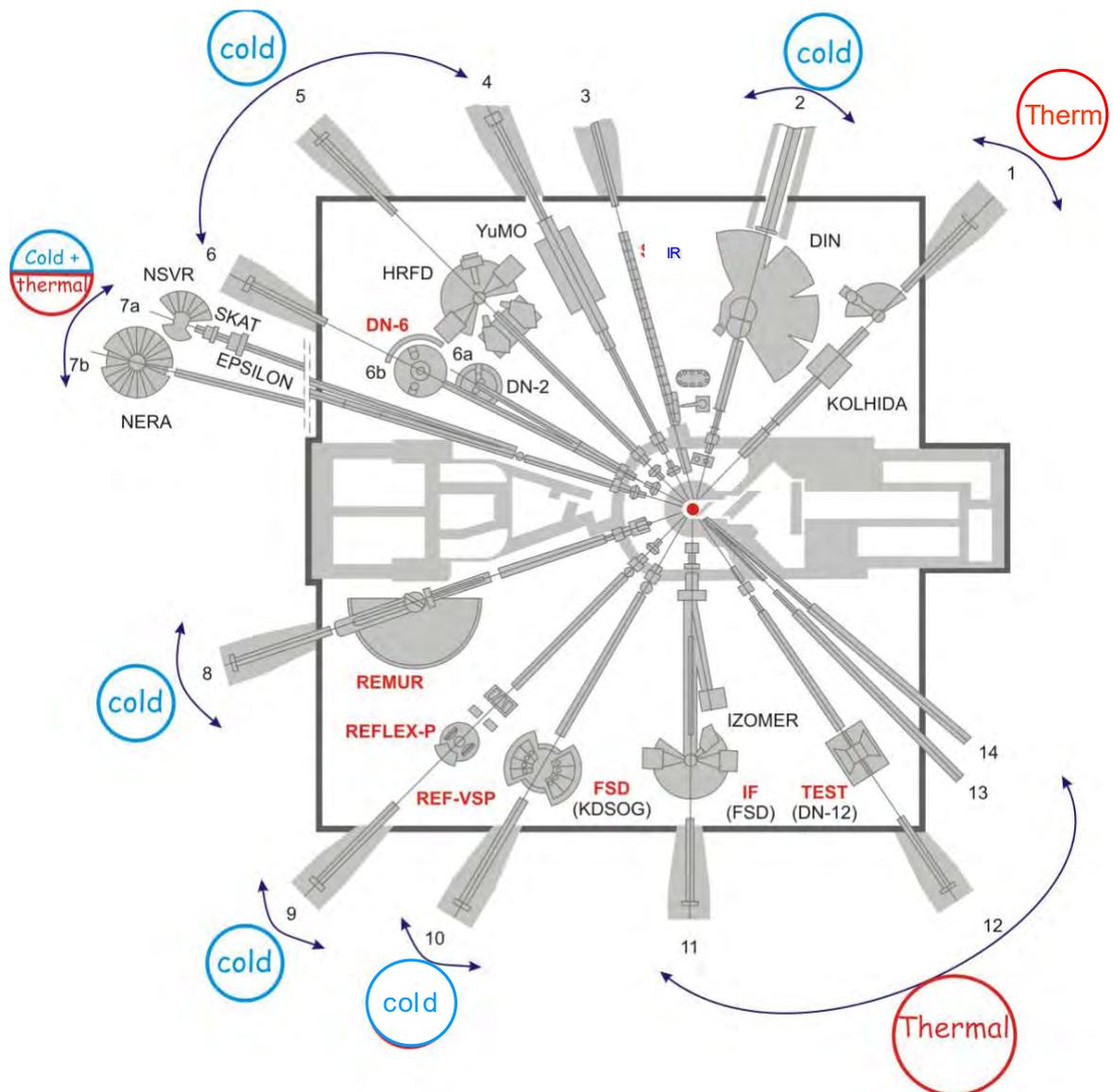


Рис. 72. Исследовательские установки на выведенных пучках модернизированной ИЯУ ИБР-2. Требования к спектру нейтронов указаны в кружках (cold – холодные нейтроны, thermal – тепловые), цифрами обозначены номера исследовательских каналов.

Их пространственное расположение было оптимизировано в сочетании с дополнительными гребенчатыми и плоскими замедлителями с водой, холодными бериллиевыми фильтрами и замедлителями для соседних каналов. Спектры нейтронов для 2, 5 и 8-го каналов более холодные, так же как и для

9 и 10-го каналов, и имеют сходную форму из-за унификации холодных замедлителей для этих направлений. Разница заключается лишь в абсолютной интенсивности.

Наиболее сложная конфигурация комбинированного замедлителя в направлении исследовательских 7, 8, 10 и 11 пучков. В общей сложности, с учетом проектируемой установки малоуглового рассеяния на 10-м канале, данный комплекс обеспечивает нейтронами с нужным спектром 7 установок на выведенных пучках, что составляет половину от всех установок для изучения конденсированных сред на ИЯУ ИБР-2. Рассмотрим результаты моделирования данного комбинированного замедлителя более подробно.

Требования к спектру нейтронов выведенных пучков были сформулированы самими экспериментаторами. Так, для установок на 7-м и 8-м пучках необходим смешанный спектр нейтронов, для 11-го пучка – тепловой, а для 10-го – холодный. Поскольку оси всех четырех каналов пересекаются в одной точке, то было трудно удовлетворить все требования. В процессе оптимизации, было принято решение разместить холодный замедлитель в нижней части активной зоны реактора (высота активной зоны 44 см) до отметки 6,0 (центр активной зоны реактора), а верхние 22 см занять гребенчатым водяным замедлителем. Таким образом, оси нейтронородов спектрометров, которым необходим холодный спектр, смещаются ниже отметки 6,0, а спектрометров со смешанным спектром нейтронов – остаются в центре реактора, при этом они будут получать и тепловые нейтроны от гребенчатого водяного замедлителя, и холодные нейтроны от холодного замедлителя. Для получения тепловых нейтронов необходимо настроить нейтронороды на верхнюю часть комбинированного замедлителя. Поскольку модернизированная активная зона реактора стала более компактной, то 11-й канал, нейтронород которого был настроен на предыдущую зону, практически не получал бы нейтроны. Поэтому для 11-го канала в верхней части замедлителя установили дополнительный гребенчатый водяной замедлитель в геометрии «крыло», ортогонально оси 11-го канала.

Проведенные MCNP-расчеты комбинированного замедлителя (рисунок 73) позволили получить дифференциальные спектры нейтронов для каждого канала с относительной статистической ошибкой в расчетах менее 5%.

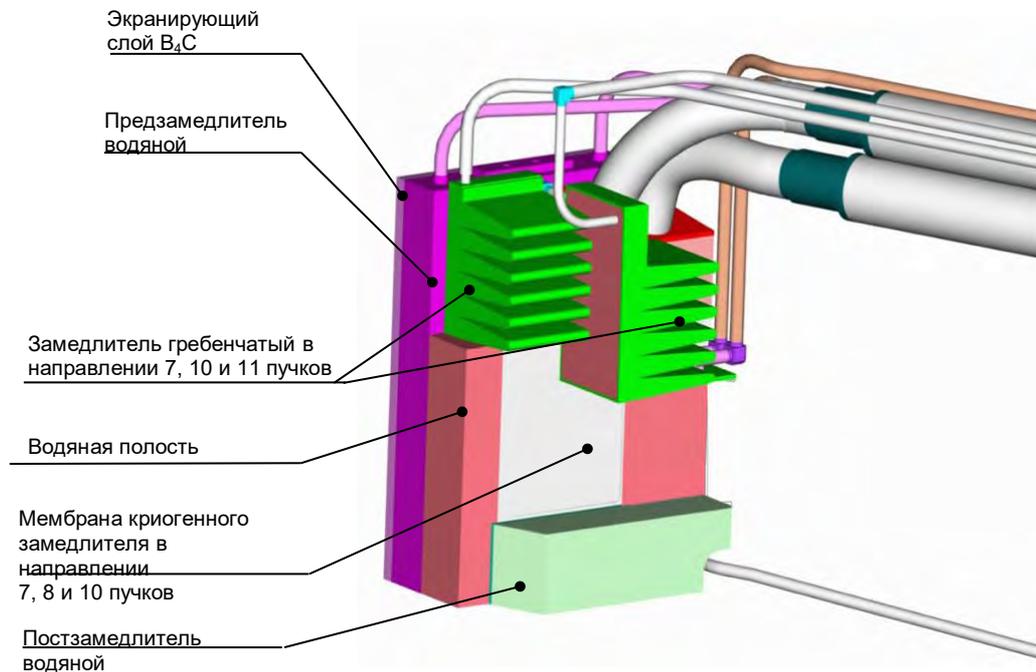


Рис. 73. Трехмерная модель замедлителя для 7, 8, 10 и 11 пучков.

Оценка полной погрешности результатов расчетов не представляется возможной из-за отсутствия данных по ошибкам в дополнительных библиотеках с константами для низких температур. В качестве примера приведем рассчитанные спектры нейтронов для направления 7-го пучка на расстоянии 4,5м от поверхности замедлителя (рисунок 74) [129].

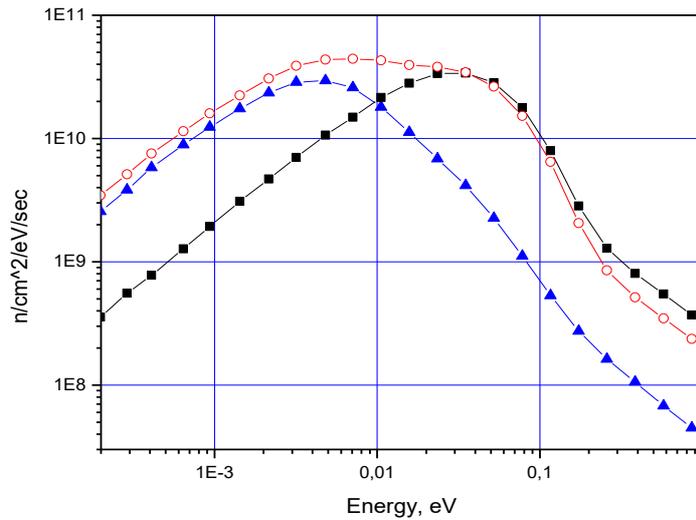


Рис. 74. Дифференциальные спектры нейтронов для 7-го канала (квадраты – только предзамедлитель, окружности - оптимальная конфигурация замедлителей (холодный + гребенчатый тепловой), треугольники – спектр нейтронов, полученный только с холодной части с учетом частичного затенения гребнями водяного замедлителя).

Как видно из спектров, в зависимости от настройки нейтронновода 7-го пучка, в спектре нейтронов возможно получение либо большего количества тепловых, либо большего количества холодных нейтронов. При модернизации нейтронноводной системы данные расчетов с пространственным спектральным распределением были использованы для моделирования ориентации оптических частей нейтронноводов [163].

Для представления результатов моделирования 8-го пучка был взят спектр только с холодного замедлителя на расстоянии 4,5 м от поверхности замедлителя (рисунок 75). Из него был рассчитан коэффициент увеличения потока холодных нейтронов из холодного замедлителя с мезитиленом по отношению к плоскому замедлителю с водой комнатной температуры в зависимости от длины волны нейтронов (рисунок 76) [157]. 10-й пучок, нейтронновод которого настроен на нижнюю часть комбинированного замедлителя, в которой расположен холодный замедлитель, имеет холодный

спектр нейтронов.

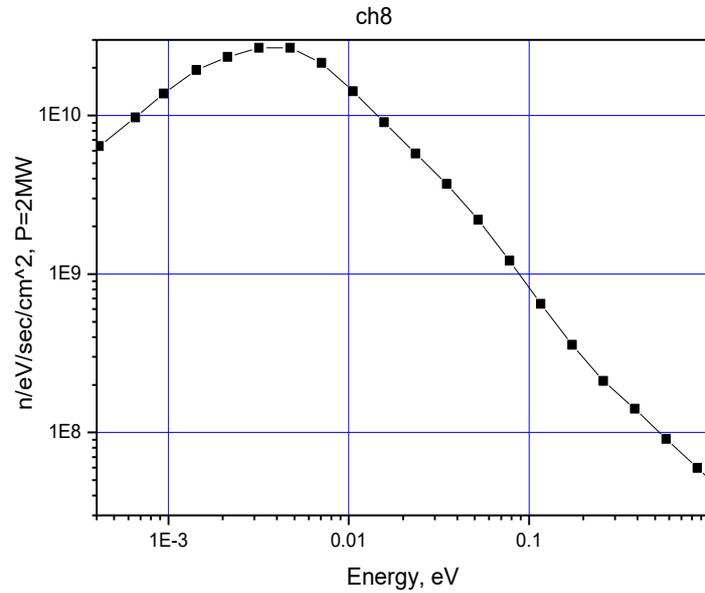


Рис. 75. Дифференциальный энергетический спектр нейтронов для 8-го пучка

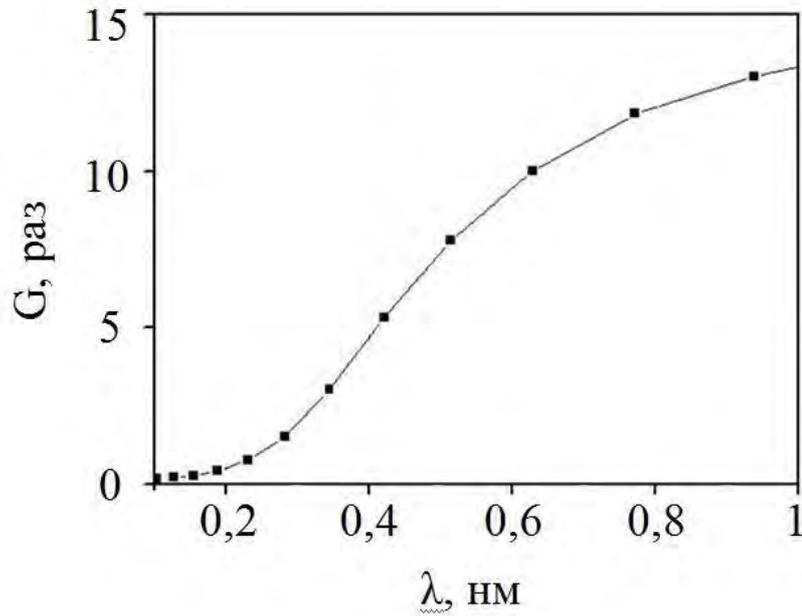


Рис. 76. Коэффициент увеличения плотности потока нейтронов в зависимости от длины волны нейтронов из холодного замедлителя с мезитиленом по отношению к воде комнатной температуры.

Результатом оптимизации комбинированного замедлителя в направлении 11-го пучка стало увеличение интегральной плотности

потока тепловых нейтронов \sim в 3 раза по сравнению с плоским предзамедлителем. В частности, рост потока тепловых нейтронов связан с более компактной активной зоной реактора.

Полученные расчетные спектры нейтронов для 11-го пучка в случае, когда присутствует только предзамедлитель и при наилучшей для данного направления конфигурации замедлителей, приведены на рисунке 77 [129]. В расчете использовался метод точечного детектора (MCNP), когда рассчитывается плотность потока нейтронов в точке на заданном расстоянии от источника. В расчете точечный детектор был расположен на расстоянии 4,5м от точки пересечения осей пучков №№ 7, 8, 10 и 11.

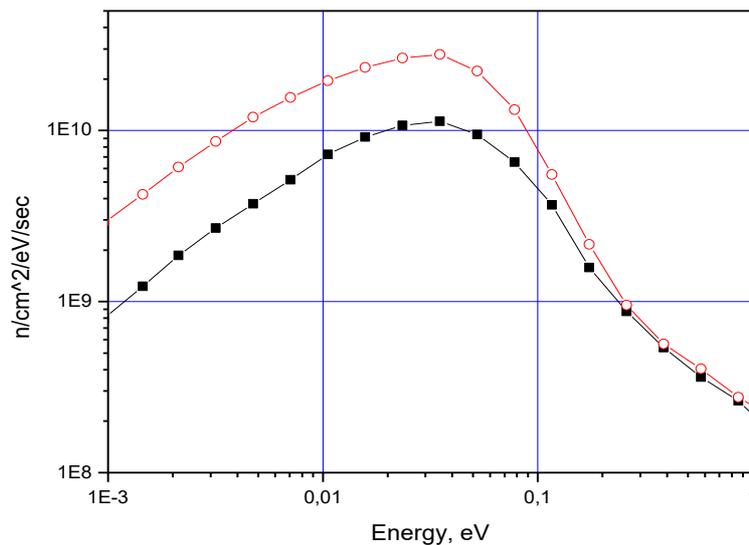


Рис. 77. Дифференциальные спектры нейтронов для 11-го канала. (квадраты – только предзамедлитель, окружности – оптимальная конфигурация замедлителей).

3.3.3. Анализ потенциальных возможностей увеличения выхода холодных нейтронов.

Полученные результаты оптимизации по выходу холодных нейтронов могут быть улучшены, если использовать холодный бериллиевый фильтр или гребенчатый холодный замедлитель. Проведенные дополнительные расчеты

показали, что если вместо плоского холодного замедлителя использовать гребенчатый, то будет увеличение выхода холодных нейтронов, но конструкция замедлителя значительно усложнится. При Монте-Карло моделировании использована геометрия модернизированного реактора ИБР-2 с окружением и водяным предзамедлителем толщиной 4 см. Сравнение проводили с одним из холодных плоских замедлителей при замене его на холодный гребенчатый. Замедляющий материал – мезитилен при температуре 20К. Поток нейтронов вычислялся методом оценки «потока в точке» на расстоянии 12 метров от поверхности замедлителя; при этом детектор был отделён от реактора абсолютно черной поверхностью, кроме окна прямоугольного сечения 15 x 20 см² (размеры канала в биологической защите).

При расчетах с гребенчатым замедлителем оптимизировался параметр – толщина основания (параметр X), на котором установлены гребни (толщина гребня у основания 5 см, длина 10 см). Геометрии, которые использовались в расчетах, приведены на рисунках 78, 79.

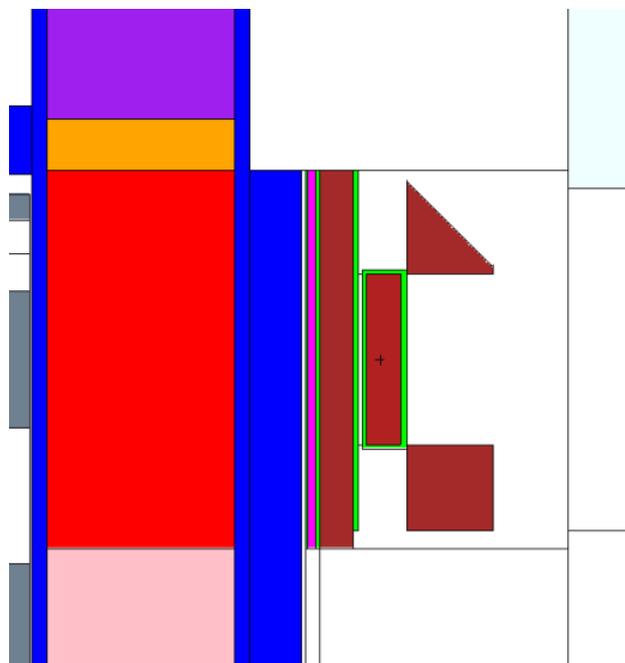


Рис. 78. Вертикальное сечение модернизированного реактора с предзамедлителем и плоским холодным замедлителем. Вид на холодный замедлитель сбоку.

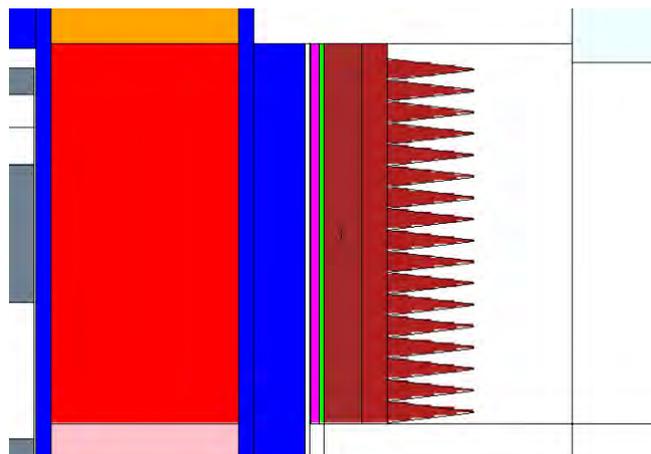


Рис. 79. Вертикальное сечение модернизированного реактора с предзамедлителем и холодным гребенчатым замедлителем. Вид на холодный гребенчатый замедлитель сбоку.

Детектор регистрировал нейтроны по 5-ти энергетическим группам:

0 – 1,3 мэВ (8\AA),

1,3 мэВ – 5,25 мэВ (4\AA),

5,25 мэВ – 21 мэВ (2\AA),

21 мэВ – 84 мэВ (1\AA),

84 мэВ – 230 мэВ ($0,6\text{\AA}$).

Результаты представлены в виде относительного потока по каждой группе энергий (Таблица 10).

Таблица 10. Результаты оптимизации гребенчатого холодного замедлителя и сравнение результатов с плоским холодным мезитиленовым замедлителем.

\AA	Исходный плоский замедлитель	X = 1см	X = 2см	X = 3см	X = 4см
8	1	2,44	2,44	2,27	2,06
4	1	2,12	2,14	2,02	1,83

2	1	1,52	1,45	1,32	1,16
1	1	1,03	0,82	0,69	0,6
0,6	1	1,02	0,88	0,78	0,72

Как видно из таблицы, гребенчатый холодный замедлитель показывает наибольший фактор выигрыша в холодных нейтронах при толщине основания 1 - 2 см. Величина фактора выигрыша в потоке холодных нейтронов от использования гребенчатого холодного замедлителя по сравнению с плоским холодным замедлителем в геометрии ИБР-2 может достигать 2,4 раза.

Бериллиевый фильтр при температуре 77К, установленный перед плоским холодным замедлителем в направлении нейтронных пучков, также позволяет дополнительно увеличить плотность потока холодных нейтронов ~ в 1,7 раза [164] за счет отражения тепловых нейтронов и пропускания холодных. Вместе с тем, появляется так называемый "бериллиевый край" - резкий срыв спектра при 4Å, что затрудняет проведение экспериментов на выведенных пучках.

В экспериментах на установке ДИН-2ПИ была показана зависимость выхода холодных нейтронов при понижении температуры мезитилена. Ее снижение с 30 К до 10 К дает увеличение выхода холодных нейтронов на 20 - 25 % (Таблица 11) [156].

Таблица 11. Отношение интенсивностей нейтронного потока при энергии ~2 мэВ для нескольких значений температуры мезитиленового замедлителя.

E_0 , мэВ (энергия падающих нейтронов)	$I(10\text{ К}) / I(30\text{ К})$	$I(30\text{ К}) / I(50\text{ К})$	$I(10\text{ К}) / I(50\text{ К})$
10	1.23	1.40	1.75
30	1.20	1.50	1.80

50	1.25	1.40	1.75
100	1.21	1.40	1.70

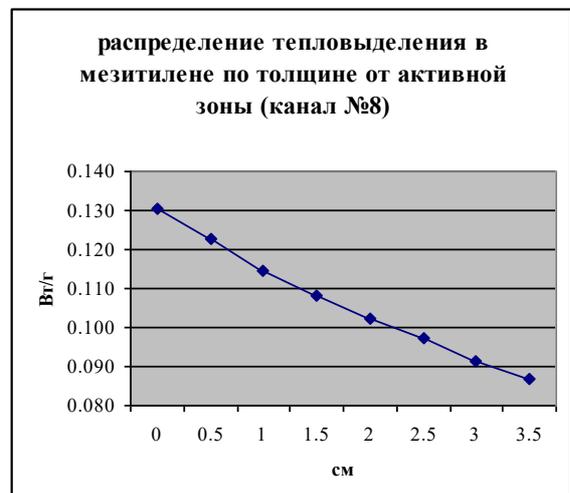
3.3.4. Расчет энерговыделения в элементах конструкций комплекса комбинированных замедлителей направления 7, 8, 10 и 11 пучков.

Программа Монте-Карло расчета транспорта нейтронов и гамма-квантов MCNP [135] позволяет проводить расчеты энерговыделений, вносимых излучением в материалы конструкций.

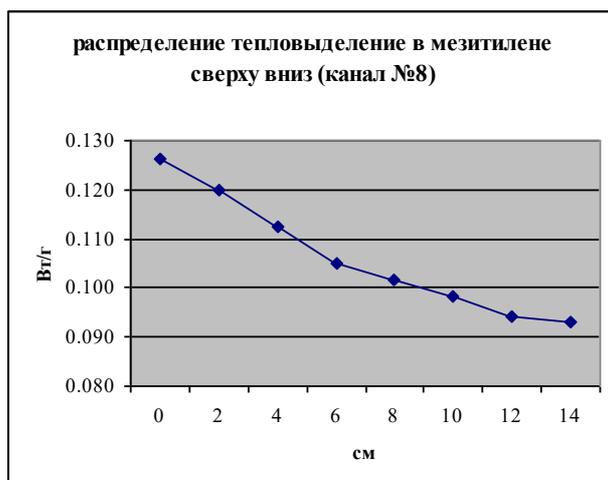
Результаты расчетов комбинированного замедлителя для направления 7, 8, 10 и 11 пучков представлены в таблице 12 и на рисунках 80 (а-г)

Таблица 12. Тепловыделение в алюминиевых стенках холодного замедлителя канала №8 (от активной зоны)

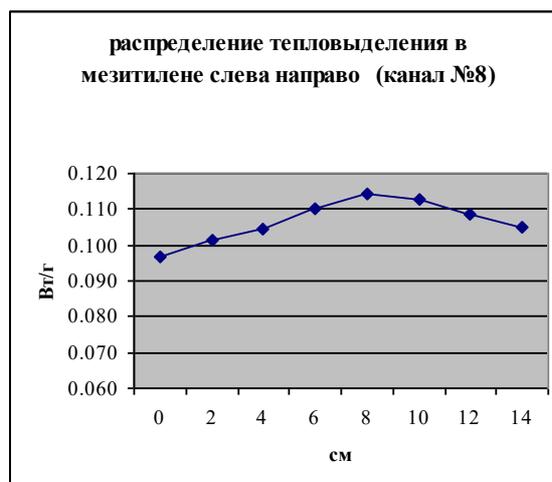
	Вт/г	Вт/см ³
первая стенка	0.042	0.11
вторая стенка	0.028	0.08
левая	0.026	0.07
правая	0.035	0.10
нижняя	0.030	0.08
верхняя	0.035	0.10



а)



б)



в)

г)

Рис. 80. Распределение тепловыделения в слоях материалов конструкций комбинированного замедлителя направления 7, 8, 10 и 11-го пучков (а – карбид бора (по толщине от активной зоны); б, в, г – мезитилен).

Результаты расчетов тепловыделения: в водяном предзамедлителе — 0,32 Вт/г; в гребенчатом водяном замедлителе — 0,08 Вт/г; в алюминии криогенной коробки — 0,032 Вт/г (среднее); в мезитиле — 0,11 Вт/г (среднее).

Таким образом, при массе алюминиевой коробки холодного замедлителя 1634 г ($21 \times 21 \times 5 \text{ см}^3$) и массе мезитилена 800 г, необходимо снять тепловыделение от излучения в размере ~ 140 Вт.

Выводы по главе 3.

1. Проведены исследования водородсодержащих материалов (метан, гидрат метана, лед воды, мезитилен), а именно, способности к замедлению нейтронов этими материалами при низких температурах на установке JESSICA в исследовательском центре г. Юлиха, Германия и на установке ДИН-2ПИ в ОИЯИ. Проведена верификация имеющихся констант данных с сечениями рассеяний нейтронов для данных материалов при низких температурах для

использования в программе MCNP. Результаты показали удовлетворительное качество библиотек констант.

2. Проведен сравнительный экспериментальный и расчетный анализ спектров нейтронов нескольких твердых водородсодержащих материалов. Показано, что твердый метан является наилучшим с точки зрения выхода холодных нейтронов.
3. Проведен анализ материалов, которые дают наибольший выход холодных нейтронов и могут быть использованы для холодных замедлителей на ИЯУ ИБР-2. Расчетный анализ показал, что при учете радиационных эффектов, наиболее подходящим материалом является мезитилен во втором фазовом состоянии (смесь мезитилена с м-ксилолом).
4. Оптимизированы параметры комбинированного замедлителя для исследовательских каналов 7, 8, 10 и 11 с учетом требований экспериментаторов на выведенных пучках. Получены расчетные данные по энергетическому распределению нейтронов для данных каналов. Конфигурация замедлителя, вместе с используемыми замедляющими материалами позволяет для отдельных каналов получить комбинированный (тепловой и холодный) спектр нейтронов. Получен расчетный фактор выигрыша в потоке холодных нейтронов для комбинированного замедлителя в направлении 8-го канала.
5. Проведен расчетный анализ дополнительных возможностей по увеличению выхода холодных нейтронов для мезитилена, при создании гребенчатого холодного замедлителя на его основе и оптимизирована толщина основы гребенок. Дополнительный выход может достигать 2,5 раз. Экспериментально показано, что уменьшение температуры мезитиленового замедлителя с 30К до 10 К даст выход холодных нейтронов на 20 - 25 % больше.

6. Проведен расчет энерговыделения в элементах конструкций комбинированного замедлителя нейтронов в направлении 7, 8, 10 и 11 каналов, что крайне важно для проектирования комплекса замедлителей.

Глава 4. Концепция комбинированного замедлителя ИЯУ ИБР-2 для 7, 8, 10 и 11 пучков.

В концепции замедлителя для 7, 8, 10 и 11 пучков реализован принцип комбинированного замедлителя, удовлетворяющий потребности экспериментаторов на выведенных пучках по спектрам нейтронов. Как отмечалось ранее, в основе реализации принципа лежит формирование различных спектров нейтронов в зависимости от направления зоны просмотра пучка (рисунок 72).

Холодный замедлитель, входящий в состав комбинированного, обеспечивает необходимым спектром нейтронов 7, 8 и 10 пучки (рисунок 81). Спектр нейтронов из него формируется смесью мезитилена с м-ксилолом с заполнением камеры в виде шариков, находящихся при низкой температуре ($T = 30\text{K}$). Рассматривавшийся при разработке концепции альтернативный вариант холодного замедлителя – «твэльская конструкция», был отвергнут поскольку показал меньшую надежность [156].

Тепловой спектр формируется гребенчатыми и плоскими водяными замедлителями комплекса для 7, 8 и 11 пучков. Причем для 11 пучка гребенчатый замедлитель расположен в верхней части активной зоны реактора и ортогонально оси пучка. Гребенчатые водяные замедлители показали свою устойчивую работу до модернизации реактора ИБР-2. Таким образом для 7 и 8 пучков формируется смешанный спектр, который получается от холодного замедлителя и гребенчатого водяного замедлителя.

Проектирование комплекса замедлителей модернизированной ИЯУ ИБР-2 было выполнено ФГУП НИКИЭТ имени Н.А. Доллежала [165].

- камеры холодного замедлителя, помещённой в вакуумный изолирующий объём;
- камеры водяного постзамедлителя (гребенчатых замедлителей);
- коммуникационных трубопроводов, обеспечивающих циркуляцию рабочих сред замедлителя.

Рабочая камера комбинированного замедлителя (рисунки 82, 83) [166] установлена на специальной откатной тележке с размещёнными на ней трубами подводящих коммуникаций (вода, гелий, вакуум, жидкая смесь мезитилена с м-ксилолом) (рисунок 84) и в штатном режиме размещается непосредственно за стационарным отражателем реактора [167].

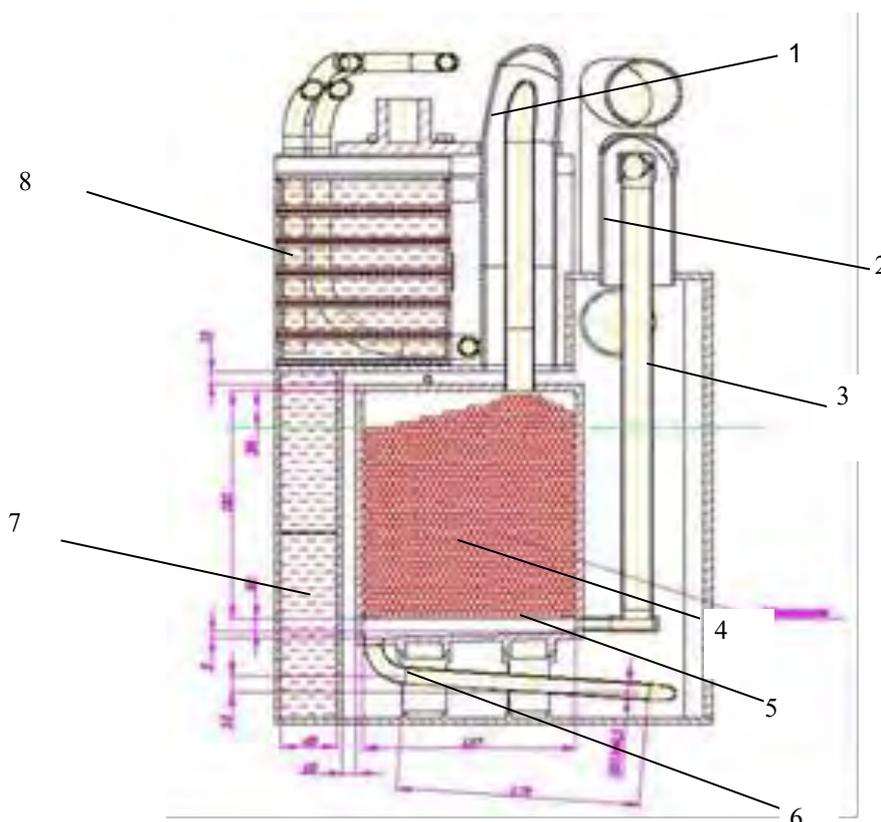


Рис. 82. Комбинированный замедлитель для 7, 8, 10 и 11 пучков модернизированной ИЯУ ИБР-2 (1- труба подачи гелия и шариков, 2 - вакуумный экран, 3- труба выхода гелия, 4- заполнение камеры холодного замедлителя шариками из смеси мезитилена с м-ксилолом (3:1 объемных частей), 5 - решетка, 6 - сливная трубка отработанного

и расплавленного материала, 7 – водяной замедлитель, 8 – гребенчатый водяной замедлитель).



Рис. 83. Фотография изготовленного комбинированного замедлителя для 7, 8, 10 и 11 пучков модернизированной ИЯУ ИБР-2 перед установкой в штатное положение.



Рис. 84. Фотография тележки с установленным на ней комбинированным замедлителем с трубопроводами подвода и отвода холодного гелия, воды, слива мезитилена, обеспечения вакуума.

Рабочие характеристики КЗ-202 приведены в таблице 13 [165].

Таблица 13. Рабочие характеристики КЗ-202

Габаритный размер замедлителя, мм	335x261x405
Объём холодной камеры, л	1,13
Толщина полости холодного замедлителя, мм	40
Толщина экранирующего слоя карбида бора, мм	10
Толщина водяного слоя предзамедлителя, мм	50
Расчётные параметры вакуума в изолирующем объёме, Па	10^{-2}
Расход хладагента при работе на эксперимент на один замедлитель, г/с	7,4
Расчётный суммарный расход водяного контура на один замедлитель, л/мин	43
Температура хладагента на входе в камеру при работе на эксперимент, К	20
Скорость захолаживания, К/мин	1,5
Температура воды на входе в водяные полости, °С	25
Проектный срок эксплуатации, год	25
Срок эксплуатации при мощности реактора до 2МВт, час	62500
Конструкционный материал камер замедлителя	алюминиевый сплав АМгЗ

4.1. Холодный замедлитель нейтронов.

Одним из основных элементов комбинированного замедлителя нейтронов для 7, 8, 10 и 11 пучков ИЯУ ИБР-2 является холодный замедлитель [166, 168 - 170, 188 - 190]. Камера замедлителя имеет форму параллелепипеда. Размеры внутренней камеры замедлителя с материалом 200

х 150 х 40 мм³. Заполнение камеры холодного замедлителя производится отдельными шариками смеси мезитилена с м-ксилолом с диаметром 3,5 - 3,9 мм, приготовленными заранее (рисунок 85) [171, 172]. Для загрузки камеры необходимо доставить потоком холодного гелия от загрузочного устройства в камеру замедлителя ~ 25000 шариков, при коэффициенте заполнения 0,6. Данная задача не является тривиальной, поскольку расстояние от позиции загрузки до камеры замедлителя составляет более 20 м и пневмотрасса должна проходить сквозь существующую биологическую защиту и делать подъем и несколько изгибов, которые необходимо преодолеть шарикам.

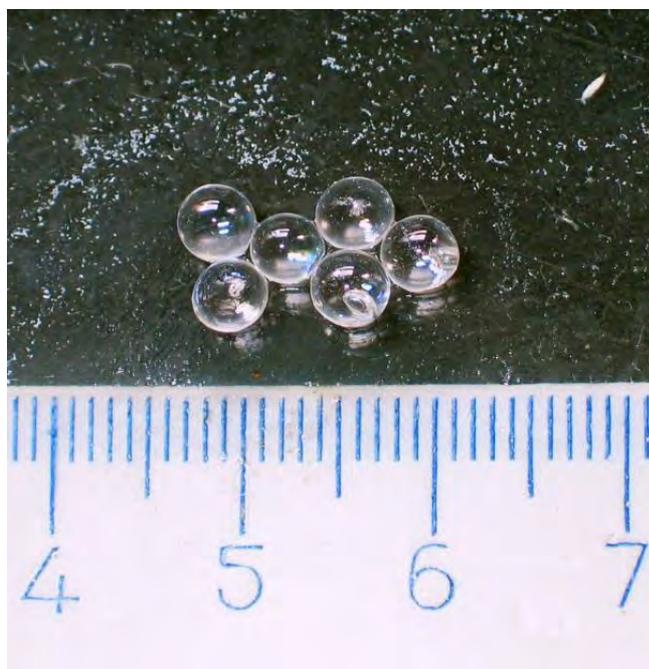


Рис. 85. Шарики из смеси мезитилена с м-ксилолом в жидком азоте (одно малое деление линейки соответствует 1 мм).

Предварительные теоретические расчеты показали, что доставка шариков при определенных условиях по трубопроводам возможна [173, 174]. Для обоснования способа доставки и загрузки рабочего вещества в камеру холодного замедлителя нейтронов на основе ароматических углеводородов и поиска оптимальных параметров загрузки был создан полномасштабный испытательный стенд холодного замедлителя, размещенный вне радиационной зоны [171, 172, 175, 176].

4.1.1. Результаты экспериментов на полномасштабном испытательном стенде.

Общий вид стенда представлен на рисунке 86 [176].

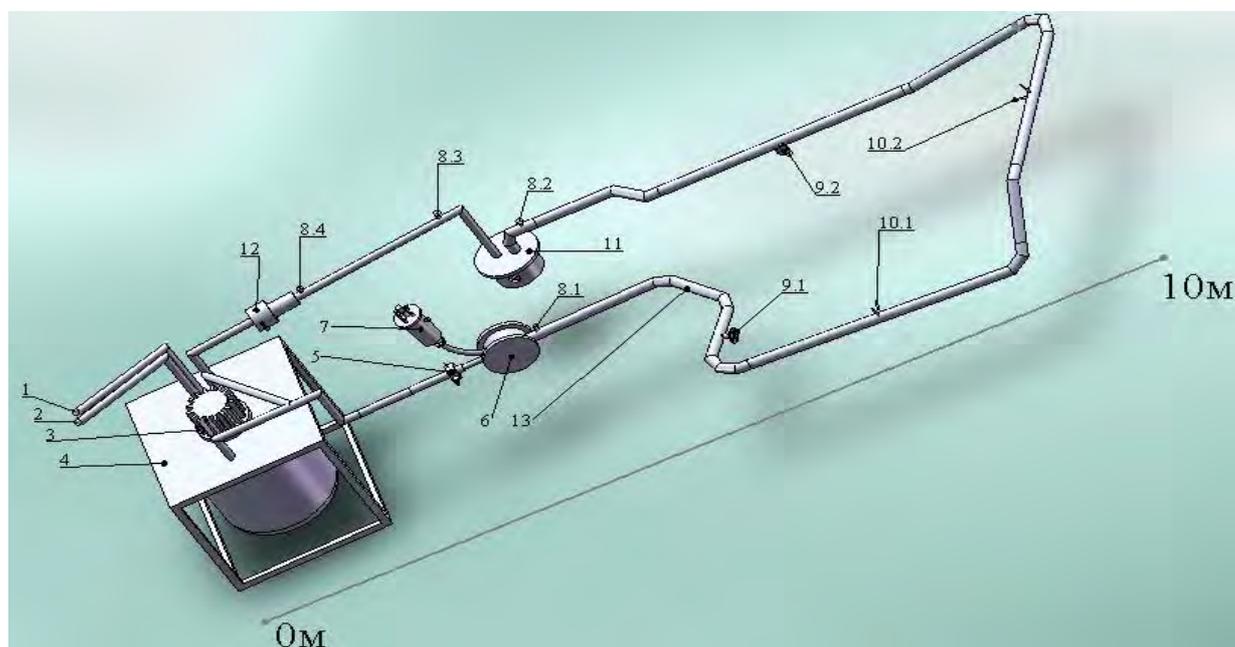


Рис. 86. Трехмерный эскиз полномасштабного испытательного стенда (1 - трубопровод подвода гелия к криогенной гелиевой установке (КГУ); 2 - трубопровод отвода гелия от КГУ; 3 – гелиевая газодувка; 4 – криостат; 5 - узел с трубкой Пито и мановакууметром; 6 - позиция ввода шариков в трубопровод; 7 – дозирующее устройство подачи шариков в пневмотракт; 8.1, 8.2, 8.3, 8.4 - места установки термометров сопротивления; 9.1, 9.2 - фланцы для откачки вакуума; 10.1, 10.2 - выходы трубок к дифференциальным датчикам давления; 11 - камера-имитатор холодного замедлителя; 12 – ввод подпитки гелия; 13 - транспортный трубопровод - пневмотракт).

Холодный гелий от криогенной машины КГУ-700 (проектная холодильная мощность 700 Вт при 15 К) через подводящий (2) и отводящий (1) трубопроводы поступает в криостат (4), где расположены теплообменник и гелиевый насос (газодувка) BNHeP-30-01 фирмы Barber Nicols (США) (3), обеспечивающие циркуляцию гелия по второму пневмотранспортному контуру. Принципиальная технологическая схема газовых и вакуумных

линий показана на рисунке 87 [172]. Газодувка задает скорость движения гелия, которая регистрируется при помощи расходомеров на основе измерения кинетического напора газа на трубке Пито (5) и разности статического давления на прямолинейном участке трубопровода с известным местным сопротивлением (10.2). Температура на разных участках пневмотранспортного тракта фиксируется с помощью термометров (8.1, 8.2, 8.3, 8.4).

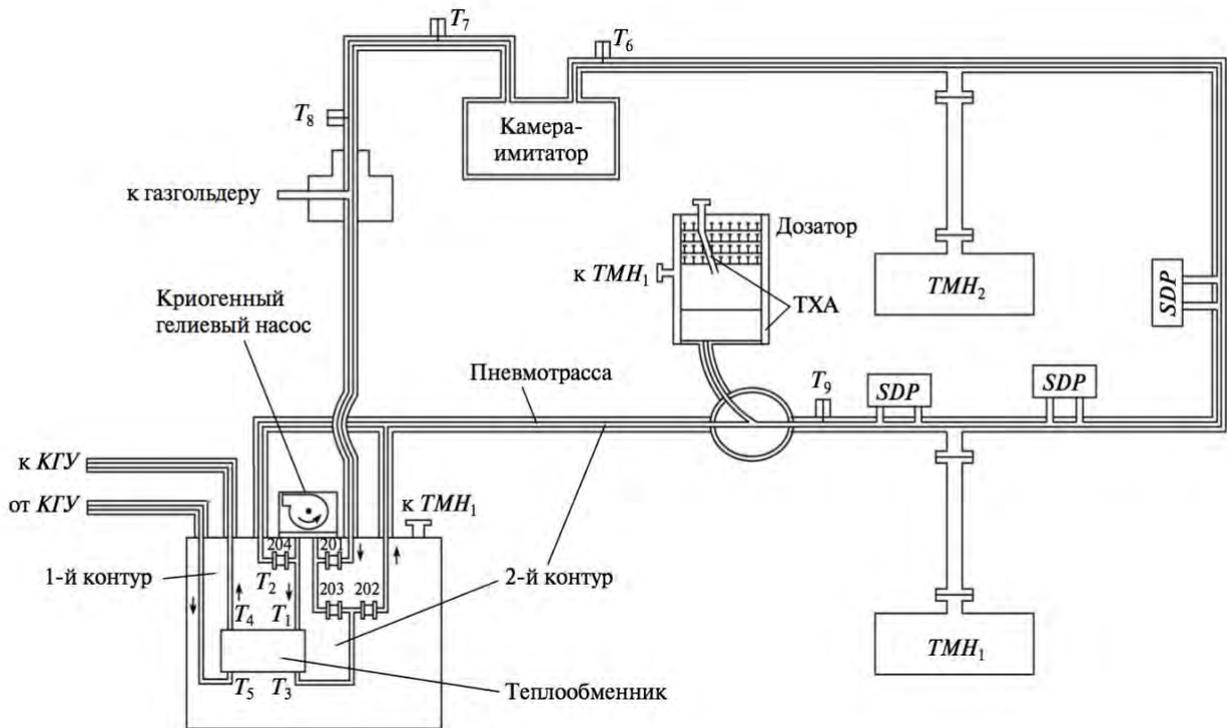


Рис. 87. Схема стенда шарикового холодного замедлителя нейтронов (ТМН – турбомолекулярные вакуумные насосы; SDP – датчики дифференциального давления DXLdp; ТХА – термопреобразователь хромель-алюмелевый; Т – резистивные датчики температуры ТВО; вентили 201–204 регулируют движение гелия в криостате).

При достижении заданных параметров температуры ($\sim 80\text{K}$) и расхода в пневмотранспортном тракте, производится загрузка заранее полученных шариков в дозирующее устройство (7). Затем из дозирующего устройства шарики поступают в пневмотракт с задаваемой периодичностью - один шарик за $1 \div 5$ секунд. Диаметр трубы пневмотракта – 16 мм, диаметр

шариков – 3,5 – 3,9 мм. Контроль движения шариков по тракту осуществляется на основе измерения динамической разности статического давления гелия на двух отрезках пути длиной 0,6м - 10.1 и 10.2 (рисунок 87). Путь шариков заканчивается в камере-имитаторе (18 х 18 х 4 см³), установленной в вакуумном кожухе (11) (рисунок 88) [172].

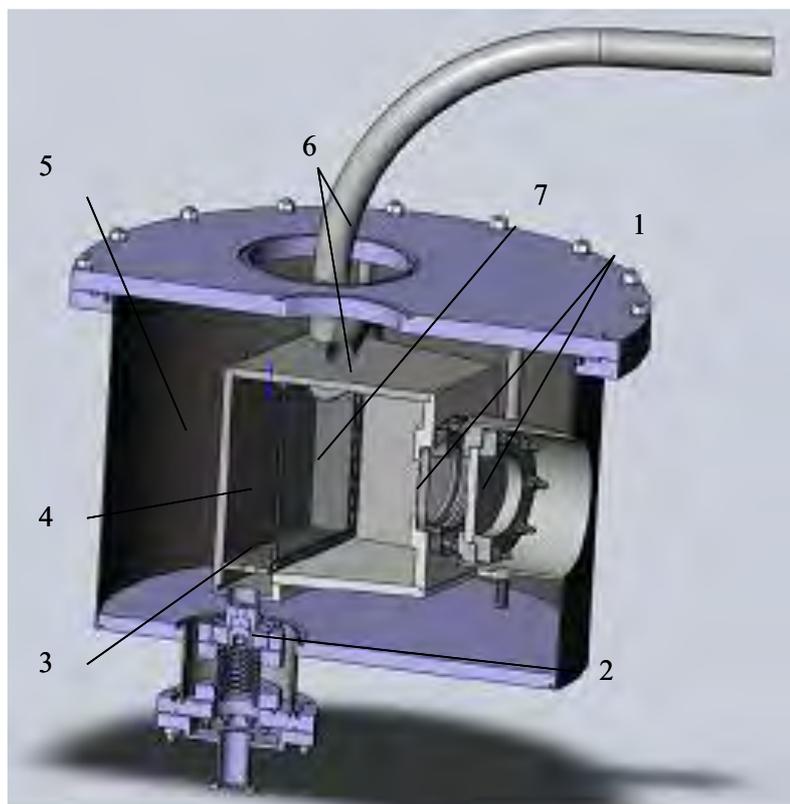


Рис. 88. Трехмерная модель камеры-имитатора (1 - кварцевые стекла толщиной 10 мм, 2 – система слива, 3 – решетка, 4 – объем для заполнения шариками, 5 – вакуумный кожух, 6 – криогенные трубопроводы входа гелия и шариков и выхода гелия, 7 – стеклянная стенка камеры).

Основные габаритные размеры камеры стенда, так же, как и места ввода шариков и гелия в камеру, повторяли камеру и места ввода шариков и гелия в холодном замедлителе. Отличие заключалось в том, что одна из стенок камеры была выполнена из стекла. Это позволяло через круглые вставки из кварцевого стекла в вакуумном кожухе контролировать загрузку шариков. С помощью Веб-камеры фиксировалось заполнение камеры

шариками и видеоизображение передавалось в ПК. В нижней части камеры была установлена решетка, сквозь которую проходил циркулирующий гелий, а шарики задерживались и заполняли камеру.

После загрузки камеры-имитатора КГУ – 700 прекращала подачу холодного гелия в трубопровод, температура повышалась и шарики расплавились. Жидкую смесь сливали из камеры через специальную сливную трубку.

Полная длина пневмотрассы от дозатора до камеры составляла 18 м. Пневмотрасса с внутренним диаметром 16 мм была окружена экранно-вакуумной изоляцией, ограничивающей приток тепла извне на уровне 3 Вт/м при вакууме в изолирующем объеме $\sim 10^{-3}$ Па.

Для контроля и управления основными параметрами испытательного стенда была разработана аппаратно-программная система контроля [172, 177]. Структурная схема системы представлена на рисунке 89. Она состояла из следующих основных модулей:

- контроль движения шариков;
- управление двигателем дозирующего устройства;
- контроль температуры;
- управление двигателем циркуляции газа.

Все данные через USB-интерфейс передавались в ПК, где выполнялись визуализация и формирование файла для последующей обработки.

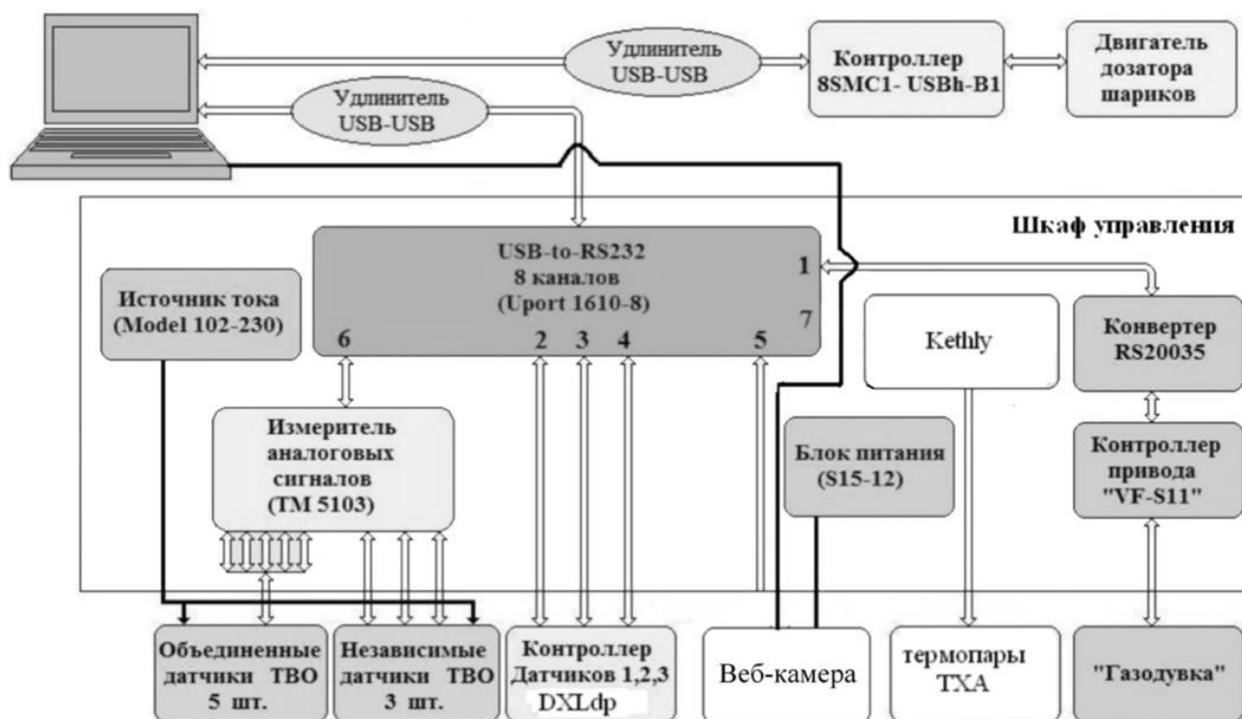


Рис. 89. Структурная схема контрольно-измерительных приборов стенда.

В экспериментах была отработана технология загрузки в камеру-имитатор по 1 литру шариков (полная камера) за время ~ 4 часа, включая время очистки тракта от азота (рисунок 90) [167].

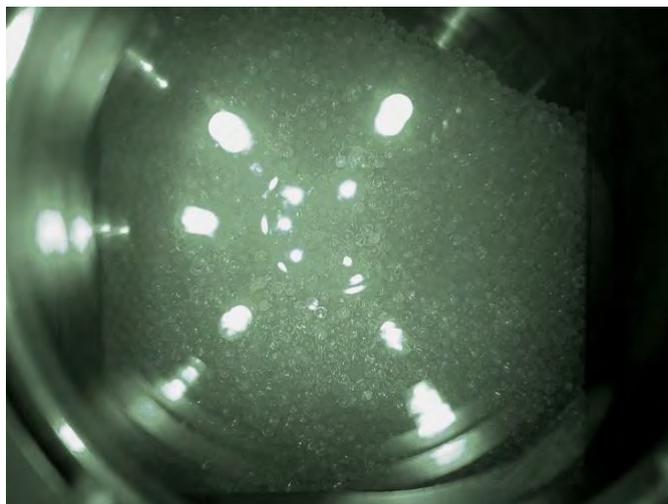


Рис. 90. Фотография шариков в камере-имитаторе холодного замедлителя.

Температура шариков 60 К, количество ~ 25000 шт.

Процесс загрузки камеры, помимо данных с дифференциальных датчиков давления, фиксирующих прохождения шариков, периодически

контролировался визуально сквозь тройное окно камеры имитатора (рисунок 91).

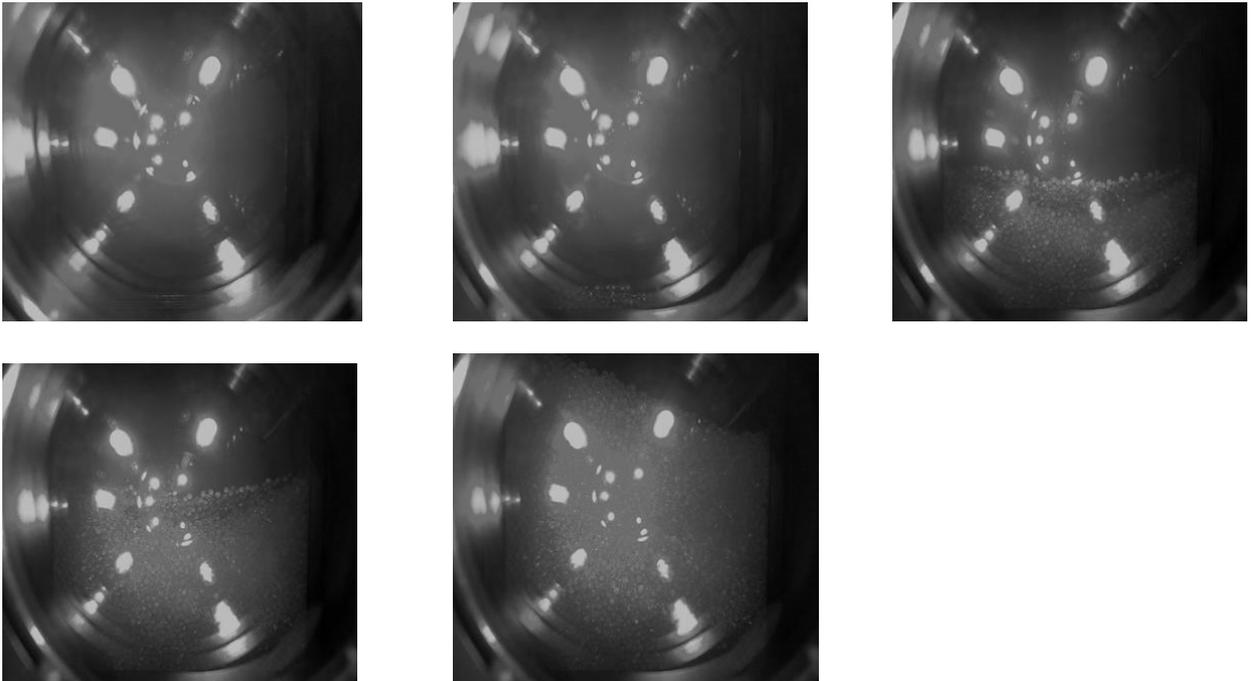


Рис. 91. Вид сквозь тройное стекло внутреннего объема камеры замедлителя (пустая камера, несколько сот шариков, заполнение меньше половины, заполнение больше половины, заполненная полная камера).

В процессе загрузки, температура гелия поднималась до 150 - 160 К, в результате чего наблюдалось прилипание шариков к стенкам камеры (рисунок 92), что ограничивает верхний предел температур при использовании шариков из смеси мезитилена и м-ксилола.

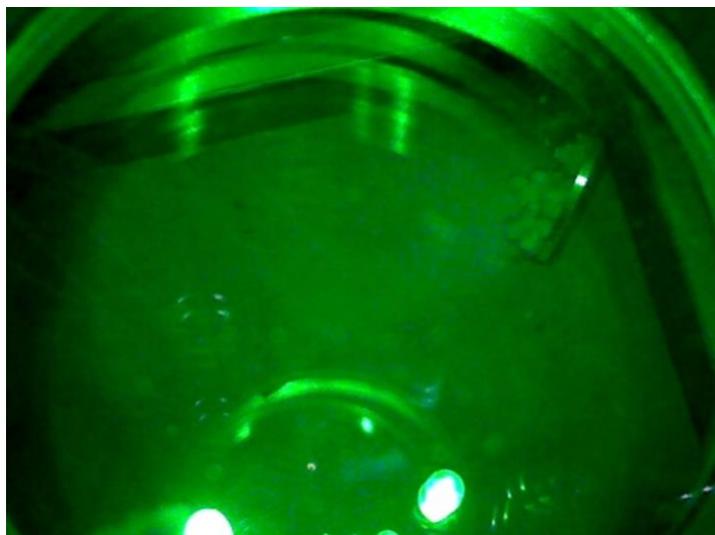


Рис. 92. Фотография шариков, прилипших к отбойнику в камере-имитаторе холодного замедлителя при температуре $\sim 150-160$ К.

После каждого заполнения всей камеры при температуре 80 К, проводилась проверка дальнейшего охлаждения и функционирования всех систем в течение нескольких часов (до суток бесперебойной работы). Температура в камере опускалась до 50 К. После чего криогенная машина выключалась, а смесь расплавлялась и сливалась из камеры.

Таким образом, на основе исследований на полномасштабном испытательном стенде была экспериментально апробирована возможность дисперсной загрузки камеры холодного замедлителя большим количества шариков (~ 25000 шт.) по сложному транспортному пути потоком холодного гелия, а также отработаны основные параметры для их загрузки [172].

4.1.2. Разработка холодного замедлителя для 7, 8 и 10 пучков ИЯУ ИБР-2.

Блоки и узлы испытательного стенда легли в основу разработанных технологических систем холодного замедлителя (рисунок 93) [166].

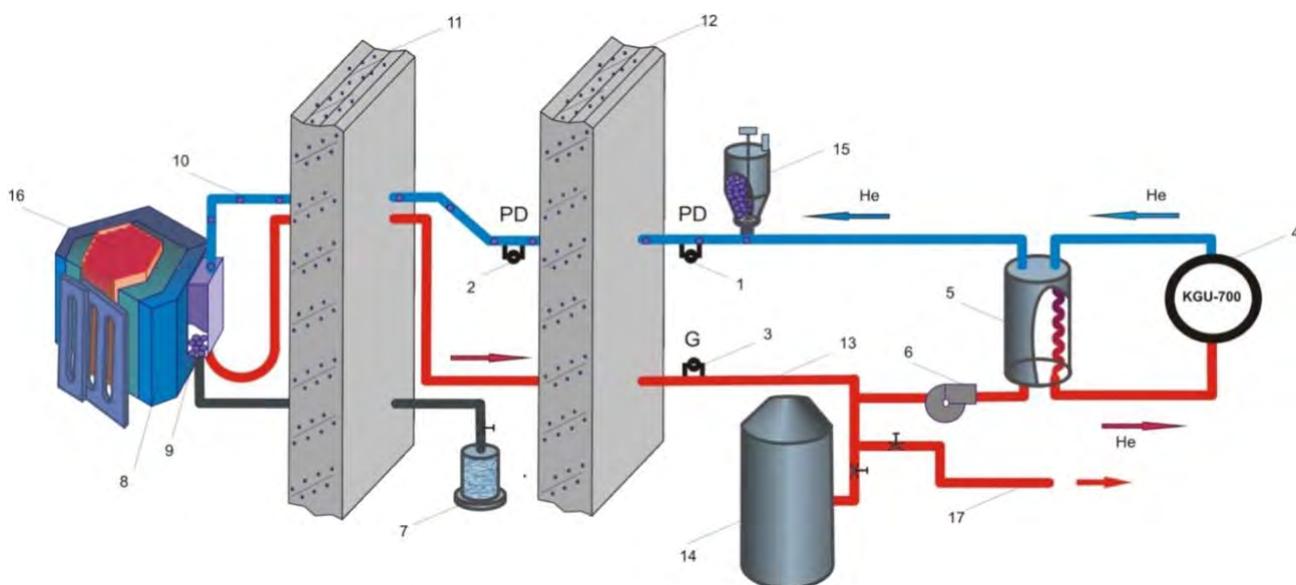


Рис. 93. Упрощенная технологическая схема подачи шариков и охлаждения холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2. (1, 2 – дифференциальные датчики давления, 3- трубка Пито, 4 - криогенная гелиевая установка с

трубопроводами холодного гелия второго контура, 5 - теплообменник, 6 - криогенный гелиевый насос (газодувка), 7 - ресивер для отработанного материала замедлителя с дренажной линией, 8 – предзамедлитель с водой, 9 – холодный замедлитель с шариками, 10 – криогенный трубопровод для пневмотранспорта шариков и подачи холодного гелия первого контура (к замедлителю), 11 - первая биологическая защита реактора, 12 – вторая биологическая защита реактора, 13 - криогенный трубопровод обратного гелиевого потока первого контура, 14 – газгольдер с гелием, 15 - загрузочное устройство, 16 – активная зона реактора ИБР-2М с подвижным отражателем, 17 – трубопровод сброса газа из системы).

Холодный гелий от криогенной установки через подводящий и отводящий трубопроводы второго контура охлаждения поступает в криостат, где расположены теплообменник и гелиевая газодувка ВNHeP-30-01, обеспечивающая циркуляцию гелия по первому пневмотранспортному контуру. Газодувка задает скорость движения гелия, которая измеряется при помощи расходомеров на основе регистрации кинетического напора газа на трубке Пито, а также по разности статического давления на прямолинейном участке трубопровода с известным местным сопротивлением. Температура на разных участках пневмотранспортного тракта фиксируется с помощью термометров (обозначены на схеме (рисунок 94) буквами T и DT), P - датчики давления/вакуума.

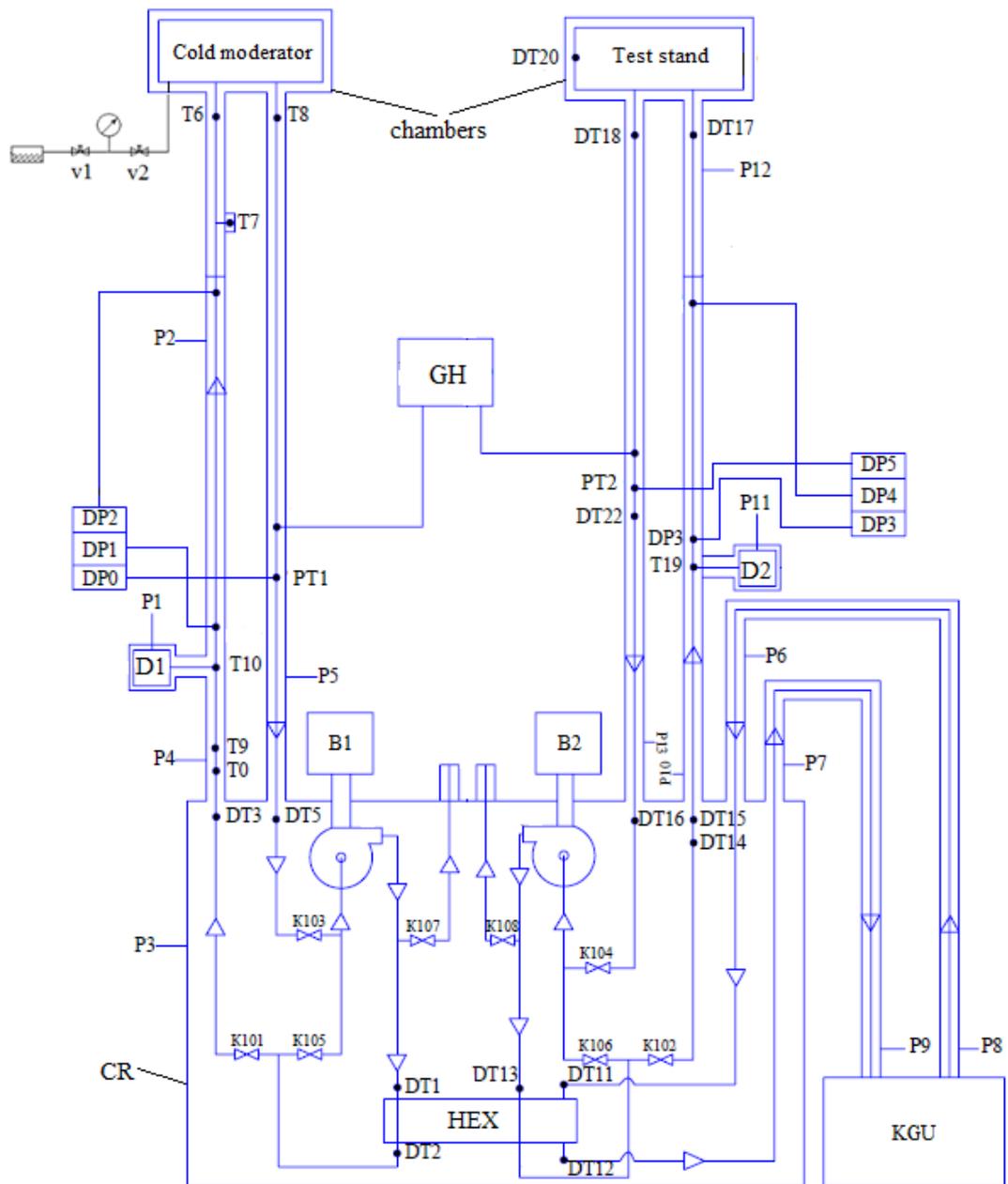


Рис. 94. Технологическая схема холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2 с двумя газодувками, общим теплообменником и КГУ. (Cold moderator-камера холодного замедлителя, DT – датчики температуры (термодиоды DT670), T – радиационно-стойкие термодпары типа ТХА, P – вакуумные датчики MicroPirani MKS 901 и MKS 925, КГУ – криогенная гелиевая установка, B1 и B2 – газодувки, D1 и D2 – дозирующие устройства, DP – датчики дифференциального давления типа DXLdp, v1 и v2 – вентили для слива отработанной смеси

мезитилена и метаксилола, ГН – газгольдер, НЕХ – теплообменник, РТ – трубки Пито, СР – криостат).

Проектом предусмотрено охлаждение сразу двух первых контуров (для двух холодных замедлителей, либо замедлителя и испытательного стенда на этапе испытаний). Для этого используется криостат с общим теплообменником и с двумя встроенными гелиевыми газодувками, обеспечивающими циркуляцию гелия по двум первым контурам (рисунок 95). Контуров независимые и могут работать отдельно. Охлаждение второго контура осуществляется одной криогенной машиной.



Рис. 95. Криостат с теплообменником и двумя газодувками в верхней части криостата. Вакуумный кожух снят.

При достижении нужных температуры и расхода в пневмотранспортном тракте производится загрузка заранее полученных шариков посредством дозирующего устройства, предназначенного для бесперебойного периодического или квазипериодического контролируемого

сброса шариков в пневмотракт из питающего объема (рисунок 96, 97) [172, 178]. Внутренний корпус дозирующего устройства сделан из меди (для обеспечения равномерности охлаждения) и имеет объем 330 см³.

Шарики из дозирующего устройства порциями по 1 - 4 шарика попадают в пневмотракт с заданной периодичностью – 2 порции в секунду, затем они проходят по сложному трубопроводу длиной около 21 метра. Их путь заканчивается в камере холодного замедлителя, на дне которой имеется решетка с прорезями 2 мм (рисунок 82). После загрузки камеры расход газа повышается до предельно возможного (около 5 - 6 г/с), а температура понижается до рабочей 20 - 30 К.

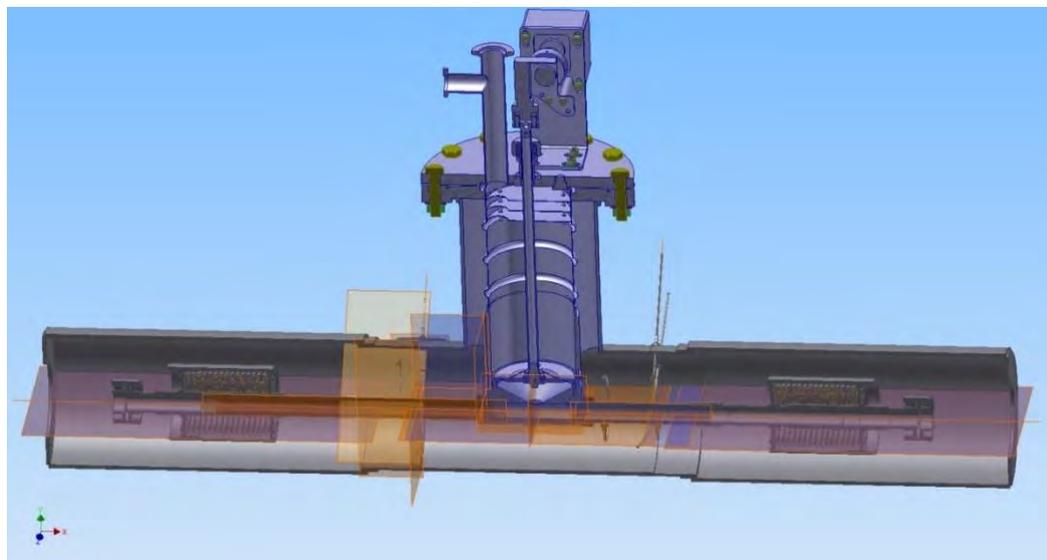


Рис. 96. Трехмерная модель дозирующего устройства с трубками отбора газа после выхода шариков из дозатора.



Рис. 97. Дозирующее устройство без вакуумного кожуха на газовом испытательном стенде.

Сразу за дозирующим устройством установлена система контроля прохождения шариков, попадающих из него в пневмотракт. Она основана на регистрации значительного по амплитуде импульса давления при прохождении шарика по трубе. Отбор давления производится на расстояниях 6 см и 11 см от места попадания шарика из дозатора в трубу (рисунок 98).

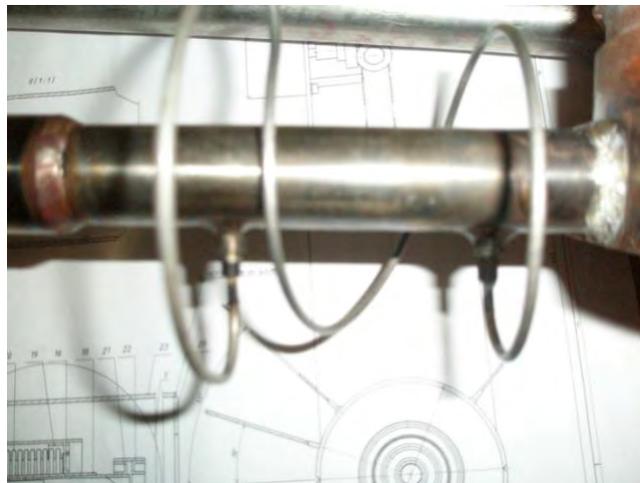


Рис. 98. Трубки отбора газа после выхода шариков из дозатора

В пневмотракте предусмотрена еще одна позиция для контроля прохождения шариков. Она расположена непосредственно перед подъемом трассы на 30^0 в кольцевом коридоре реактора.

Динамическая разность давлений измеряется мембранным датчиком DXLdp (рисунок 99) с временным разрешением 10 мс. Быстродействующий АЦП (ЛА-20USB) оцифровывает аналоговый сигнал в диапазоне $0 \div 5$ В с частотой 1000 Гц и передает величину измеряемого сигнала в ПК, где осуществляется обработка и визуализация сигнала специально созданной программой.



Рис. 99. Мембранные датчики DXLdp, измеряющие дифференциальное давление на трассе шариков.

Идентификация прохода шарика в измеряемом промежутке выполняется программным путем, по импульсам показания давления при прохождении шариков (рисунок 100) [172].

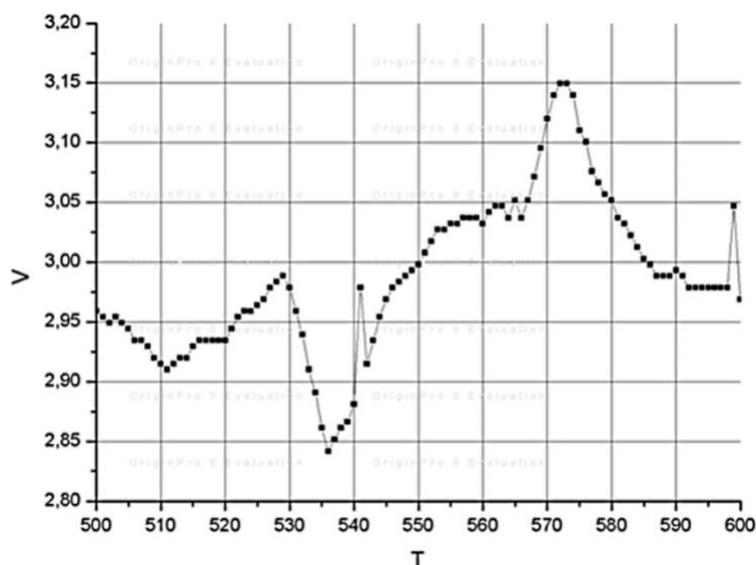


Рис. 100. Сигнал дифференциального датчика давления во время выхода шариков из дозатора в пневмотракт. По оси X – время T в мс, по оси Y – сигнал в Вольтах.

После окончания цикла реактора, прекращается подача холодного гелия в трубопровод, температура шариков повышается, и они постепенно тают. Жидкую смесь сливают из камеры через специальную сливную трубку, выходящую в герметичную емкость, расположенную в кольцевом коридоре реактора.

Все холодные части установки теплоизолированы экранно-вакуумной изоляцией. Контроль вакуума, а также давления в гелиевой полости ведется мановакууметрами фирмы MKS Instrument.

В штатной структуре холодного замедлителя введен узел отвода радиолитического водорода из гелиевой полости в атмосферу по трубе диаметром 60 мм (выводная труба подключается к месту установки мановакууметра P1 на (рисунок 94). Накопление в смеси мезитилена и м-ксилола холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2 радиолитического водорода идет со скоростью 7,5 норм.л/МВт сутки/кг (см. Главу 3). Это соответствует накоплению 100 литров H_2 в нормальных условиях за время 11-дневного цикла работы реактора на мощности 2 МВт при номинальной нагрузке

камеры 0,6 кг. Водород выходит из твердого мезитилена при температуре выше 120 К. Соответственно, при достижении температуры ~ 120 К, внутренний объем отсекается от газгольдера и открывается для сброса в атмосферу, поскольку в замкнутой гелиевой полости, объем которой равен 60 – 70 л, после выхода водорода и нагрева трубопроводов до комнатной температуры избыточное давление достигло бы 160 кПа, в то время как предельно-допустимое давление внутри камеры по расчету составляет 40 кПа. При температуре 120 К давление в полости (около 70 кПа) также будет превосходить допустимое. Давление в полости контролируется датчиком P1, а превышение на 25 кПа дает предупредительный звуковой и световой сигналы на пульт управления холодного замедлителя и на пульт реактора. Во время работы холодного замедлителя внутренний объем подключен к гелиевому газгольдеру и давление в системе соответствует газгольдерному и не может его превысить.

4.1.3. Криогенные трубопроводы.

Трубопроводы холодного гелия вне тележки, на которой установлен комбинированный замедлитель, имеют два типоразмера. Трубопровод меньшего размера используется как пневмотракт для транспортировки шариков от дозатора до входа в «тележку» и как трубопровод подачи холодного гелия к камере замедлителя при его работе. Его полная длина – 18 метров. Геометрия трубопровода – сложная, т.к. требовалось провести его через биологическую защиту реактора, по существующему кольцевому коридору, заполненному оборудованием нейтронных спектрометров (рисунки 101 - 103).

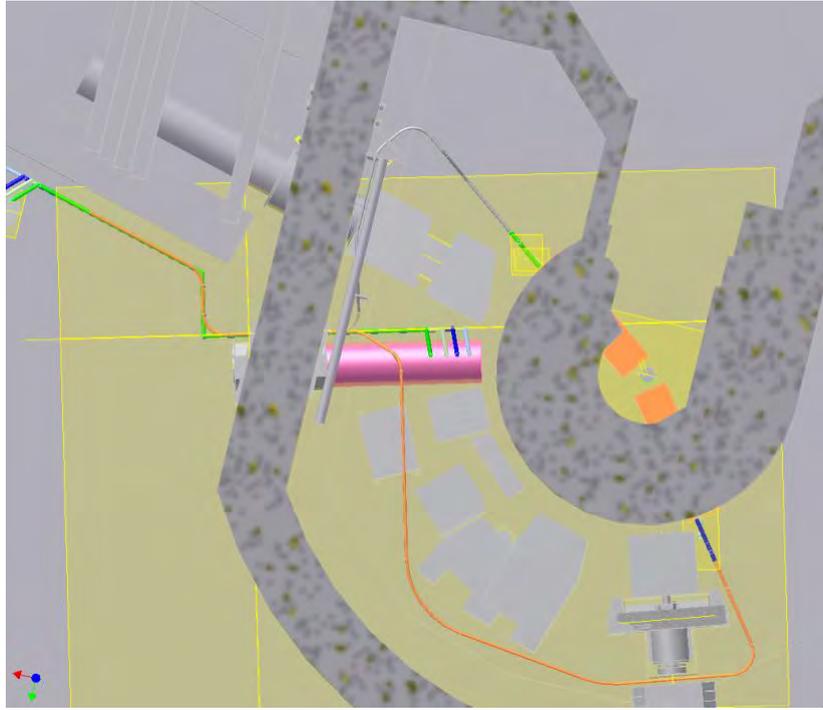


Рис. 101. Трехмерная модель криогенных трубопроводов для загрузки шариков и подачи холодного гелия через биологическую защиту реактора (вид сверху).

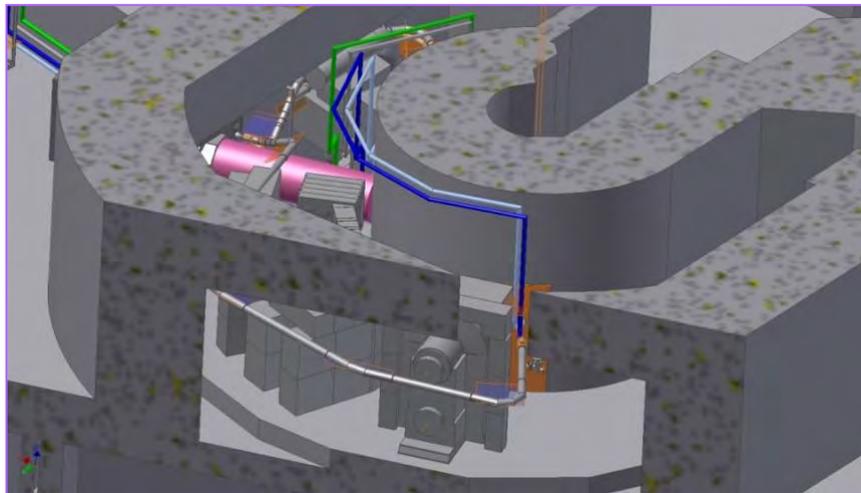


Рис. 102. Трехмерная модель криогенных трубопроводов для загрузки шариков и подачи холодного гелия через биологическую защиту реактора (вид сбоку).

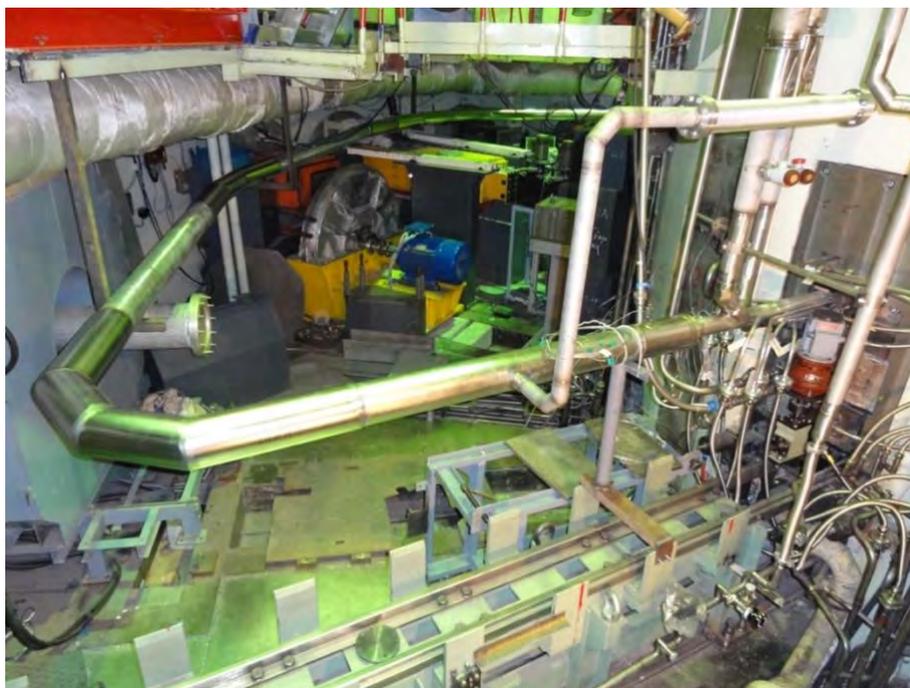


Рис. 103. Смонтированный в кольцевом коридоре криогенный трубопровод для загрузки шариков и подачи холодного гелия, подключенный к трубопроводам, расположенным на тележке с комбинированным замедлителем, а также другие трубы с подводными и отводящими коммуникациями (вакуум, вода, жидкий мезитилен). Транспортный трубопровод проходит над спектрометрическим оборудованием.

Сложная геометрия потребовала тщательного подхода к выбору конструктивных элементов, обеспечивающих дистанционирование внутренней трубы от внешнего вакуумного экрана (диаметр 130 мм) в холодном состоянии трубопровода. Был выбран вариант свободного расположения трубы: без контакта дистанционирующих элементов по всему периметру, а только с точечным контактом. Концы трубы опираются на «тепловые мосты» в виде набора длинных концентрических цилиндров, при этом обеспечено скольжение трубы в одном из мостов. Во время охлаждения труба выбирает положение с наименьшими деформациями. Экранная изоляция представляет собой многослойную намотку графитовой тканью (внутри) и чередующихся слоев алюминиевой фольги, майлара (в районе экспериментального зала) и просто фольги (в районе кольцевого коридора).

Измеренный на испытательном стенде, теплоприток на единицу длины трубопровода оказался равным $\sim 3 - 3,5$ Вт/м.

Каждый свариваемый участок внутренней транспортной трубы начинается со специальной конической формы с расширением на 0,2 мм. Это предотвращает соударения шариков с выступами, которые увеличивали бы вероятность разрушения шарика в процессе пневмотранспорта.

Трубопровод большего внутреннего диаметра используется в остальной части газовых коммуникаций, как в первом, так и во втором контурах циркуляции (разработка НПО «Гелиймаш»).

4.1.4. Аппаратно-программное обеспечение холодного замедлителя нейтронов.

Аппаратное обеспечение холодного замедлителя построено по той же схеме, что и для испытательного стенда (рисунок 89). Оно смонтировано в единый шкаф управления (рисунок 104) [179], что позволило оптимизировать количество линий связи с ПК.



Рис. 104. Стойки систем управления и контроля холодного замедлителя.

Программное обеспечение создано по аналогии с программным обеспечением испытательного стенда [177]. В него добавлен контроль ряда дополнительных параметров, а также реализована возможность удаленного наблюдения за работой системы посредством сети интернет (приложение клиент-сервер). Программный комплекс предназначен для автоматизированного выполнения следующих функций [114]:

- измерение величины вакуума в межтрубном пространстве датчиками MKS-925 (8 шт.);
- измерение вакуума или избыточного давления во внутренней (мезитиленовой) трубе датчиком MKS-901;
- отображение данных контроля температуры (10 шт.);
- графическое изображение изменения во времени температуры;
- контроль изменения оборотов газодувки ;
- контроль уровня гелия в газгольдере;
- контроль прохождения шариков;
- контроль расхода газа;
- периодическое представление на экране показаний контрольно-измерительных приборов;
- звуковая и текстовая сигнализация в случаях:
 - падения вакуума в межтрубном пространстве ниже 0,13 Па;
 - падения расхода газа ниже 3,5 г/сек;
 - остановки вращения газодувки;
 - достижения MAX или MIN уровня гелия в газгольдере.

Программное обеспечение холодного замедлителя включает в себя две программы, одна из которых отвечает за визуализацию данных термометрии, давления/вакуума в узлах системы, показания количества гелия в газгольдере, расхода гелия и частоты вращения газодувки. Изображения, формируемые программой, можно удаленно получать на программах-клиентах, установленных на других ПК, подключенных к сети интернет, например, на

пульте управления ИЯУ ИБР-2. Рабочее окно программы состоит из трех закладок-подпрограмм:

- с мнемосхемой технологических систем холодного замедлителя с цифровой индикацией давления/вакуума в узлах системы, частоты вращения газодувки и расхода гелия (рисунок 105);
- температур с масштабируемыми графиками температур (рисунок 106);
- контрольной информацией о доступности объектов для связи.

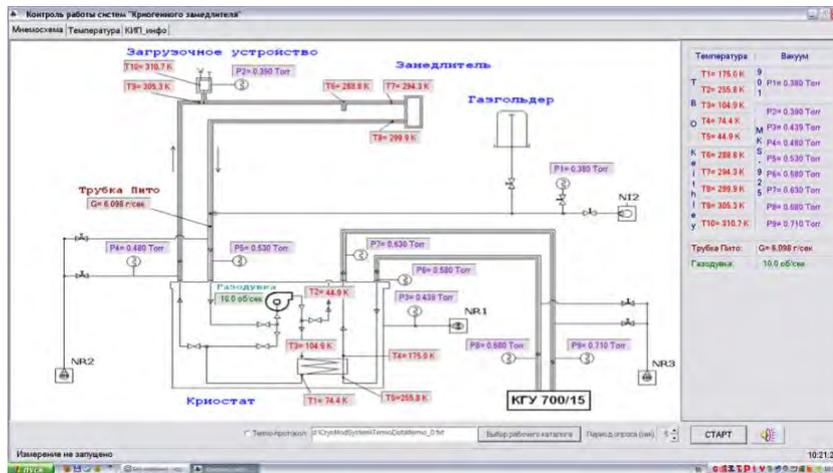


Рис. 105. Рабочее окно программы контроля за работой системы холодного замедлителя.

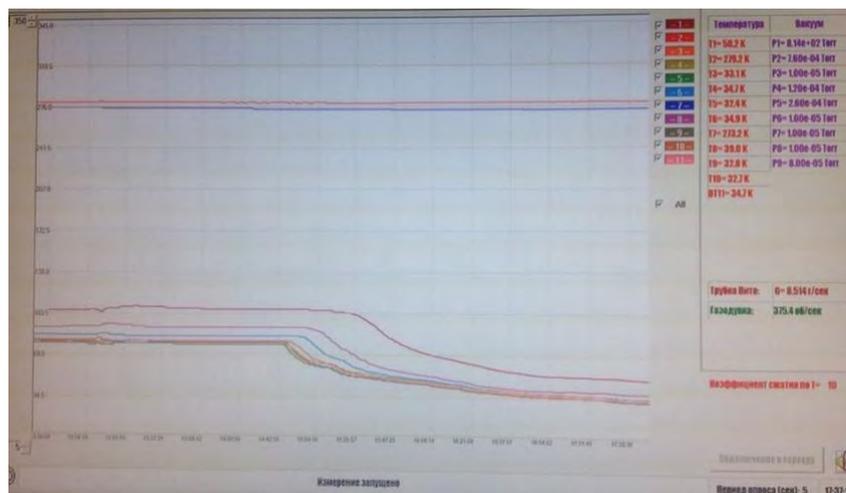


Рис. 106. Рабочее окно программы контроля за температурами технологических систем холодного замедлителя.

Вторая программа, запускаемая на отдельном ПК, предназначена для визуализации прохождения шариков по системе в процессе загрузки и для визуализации расхода газа (рисунок 107).



Рис. 107. Рабочее окно программы для визуализации прохождения шариков по системе в процессе загрузки и для визуализации показаний расхода газа.

Данные с датчиков Д2 и Д3 используются также для контроля затора движения шариков и для измерения расхода транспортирующего газа. Данные Д2 и Д3 усредняются за 1 секунду и переводятся в Паскали.

С момента старта измерения за первые 3 - 4 секунды работы вычисляется $R_0 = D2/D3$. Далее каждое $R = D2/D3$ сравнивается с $k_{затоп} * R_0$. Если $R > k_{затоп} * R_0$, то формируется сигнал «затор шариков».

Расход газа определяется по формуле: $G_m = 8.95 * \sqrt{\Delta P / T}$,

где ΔP – сигнал Д3 в Па (напряжение в 5 В соответствует давлению 100 Па),
 T – температура гелия, К.

В процессе измерения данные с первого датчика – Д1 выводятся в верхней части окна в виде временного графика с периодом 1 секунда.

Отношение усредненных значений Д2 к Д3 (величина R) и величина G_m выводятся в виде «бегущего» графика в нижней части окна задачи.

При падении расхода гелия ниже 3,5 г/сек и при возникновении «затора шариков» появляются характерный звуковой сигнал и соответствующие надписи в окне задачи.

4.1.5. Температурные и гидравлические характеристики холодного замедлителя.

Изучение характеристик холодного замедлителя было начато с момента физического пуска комбинированного замедлителя в 2012 году при мощности реактора от 0 до 460 кВт (23% номинальной мощности) и продолжено при номинальной мощности для разных по продолжительности циклов работы реактора. При пуске были задействованы все узлы и агрегаты в соответствии с проектом: криогенная гелиевая установка КГУ-700, вакуумная система, система подпитки и очистки гелия, узел отвода радиолитического водорода, криостат с гелиевой газодувкой и теплообменником, дозатор шариков, генератор шариков, контрольно-измерительная система.

4.1.5.1. Гидравлические (гидродинамические) характеристики гелиевого тракта холодного замедлителя.

Как отмечалось ранее, скорость циркуляции гелия по первому контуру (далее – расход) измеряется с использованием трубки Пито. Кинетический напор ΔP измеряется непосредственно трубкой Пито и дифференциальным манометром, а весовой расход G в г/сек, вычисляется программой в он-лайн режиме по формуле:

$$G = 8.95 \sqrt{(\Delta P/T)},$$

где T – температура гелия в месте установки трубки Пито.

Нагрев газа в газодувке очень слабо зависит от расхода (при постоянной скорости вращения ротора) и равен ~ 4 К.

Измерения характеристик газодувки на замедлителе при температуре гелия на входе в газодувку 30 К показали, что его расход приближается к 7 г/сек, что соответствует техническому паспорту на газодувку.

4.1.5.2. Температурные характеристики холодного замедлителя.

В понятие «температурные характеристики» включаются такие величины, как теплопритоки на трубы и некоторые узлы тракта, температура в камере замедлителя и в важных для контроля состояния холодного замедлителя и гелиевого тракта точках (рисунок 94): минимальная температура (на выходе гелия из теплообменника), температура в тракте шариков перед дозирующим устройством (Т10), температуры на входе в тележку замедлителя и на выходе (Т6 и Т8), температура после газодувки (DT1) и другие.

В ходе пуско-наладочных работ были оценены теплопритоки и измерены температуры при температурно-стабилизированных режимах:

- Режим без мощности и без загрузки шариков: температура гелия второго контура на входе в теплообменник 26,3 К, минимальная температура гелия в первом контуре (на выходе из теплообменника) - 27,4 К.
- Режим на мощности реактора 460 кВт без загрузки шариков: изменение температуры гелия – незначительное, порядка десятых долей градуса, т.е. меньше погрешности измерения температуры.
- Режим на мощности реактора 2 МВт с загруженной шариками камерой: температура гелия второго контура на входе в теплообменник 25,1 К, минимальная температура гелия первого контура (на выходе из

теплообменника) - 26,8 К, оцениваемая температура шариков – не более 33К.

На основании данных стабилизированных режимов были получены результаты по теплопритокам.

Теплопритоки на входных (шариковых) гелиевых трубопроводах оказались значительно выше расчетных, а именно: 3 Вт/м трубопровода, вместо проектных 1 Вт/м. Теплопритоки на выходных гелиевых трубопроводах диаметром 36 мм достигают 5 Вт/м, они оценивались как на полномасштабном стенде, так и на рабочей установке. В итоге тепловая нагрузка на контур за счет теплопритоков на трубы составила ~200 Вт.

Среднее по объему загрузки шариков тепловыделение от замедления нейтронов и поглощения гамма-квантов, рассчитанное методом Монте-Карло составило 0,11 Вт/г, что даёт при загрузке смеси мезитилена и м-ксилола (~660 г) полную мощность тепловыделения в смеси ~75 Вт; с учетом тепловыделения от захвата гамма квантов в стенках камеры (~55 Вт) и теплопритоков на подводящую и отводящую трубы и саму камеру (~10 Вт) полная мощность, отводимая гелием из полости от входа в тележку замедлителя (Т6 на схеме) до выхода (Т8 на схеме), достигнет ~140 Вт [165]. Оцененная из экспериментальных данных, мощность теплопритоков по росту температуры и по расходу газа при 2 МВт мощности реактора колебалась в пределах ~135-150Вт.

Опираясь на величину подогрева гелия газодувкой ~4 К и измеряя расход газа, получаем мощность тепловыделения в газодувке, отдаваемую газу при $G = 6$ г/сек, $W = 125$ Вт.

Таким образом, суммарная мощность теплопритоков на трубопроводы и другие элементы первого контура и тепловыделение в газодувке составила ~500 Вт при штатной работе холодного замедлителя на мощности реактора 2МВт и при номинальных оборотах газодувки.

Средняя температура замедлителя при работе на полной мощности реактора составила 30-33 К вместо ожидаемых 20 К, что, соответственно, привело к снижению ожидаемого расчетного выхода холодных нейтронов примерно на 10-15 %. Это вызвано тем, что на криорефрижераторе не были достигнуты проектные параметры температуры (15 К).

4.1.6. Измерение спектров нейтронов и уровня загрузки камеры холодного замедлителя.

4.1.6.1. Методика проведения измерений.

В отличие от испытаний на полномасштабном стенде, когда прохождение шариков в камеру фиксировалось визуально посредством передачи видеоизображения, в штатной работе холодного замедлителя такой возможности нет. Для дополнительного контроля, помимо дифференциальных датчиков давления, регистрирующих прохождение шариков по транспортному трубопроводу, ведется регистрация двухмерного изображения и спектра нейтронов с комбинированного замедлителя при малой мощности реактора ~ 400 кВт с помощью двухкоординатного позиционно-чувствительного детектора нейтронов (ПЧД) [180] и кадмиевой диафрагмы («камера-обскура»), расположенной между замедлителем и ПЧД.

Двумерное изображение поверхности замедлителя образуется на позиционно-чувствительном детекторе при прохождении тепловых и холодных нейтронов от замедлителя через небольшое (около $\varnothing 1$ мм) отверстие, либо щель в кадмиевой диафрагме. Изображение получается перевёрнутым, а его масштаб определяется расстояниями между ПЧД, диафрагмой и замедлителем. На рисунке 108 [114] приведена схема тестового эксперимента на штатном ПЧД установки РЕМУР [181], расположенной на 8-м канале ИЯУ ИБР-2 (рисунок 109), по получению изображений и спектров нейтронов от комбинированного замедлителя. Расстояния А и В, указанные на рисунке 109, соответствуют реальным расстояниям в эксперименте, то есть изображение на детекторе получается

уменьшенным ($k=A/B \approx 0,29$). Вакуумный объём (труба), занимающий основную часть траектории нейтронов, уменьшает потери нейтронов в воздухе.

Спектр нейтронов измеряется методом времени пролёта.

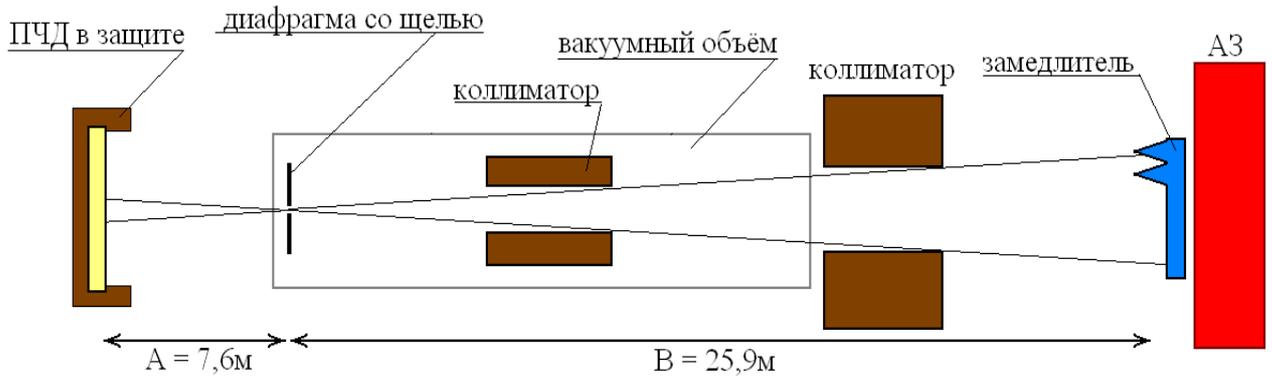


Рис. 108. Схема тестового эксперимента с измерением спектра нейтронов от комбинированного замедлителя на установке РЕМУР.

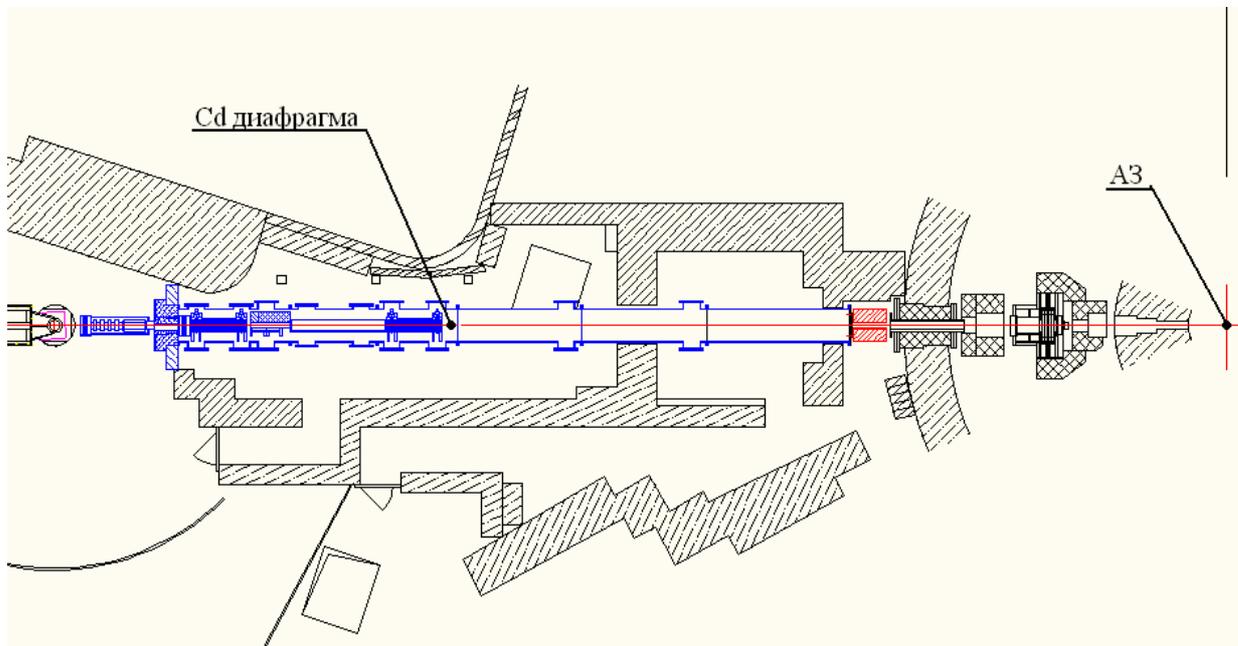


Рис. 109. Размещение нейтронного монитора на 8-ом канале ИЯУ ИБР-2 (вид сверху, где АЗ – активная зона реактора ИБР-2 с комбинированным замедлителем).

Расположение элементов установки РЕМУР не оптимально для проведения измерений с холодным замедлителем. На пути нейтронов имеется ряд коллиматоров, необходимых для других физических измерений на спектрометре. Данные коллиматоры ограничивают апертуру в горизонтальном направлении. Помимо этого, между поверхностью холодного замедлителя и детектором находится ряд алюминиевых окон общей толщиной до 40 мм, рассеивающих и частично поглощающих холодные нейтроны.

Позиционно-чувствительный детектор имеет рабочую область размером 180x180 мм². Он установлен таким образом, что центр детектора лежит на горизонтальной оси спектрометра. Для уменьшения фоновых нейтронов, детектор помещён в защиту, собранную из листов борированного полиэтилена и кадмия (рисунок 110) [114].



Рис. 110. ПЧД в защите, установленный на 8-м канале ИЯУ ИБР-2.

Электронный блок обработки данных с детектора представляет собой дискриминатор (PS715), высоковольтный блок (NHQ206L), блок задержек и питания, установленные в одном крейте. С крейта сигналы ПЧД, вместе с сигналами стартов реактора, поступают в ПК, где обрабатываются программами сбора данных для платы De-Li-DAQ, встроенной в ПК [182].

4.1.6.2. Загрузка камеры холодного замедлителя и спектры нейтронов.

Как уже отмечалось, контроль заполнения камеры осуществляется при мощности реактора 400 кВт, что позволяет получать в режиме реального времени двухмерную картину на ПЧД за счет изменения спектра нейтронов при заполнении камеры холодного замедлителя шариками из смеси мезитилена и м-ксилола. При пустой камере холодного замедлителя регистрируется тепловой спектр от предзамедлителя с водой и гребенчатого водяного замедлителя. По мере заполнения камеры холодного замедлителя становится отчетливо видна граница заполнения за счет контраста (рисунок 111) [166].

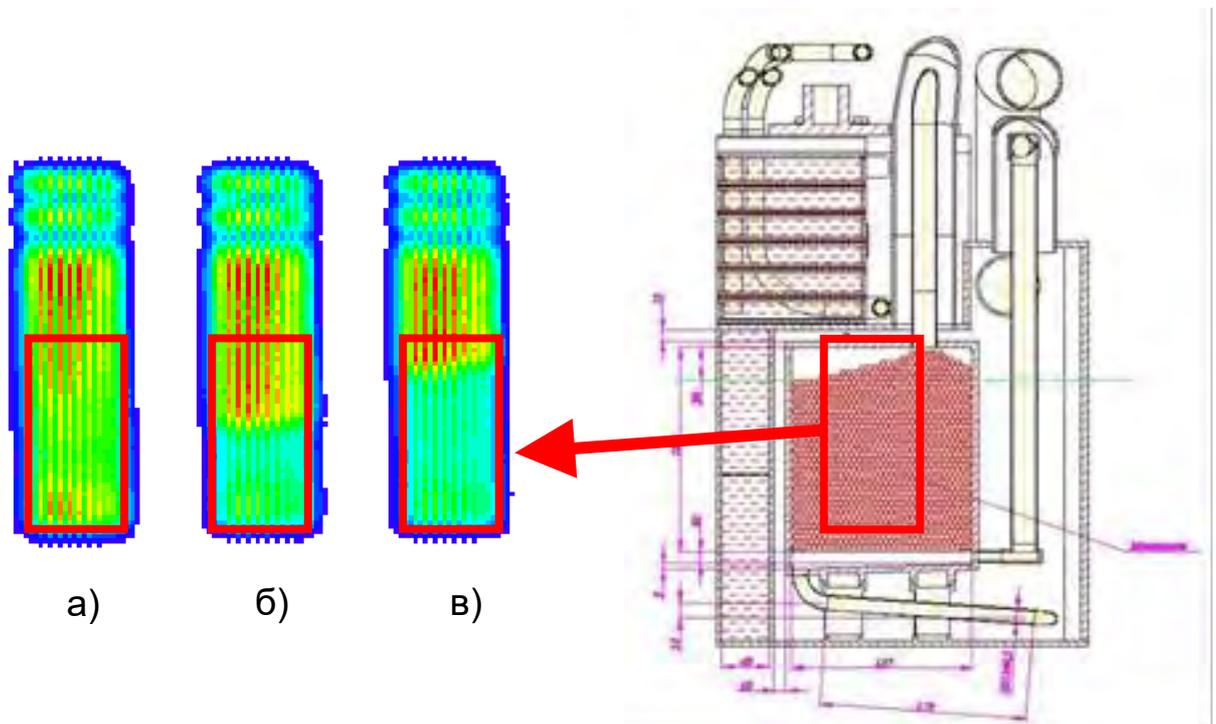


Рис. 111. 2-х мерные изображения на ПЧД камеры холодного замедлителя при разном уровне наполнения: а) пустая камера, б) заполнение камеры шариками на две трети, в) полностью заполненная камера. Изображения содержат нейтроны с длиной волны $= 0,7\text{\AA}$ и выше. Видимая область отмечена прямоугольником.

Построим полученные на детекторе 8-го канала (спектрометр РЕМУР) по времяпролетной методике спектры нейтронов из области в центре полностью заполненного холодного замедлителя при температурах 100 К и 30 К вместе со спектрами из той же области, не заполненной камеры холодного замедлителя (предзамедлитель) (рисунок 112) [168]. Полученные спектры нейтронов показывают возможность работы холодного замедлителя на основе смеси мезитилена и м-ксилола в широком диапазоне температур. Поэтому при его эксплуатации имеется возможность выбирать температурный режим/спектр нейтронов под задачи исследований на спектрометрах.

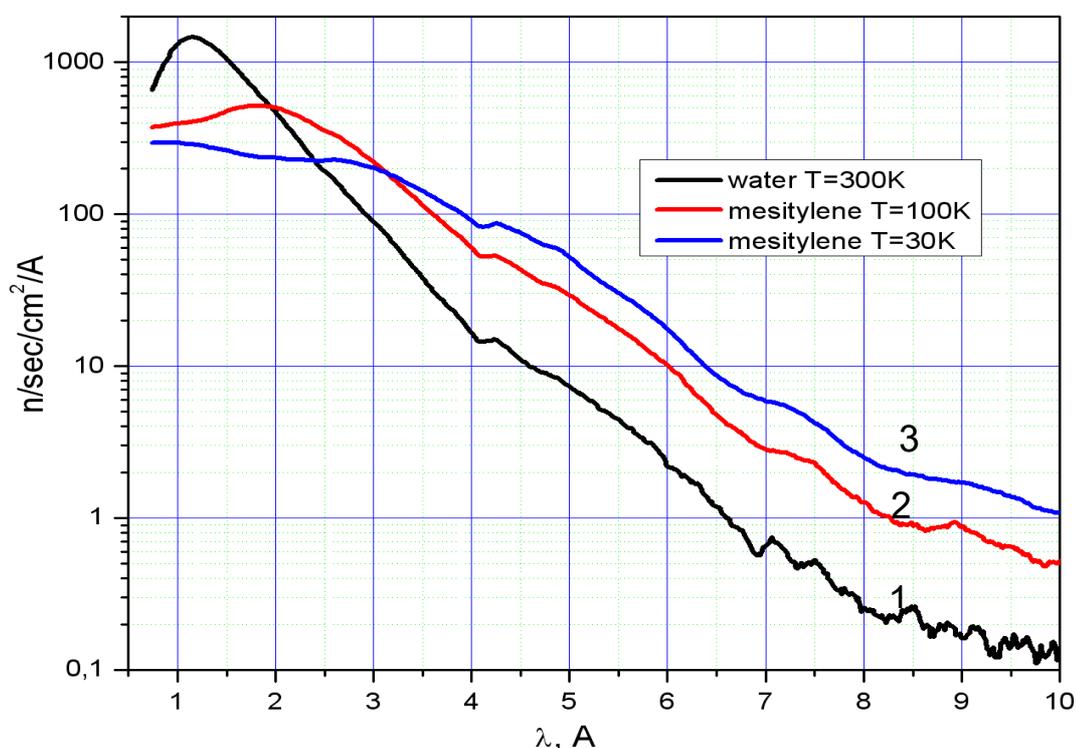


Рис. 112. Спектры нейтронов, полученные с выделенной области изображения холодного замедлителя: 1- при пустой камере, 2 - при загрузке шариками при температуре 100 К и 3 - при полностью загруженной камере при температуре 30 К.

Если разделить спектр нейтронов от заполненного холодного замедлителя при 30 К на спектр нейтронов от предзамедлителя, получим

коэффициент выигрыша в холодных нейтронах, начиная с длины волны нейтронов $2,2 \text{ \AA}$ (рисунок 113) [166, 168], который достигает 13 для длин волн $8 - 10 \text{ \AA}$. В отдельных измерениях его величина доходила до 14.

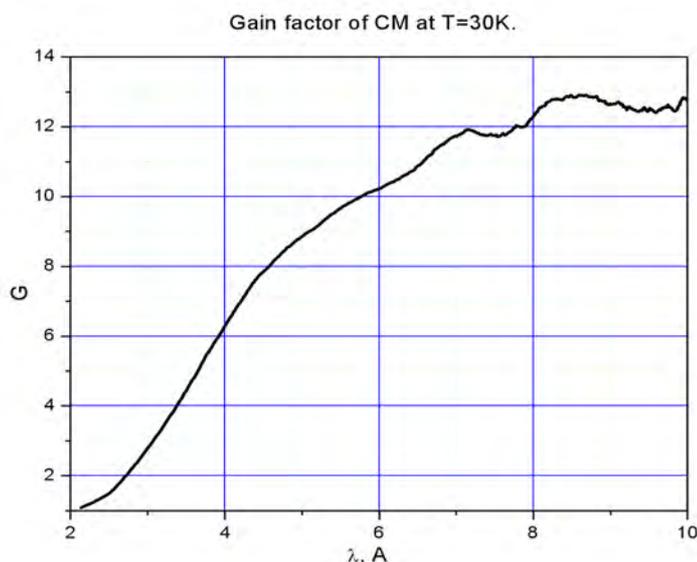


Рис. 113. Величина коэффициента выигрыша в потоке холодных нейтронов при использовании холодного замедлителя при температуре 30К.

4.1.7. Анализ смеси после работы холодного замедлителя.

Технологическая система холодного замедлителя (рисунок 94) построена таким образом, что позволяет отбирать для анализа пробы, слитые из холодного замедлителя после работы. Несколько проб, взятых после непрерывных периодов работы холодного замедлителя от ~8 до 10 суток на мощности реактора ИБР-2М 2МВт, представлены на рисунке 114.



Рис. 114. Изменение цвета слитой смеси мезитилена и м-ксилола после работы холодного замедлителя на ИЯУ ИБР-2 (слева направо: чистая смесь из которой производятся шарики, смесь с нафталином после 7,8 суток облучения шариков, чистая смесь после облучения шариков 8,5 суток, чистая смесь после облучения шариков 9,5 суток, чистая смесь после облучения шариков 10 суток)

Визуально можно наблюдать изменение цвета, который становится темнее при увеличении времени облучения шариков. Помимо этого, слитые смеси становились более плотными и вязкими. Данный фактор мог внести изменения в работу замедлителя из-за возможной закупорки сливной трубки, если вязкость возрастет до величины, когда смесь не сможет сливаться. Измерения вязкости, проведенные с помощью капиллярного вискозиметра, работающего на основе стандартного метода ASTM D 445, показали увеличение вязкости смеси после работы холодного замедлителя в течение 10,4 суток до 23 раз. При этом вся смесь вылилась из замедлителя. Это говорит о том, что возможна непрерывная работа холодного замедлителя в течение не менее 10,4 суток, т.е. срок, фактически составляющий принятый при работе на тепловых замедлителях полный реакторный цикл ИЯУ ИБР-2 (11 суток).

В интервале времени работы холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2 до 500 МВт-часов (100 МВт-часов соответствует дозе 30,6 МГр) значение

относительной величины вязкости от дозы $\nu_{\text{отн}} = \nu / \nu_{\text{необлуч}}$ (рисунок 115) можно достаточно хорошо аппроксимировать экспонентой:

$$\nu_{\text{отн}} = 0,546 + 0,454 \exp(W/133),$$

где W - время облучения шариков в МВт-часах.

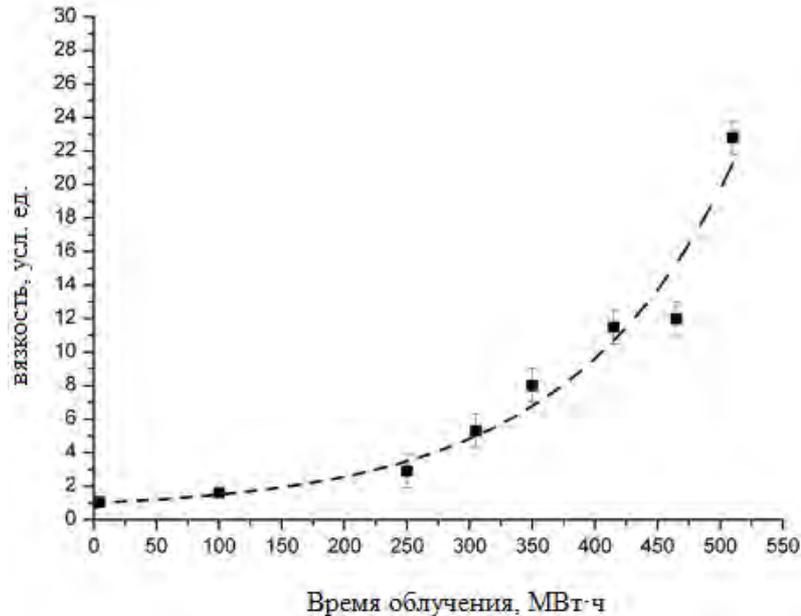


Рис. 115. Изменение вязкости жидкой смеси в зависимости от времени облучения шариков в холодном замедлителе.

Увеличение плотности и вязкости облученной смеси объясняется накоплением плотного и вязкого вещества – сопряженных структур, среди которых, вероятно, преобладают олигомеры небольшой длины. Исследования облученной смеси на установке малоуглового рассеяния нейтронов не выявило наличия длинных молекул (кластеров) с размерами до 500 нм. Образование высокомолекулярных смолообразных продуктов, вероятно, в значительной мере связано с пострадиационными процессами, протекающими в присутствии воздуха после отбора пробы. Проведенный анализ частот колебательного состояния и соответствующий Рамановский сдвиг в облученной смеси показал наибольшие изменения после облучения в увеличении амплитуды пика и его уширении для диапазона частот

химической связи $1600-1680\text{ cm}^{-1}$, что соответствует росту количества двойных связей $\text{C}=\text{C}$ в смеси (рисунок 116) [183].

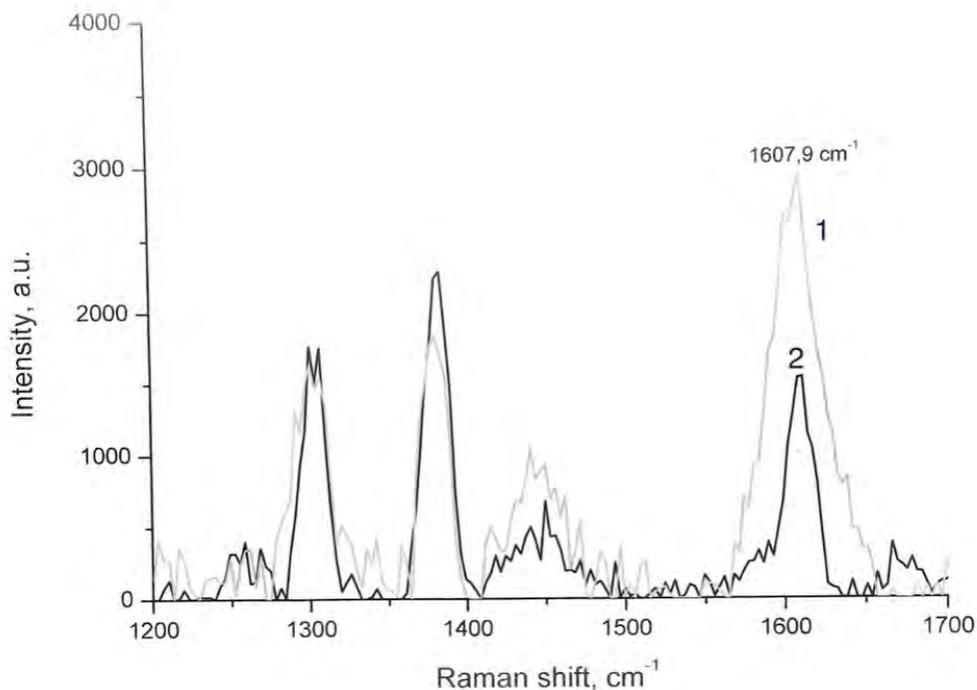


Рис. 116. Рамановский спектр частот смеси мезитилена с м-ксилолом до облучения (2) и после облучения в холодном замедлителе нейтронов ИЯУ ИБР-2 в течение реакторного цикла 6,7 суток (1).

Следует отметить, что после облучения и слива смеси, даже если часть вязких продуктов останется на внутренних стенках камеры холодного замедлителя и в сливной трубке, они могут быть удалены посредством растворения.

Для изучения возможности удаления осмолившихся продуктов, образовавшихся в результате длительного облучения рабочей смеси группой радиационных химиков из МГУ была изучена растворимость образца смеси после облучения в ряде растворителей. Было установлено, что образец не растворяется в гексане, гептане, петролейном эфире и в этаноле.

Растворимость образца в других, широко используемых растворителях, приведена в Таблице 14 [184].

Таблица 14. Растворимость образца .

Растворитель	Растворимость образца, % масс.	Растворимость Образца, г/(1 мл растворителя)
бензол	31,30	0,2750
толуол	21,62	0,1875
хлороформ	14,61	0,2166
1,2-дихлорэтан	18,15	0,2274
пропилацетат	67,09	0,5930
ацетон	19,86	0,1569
четырёххлористый углерод	5,07	0,0810

Таким образом, наиболее подходящим растворителем осмолившихся продуктов после работы холодного замедлителя является пропилацетат. Его применение после работы холодного замедлителя не выявило значительного количества остающихся в замедлителе продуктов радиолиза.

4.1.8. О деградации спектра нейтронов.

Одним из факторов, потенциально ограничивающих непрерывную работу твердотельного холодного замедлителя без перезагрузки шариков, является декомпозиция материала под действием излучения. В результате этого должно наблюдаться изменение спектра нейтронов с уменьшением выхода холодных нейтронов (деградация холодного спектра). Данная

величина была измерена для холодного замедлителя после его работы в течение 7 суток. Для этого в одном из циклов реактора были проведены специальные измерения спектров нейтронов в начале и в конце реакторного цикла (рисунок 117).

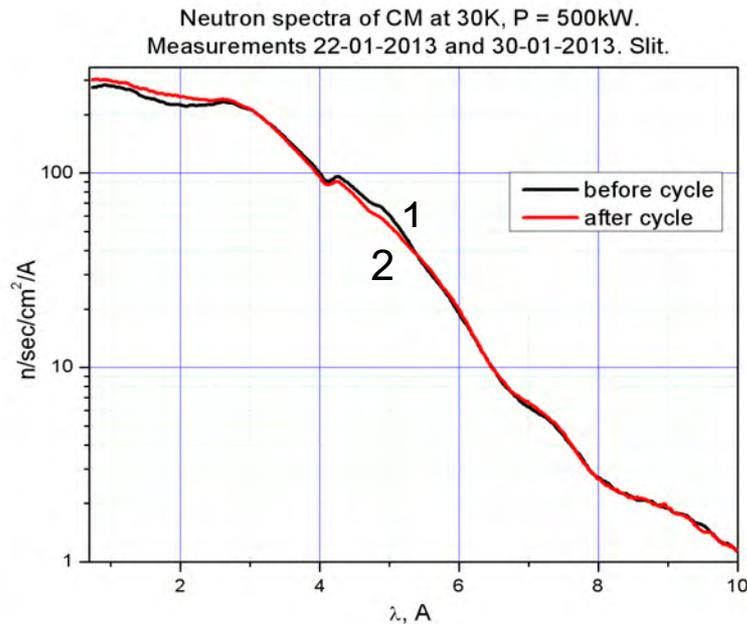


Рис. 117. Спектры нейтронов холодного замедлителя в начале цикла реактора (1) и в конце 7 суток его работы (2).

Если взять отношение двух полученных спектров, то можно построить график с изменениями, которые произошли со спектром нейтронов в конце 7-суточной работы холодного замедлителя (рисунок 118).

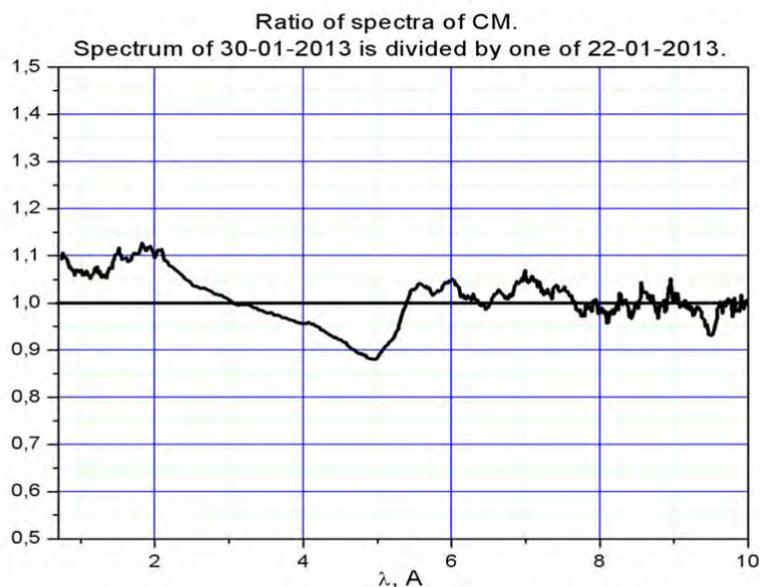


Рис. 118. Отношение спектральной плотности потока нейтронов в конце цикла к плотности потока в начале цикла. Результаты получены на спектрометре РЕМУР на 8-м пучке реактора ИБР-2М (по оси абсцисс - длина волны нейтрона в ангстремах, по оси ординат – отношение потока нейтронов с длиной волны λ в начале цикла к потоку нейтронов в конце цикла).

Как можно видеть из полученного графика, значительных изменений спектра не происходит. Особенно это касается длинноволновой части спектра (больше 6 \AA), для которой зарегистрировано снижение потока не более, чем на $\pm 7 \%$ при погрешности измерений $\pm 4\%$. Небольшие изменения происходят для нейтронов в диапазоне длин волн до 5 \AA , где количество нейтронов от 3 до $5,5 \text{ \AA}$ уменьшается на величину чуть более 10% , а в диапазоне длин волн до 3 \AA количество нейтронов в спектре увеличивается примерно на такую же величину.

Отсутствие значительных изменений в спектре нейтронов под облучением объясняется радиационной стойкостью молекул ароматических углеводородов и относительно слабым выходом водорода из смеси при низких температурах.

4.2. Анализ результатов пуска комбинированного замедлителя нейтронов ИЯУ ИБР-2.

Начало работы комбинированного замедлителя нейтронов с холодным шариковым замедлителем в его составе [185-189] на модернизированной исследовательской ядерной установке ИБР-2 обеспечило необходимые спектры нейтронов для шести действующих исследовательских установок: СКАТ, ЭПСИЛОН, НЕРА, РЕМУР, ГРЕЙНС, ФСД, расположенных на 7, 8, 10 и 11 каналах.

Данные, полученные во время исследований холодного замедлителя на ИЯУ ИБР-2, подтверждают проектные ожидания и позволяют сравнить его характеристики при мощности реактора 2 МВт с импульсным источником SNS (Оак-Ридж, США) (Таблица 15) [168, 185, 190 - 192].

Таблица 15. Сравнения потоков холодных нейтронов на ИБР-2 и SNS

	ИБР-2	SNS [190, 191]
Поток холодных нейтронов ($\lambda > 4 \text{ \AA}$) с поверхности замедлителя (2π -эквивалент), н/сек	$\sim 3 \cdot 10^{14} *$	$4,2 \cdot 10^{14}$
Плотность потока холодных нейтронов с поверхности холодного замедлителя, н/см ² /сек	$\sim 1 \cdot 10^{12} *$	$4,6 \cdot 10^{12}$
Флюенс холодных нейтронов за один импульс, н/100 см ²	$\sim 2 \cdot 10^{13} **$	$\sim 0,75 \cdot 10^{13}$

(*) Значение потока и плотности потока холодных нейтронов (2π -эквивалент) на холодном замедлителе является оценкой, основанной на измерениях плотности потока тепловых нейтронов на реакторе ИБР-2 [192] и измерениях спектра нейтронов утечки из холодного шарикового замедлителя на выведенном пучке.

**)- частота импульсов мощности ИБР- 2 в 12 раз ниже, чем в SNS.)

С началом работы комбинированного замедлителя, на установках СКАТ, ЭПСИЛОН, НЕРА, РЕМУР появилась возможность одновременно работать как с тепловыми, так и с холодными нейтронами. В частности, результаты измерений спектров нейтронов на установке НЕРА представлены на рисунках 119, 120 [193].

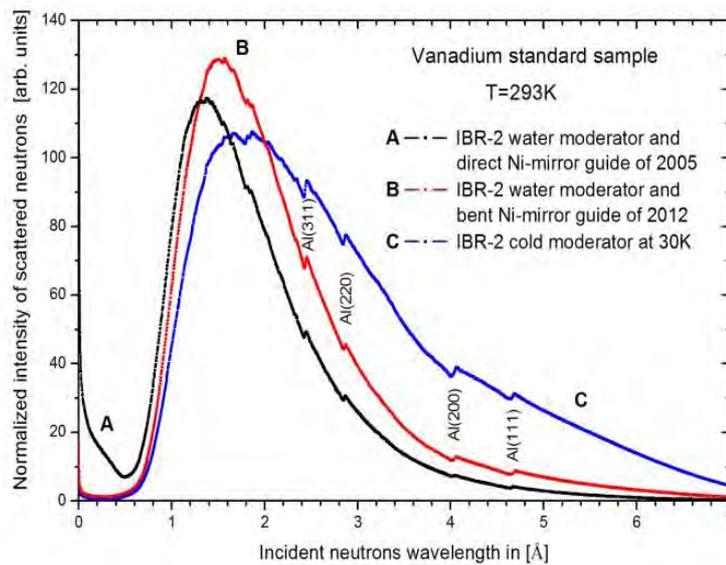


Рис. 119. Спектры нейтронов до и после модернизации реактора ИБР-2 с комбинированным замедлителем и нейтроноводом 7b канала, приведенные к средней мощности реактора.

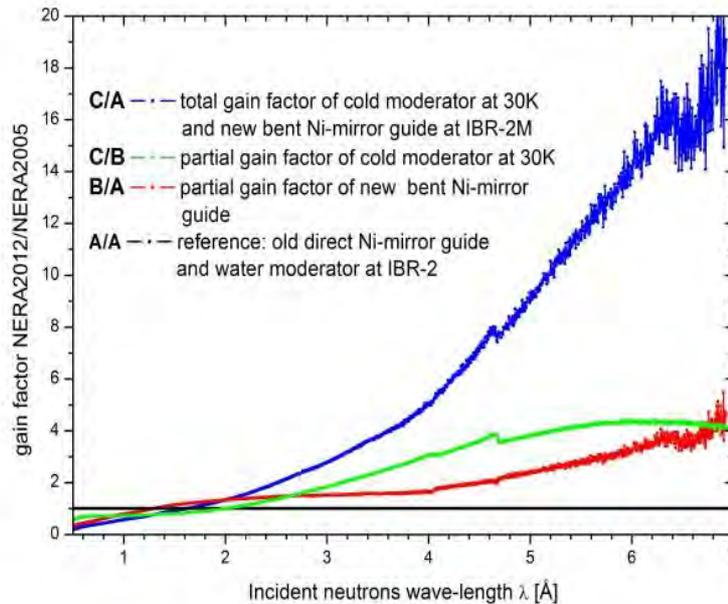


Рис. 120. Коэффициенты усиления в сравнении падающих нейтронов до модернизации и после модернизации реактора ИБР-2 с комбинированным замедлителем и нейтроноводом 7b канала спектрометра НЕРА.

Коэффициент усиления на спектрометре НЕРА (до модернизации/после модернизации с комбинированным замедлителем) для упругого рассеяния в диапазоне длин волн $1,5 \text{ \AA} < \lambda < 7 \text{ \AA}$ увеличился до 20 раз. Это обеспечивает гораздо лучшие условия для измерения спектров нейтронов порошковой дифракции (NPD) и квазиупругого нейтронного рассеяния (QENS) в режиме высокого разрешения [193].

Измеренный на рефлектометре РЕМУР [181], коэффициент усиления в диапазоне длин волн холодных нейтронов представлен ранее (рисунки 121, 122). Положительный эффект от использования комбинированного замедлителя в экспериментах с поляризованными нейтронами на РЕМУРе, наблюдался, в частности, в методе пространственного расщепления пучка поляризованных нейтронов. Увеличение количества холодных нейтронов, вместе с тепловыми нейтронами, позволило значительно сократить время на эксперимент и дать более четкую информацию при проведении

одновременной регистрации двух пучков "++" и "+-" при рефрактометрии рассеяния поляризованных нейтронов на магнитно-неколлинеарной пленке (Gd(5нм)/Fe(100нм)//стекло-подложка), находящейся во внешнем магнитном поле (рисунок 121) [194].

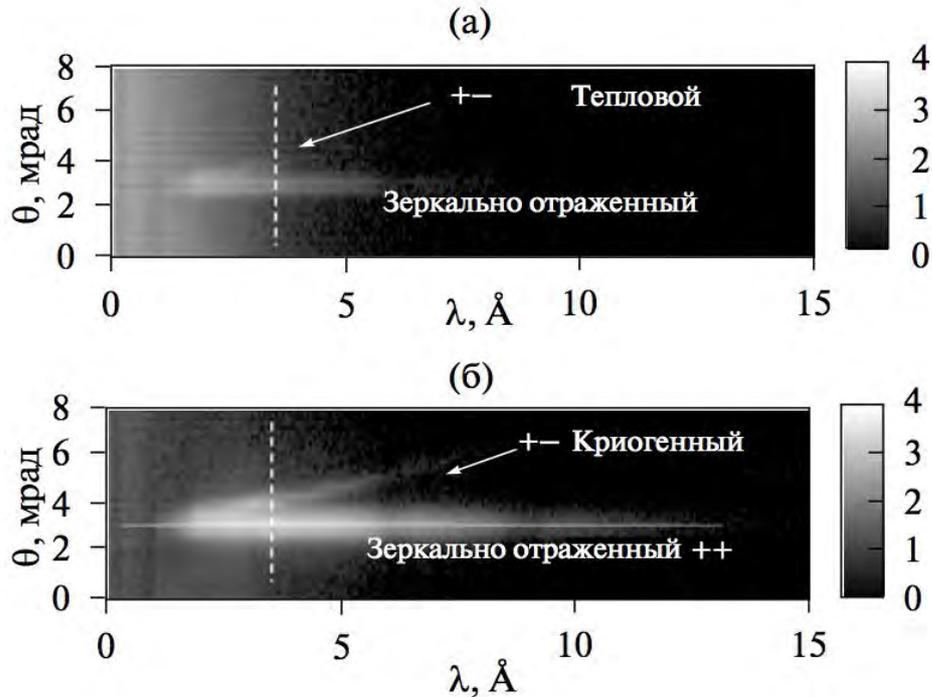


Рис. 121. Двумерное распределение интенсивности отражённых нейтронов в зависимости от длины волны нейтронов и угла скольжения рассеянного пучка: (а) при работе только теплового замедлителя, (б) при работе холодного замедлителя. Вертикальная штриховая линия проведена по длине волны нейтронов 3,40 А, при которой сравниваются результаты теплового и холодного замедлителей.

Для дифрактометра ФСД, как и планировалось, сохранился тепловой спектр нейтронов. В связи с некоторыми конструктивными изменениями в комбинированном замедлителе по сравнению с первоначальными расчетами, небольшая часть холодных нейтронов также добавляется в спектр на ФСД.

Новый рефлектометр ГРЕИНС, на котором исследуются образцы с отражением в вертикальной плоскости, получил возможность работать с холодными нейтронами (рисунки 122, 123) [195, 196].

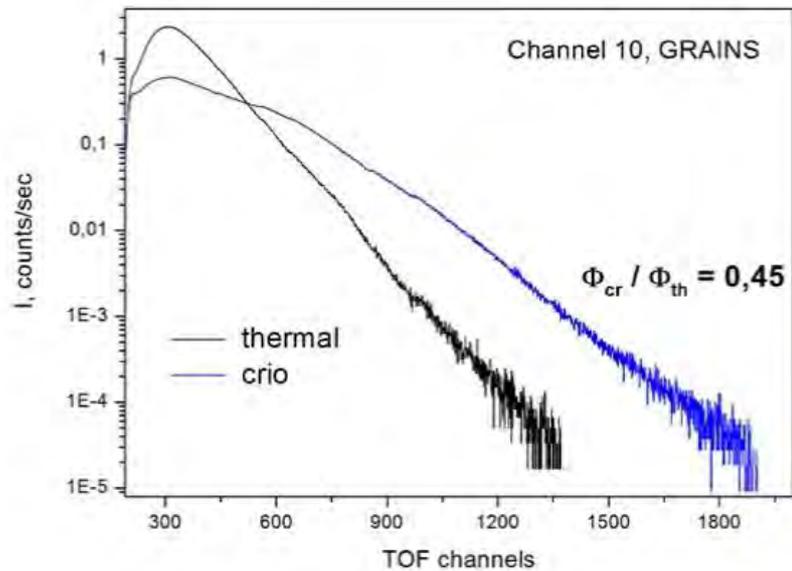


Рис. 122. Спектры нейтронов рефлектометра ГРЕЙНС при работе холодного замедлителя и без холодного замедлителя [195].

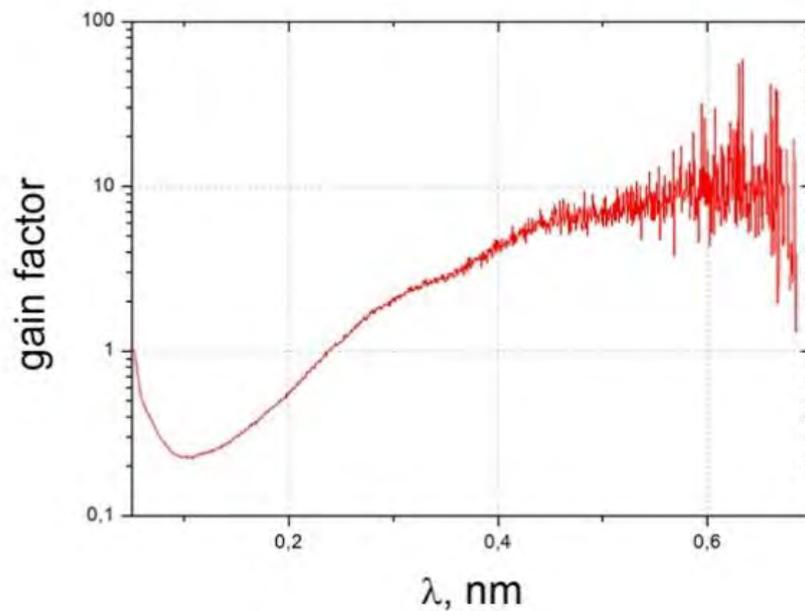


Рис. 123. Коэффициент усиления потока холодных нейтронов для спектрометра ГРЕЙНС при работе холодного замедлителя по отношению к водяному замедлителю [195].

Расширение диапазона длин волн нейтронов, доступных для проведения экспериментов на ГРЕЙНС, позволяет расширить диапазон передачи

импульсов. Это означает, что эксперимент может выполняться за один запуск без изменения угла рассеяния. Холодные нейтроны позволяют увеличить угол между поверхностью образца и падающим пучком, что приводит к улучшению соотношения сигнал/шум.

Кривые отражения на стандартных системах при работе теплового и холодного замедлителей показали положительный эффект от работы холодного замедлителя (рисунок 124 а,б) [196].

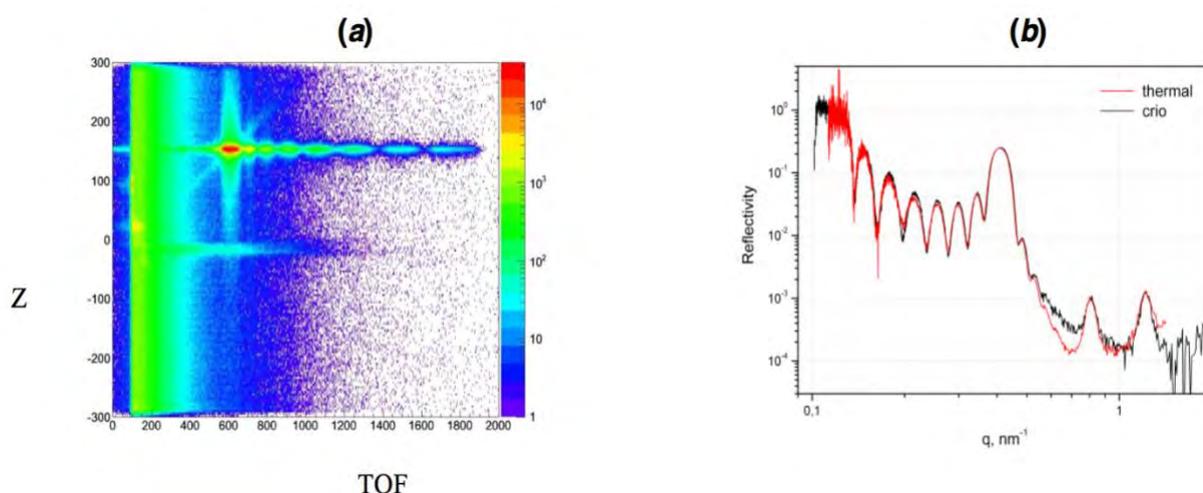


Рис. 124. (а) 2D-спектр отраженного пучка неполяризованных нейтронов на слоистой структуре $[\text{Ni}(8.4\text{nm})\text{Ti}(7\text{nm})] \times 8/\text{Floatglass}$ (производитель MIRROTRON, Венгрия), полученный на рефлектометре ГРЕЙНС при холодном режиме работы замедлителя в координатах Z (ширина канала 0,35 мм) – TOF время пролета (ширина канала 32 мкс). (б) Коэффициент зеркального отражения как функция переданного импульса для той же системы, измеренный в тепловом (thermal) и холодном (crio) замедлителях.

Выводы по главе 4.

1. Разработан комбинированный замедлитель нейтронов ИЯУ ИБР-2 для обеспечения эффективной работы шести действующих спектрометров на 7, 8, 10 и 11 пучках.

2. Разработан и запущен первый в мире шариковый холодный замедлитель на основе смеси ароматических углеводородов мезитилена и м-ксилола с аппаратно-программным обеспечением для контроля и управления основными параметрами. Апробирована система контроля движения шариков по разности дифференциальных давлений. При пуске и последующей эксплуатации шарикового холодного замедлителя в течение более 2500 часов все системы показали безотказную работу.
3. Разработана и апробирована система загрузки шариков в количестве ~25000 штук в холодный замедлитель объемом 1 л потоком холодного гелия по сложному пневмотранспорту. Измерены спектры нейтронов и получен коэффициент усиления в потоке холодных нейтронов, который достигает 13 для длинноволновой части спектра. Апробирована методика измерения уровня загрузки шариков посредством регистрации двухкоординатной картины на позиционно-чувствительном детекторе нейтронов.
4. Измерены температурные характеристики холодного замедлителя, которые показали среднюю температуру замедлителя ~30 К.
5. Проанализирована деградация спектра нейтронов при непрерывной работе холодного замедлителя до 8 суток. Результат показал незначительные изменения в диапазоне длин волн холодных нейтронов, которые составили менее 4 %.
6. Доказана возможность работы холодного замедлителя на ИЯУ ИБР-2 при мощности 2 МВт непрерывно в течение не менее 10 суток без замены шариков из смеси мезитилена и м-ксилола в камере замедлителя. Измерены вязкости проб смесей мезитилена и м-ксилола из холодного замедлителя, отработавшего разное время. Результат показал увеличение вязкости более чем в 20 раз при работе замедлителя более 10 суток, что не критично для работы холодного замедлителя.

7. Спектры нейтронов на выведенных пучках, полученные после запуска комбинированного замедлителя исследовательской ядерной установки на ИЯУ ИБР-2, соответствуют требованиям экспериментаторов. Комбинированный замедлитель расширил возможности проведения экспериментов на шести спектрометрах ИЯУ ИБР-2 (половине от находящихся в эксплуатации установок). Продемонстрирована возможность работы со смешанным спектром на спектрометрах, что дает положительный эффект при проведении измерений. Наличие холодного спектра, например, значительно улучшает характеристики рефлектометра ГРЕИНС.
8. Запуск комбинированного замедлителя с холодным замедлителем в его составе ставит ИЯУ ИБР-2 по некоторым характеристикам в один ряд с современными импульсными источниками нейтронов в мире.

Заключение

Резюмируя вышеизложенное, выделим основные результаты выполненных в работе исследований и сделанные на их основе выводы.

1. Разработано новое направление в создании холодных замедлителей нейтронов на основе твердых дисперсных водородсодержащих материалов для высокоинтенсивных источников нейтронов.
2. Детально исследованы замедляющая способность, радиационные эффекты, возможность работать в широком диапазоне температур твердых водородсодержащих материалов для холодных замедлителей при низких температурах (метана, льда, гидрата метана, мезитилена и его смеси с м-ксилолом) на разработанных и созданных облучательных установках УРАМ-2, 3 и 3М на реакторе ИБР-2 (ЛНФ ОИЯИ) и микротроне МТ-25 (ЛЯР ОИЯИ) и в экспериментах на установке JESSICA (FZ Juelich, Germany) и ДИН-2ПИ (ЛНФ ОИЯИ).
3. Установлено, что в смеси мезитилена и м-ксилола спонтанной реакции рекомбинаций радикалов не наблюдается, а скорость накопления энергии от поглощенной дозы наименьшая из всех исследованных материалов. Определено, что давление на стенки облучательных камер за счет накопленного радиолитического водорода в метане и в мезитилене достигает величины 2,7 МПа.
4. Разработан способ дисперсной загрузки смеси мезитилена и м-ксилола в виде шариков (диаметром 3,5 - 3,9 мм) в камеру холодного замедлителя при низких температурах потоком холодного газообразного гелия. На созданном полномасштабном экспериментальном стенде холодного замедлителя, повторяющем сложный транспортный путь через биологическую защиту ИЯУ ИБР-2, апробирован и детально исследован способ дисперсной загрузки большого количества шариков (~ 25000 штук). Созданы технологическая системы и системы контроля основных параметров холодного замедлителя ИЯУ ИБР-2.

5. Разработан и создан первый в мире холодный замедлитель на основе дисперсной не взрывоопасной смеси мезитилена и м-ксилола с контрольно-измерительным оборудованием и программным обеспечением. Экспериментально показано, что холодный замедлитель:
- увеличивает поток холодных нейтронов до 13 раз;
 - может непрерывно работать на ИЯУ ИБР-2 при мощности 2 МВт без замены материала до 10 суток;
 - может работать в широком диапазоне температур от 30 до 150 К.
6. Разработан метод получения медленных нейтронов в широком диапазоне длин волн для высокопоточных источников нейтронов с мультидисциплинарным набором экспериментальных установок, предназначенных для изучения конденсированных сред на выведенных пучках. Апробация метода проведена на исследовательской ядерной установке ИБР-2 для 7, 8, 10 и 11 пучков, а именно: разработана конфигурация, сделано детальное численное моделирование, создан и внедрен комбинированный замедлитель нейтронов с холодным твердодисперсным замедлителем в его составе. Применение комбинированного замедлителя расширило возможности проведения экспериментов на шести спектрометрах ИЯУ ИБР-2, размещенных на указанных пучках, и повысило эффективность исследований с холодным и смешанным (холодным и тепловым) спектром нейтронов.

При разработке и создании холодных замедлителей для центрального направления и направления 2-го канала ИЯУ ИБР-2, рекомендуется использовать разработанный и описанный в данной работе способ загрузки и охлаждения материала (смеси мезитилена и м-ксилола), как и для холодного замедлителя направления 7, 8, 10 и 11 каналов ИЯУ ИБР-2. Для замедлителя направления второго канала ИЯУ ИБР-2 следует использовать холодный дисперсный замедлитель гребенчатой формы с вертикальными гребнями,

который даст дополнительное увеличение выхода холодных нейтронов для спектрометра ДИН-2ПИ, расположенного на данном пучке, более чем в 2 раза по сравнению с плоским холодным замедлителем. Для центрального направления рекомендуется использовать плоский дисперсный холодный замедлитель.

Дальнейшее развитие темы возможно в направлении разработки и создания холодного дисперсного замедлителя на основе твердого метана с постоянной циркуляцией материала через камеру замедлителя без его расплавления в камере. Это позволит избежать негативных радиационных эффектов и повысит выход холодных нейтронов.

В заключение автор выражает благодарность коллегам, при участии которых проводились расчеты, создавались приборы, проводились эксперименты на ИБР-2 и анализировались их результаты: Е.П. Шабалину, В.Д. Ананьеву, Н.П. Анцупову, М.В. Булавину, А.А. Белякову, А.Е. Верхоглядову, А.В. Долгих, Л.В. Едунову, В.Г. Ермилову, А.Н. Кустову, Е.Н. Кулагину, К.А. Мухину, И. Натканцу, А.Г. Новикову, А.П. Сиротину, А.П. Петренко, Т.Б. Петуховой, А.Н. Федорову, А.Н. Черникову, Д.Е. Шабалину, В. К. Широкову;

Благодарит за содействие в работе и помощь при создании и эксплуатации экспериментальных установок руководителей ЛНФ и сотрудников Лаборатории из подразделений: Реактор ИБР-2, МТО, ЭМ, ЭТО, НЭОНИКС, НЭОКС ИБР-2, КБ, ОНИРКС, сектора РС, предприятий НПО «НИКИЭТ», НПО «АТОМ», НПО «ГЕЛИЙМАШ», а также сотрудников ЛЯР, отвечающих за работу микротрона МТ-25 и сотрудников ЛФВЭ за помощь в работах с криогенной техникой.

Автор выражает признательность докторам физико-математических наук Франку Голденбауму и Детлафу Филгесу, кандидату физико-математических наук Каю Ньюенингову за предоставленную возможность участвовать в работах по проекту JESSICA, а также проводить расчетные работы по

проекту создания комплекса замедлителей ИЯУ ИБР-2 в Форшунгцентре Юлиха.

Автор также считает своим приятным долгом поблагодарить профессоров И. Киянаги и Р. Гранадю, а также всю международную коллаборацию АСоМ за полезные дискуссии по вопросам, связанными с замедлителями нейтронов.

Литература

1. В.Л. Аксенов. А.М. Балагуров; Времяпролетная нейтронная дифрактометрия. Успехи физических наук. т.166, №9, стр. 955-985, 1996
2. В.Л. Аксенов; Нейтронная физика на пороге XXI века. Физика элементарных частиц и атомного ядра, т. 31, вып. 6, 2000
3. V.F. Sears, Neutron slowing down and thermalization, International workshop on cold neutron sources, LANSCE, USA, pp. 157-177, 1990
4. K. Inoue, N. Otomo, H. Iwasa, Y.Kiyanagi ; Slow Neutron Spectra in Cold Moderators. Journal of Nuclear Science and Technology, 11(5), p. 228 - 229, 1974
5. S. Kulikov, E. Shabalin; New Complex of Moderators for Condensed Matter Research at the IBR-2M Reactor, Romanian Journal of Physics, ISSN:1221-146X , 54, 3-4, 361-367, 2009
6. T. Schönfeldt, K. Batkov, E.B. Klinkby, B. Lauritzen, F. Mezei et al.; Broad spectrum moderators and advanced reflector filters using 208Pb. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 769, 1–4, 2015
7. URL: //http://www.mlz-garching.de/kws-2. Электронный ресурс со свободным доступом.
8. M. Loewenhaupt, N. M. Pyka; The ultrahigh flux polarized cold neutron spectrometer PANDA of the FRM-II reactor. Journal of applied physics. V. 85, N 8, doi: 10.1063/1.369105, 1999
9. M.V. Avdeev, V.I. Bodnarchuk, M.V. Avdeev, V.I. Bodnarchuk, V.V. Lauter-Pasyuk, H. Lauter, V.L. Aksenov, S.P. Yaradaikin, V.A. Ulyanov, V.A. Trounov, S.I. Kalinin; Project of the new multifunctional reflectometer GRAINS with horizontal sample plane at the IBR-2M pulsed reactor in Dubna, J. Phys.: Conf. Ser. 251, 012060, 2010
10. URL: <http://www.ill.eu/instruments-support/instruments-groups/instruments/in6>. Электронный ресурс со свободным доступом.

11. R.I. Bewley, J.W. Taylor, S.M. Bennington; LET, a cold neutron multi-disk chopper spectrometer at ISIS. Nuclear Instruments and Methods A, 637, pp. 128-134, 2011
12. URL: http://j-parc.jp/researcher/MatLife/en/instrumentation/ns_spec.html.
Электронный ресурс со свободным доступом.
13. D. Yu, R. Mole, T. Noakes, Sh. Kennedy, R. Robinson; Pelican – a Time of Flight Cold Neutron Polarization Analysis Spectrometer at OPAL. J. Phys. Soc. Jpn. 82, SA027, 2013
14. URL: <http://www.psi.ch/sinq/tasp/tasp>. Электронный ресурс со свободным доступом.
15. URL: <https://neutrons.ornl.gov/cncs> . Электронный ресурс со свободным доступом.
16. J R Moon and T D Beynon; Thermal neutron transport near a moderator discontinuity using the method of weighted residuals. J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 6, pp. 427-448, 1973
17. C.J. Carlile, J. Penfold; The virtue of cold neutrons on pulsed sources. Neutron news, V.6, issue 2, pp.5-13
18. R. Schatzler, M. Monkenbusch; Use of cold neutrons for condensed matter research at the neutron guide laboratory ELLA in Juelich/
[URL://http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/ Public/32/030/32030467.pdf](http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/Public/32/030/32030467.pdf). Электронный ресурс со свободным доступом.
19. А.М. Балагуров, А.И. Бескровный, Г.М. Миронова, А.В. Поле, В.Г. Симкин; Дифракционные исследования на реакторе ИБР-2 с использованием холодного источника нейтронов. Сообщением ОИЯИ, P3-2000-220, 2000
20. E.H. Lehmann, A. Kaestner, L. Josic, S. Hartmann, D. Mannes; Imaging with cold neutrons. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 651, pp. 161–165, 2011

21. M. G. Zemlyanov, S.P. Mironov, V. P. Stepanov, G. F. Ssyrykh and N.A. Chernoplekov; Cryogenic propane source of cold neutrons. Nuclear Instruments and methods, 136, pp. 425-431, 1976
22. V.V. Goncharov; Review of work on research reactors and application in the USSR. Translated from Atomnaya Energiya, Vol. 17, No. 4, pp. 258-69, October, 1964
23. B. Jacrot, A. Lacaze, L. Weil; Liquid Hydrogen Cell of the Pile EL3 of Saclay. Proceedings of the 10th International congress of refrigeration Copenhagen 1959, Volume 1, Pergamon Press LTD., London, 1960
24. URL: <http://www.bnc.hu/?q=node/6>. Электронный ресурс со свободным доступом.
25. L. Rosta; Cold neutron research facility at BNC. Applied Physics A 74, pp.S52-S54, 2002
26. E. Tunkelo and A. Palmgren; The cold neutron facility at the FIR 1. Nuclear Instruments and Methods, 46, pp. 266-274, 1966
27. T. Kawai M. Utsuro, Y. Maeda, Tebisawa, T. Akiyoshi, H. Yamaoka and S. Okamoto; Self-regulating characteristics of a cold neutron source with a closed-thermosiphon. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 276, pp. 408-412, 1989
28. B. Rothrock, M. Farrar; Modernization of the high flux isotope reactor (HFIR) to provide a cold neutron source and experimentation facility. IAEA-TECDOC-1625, pp. 179-202, Research reactor modernization and refurbishment. Vienna, ISBN 978-92-0-109609-8, 2009
29. F. Davies, A.L. Rodgers and M.C.J. Todd et al.; The design and performance of the Herald cold source. Proceeding of The forth IAEA symposium on neutron inelastic scattering, V. II, pp. 341-348, 1968
30. V. Dimic, J. Petkovsek; Cold neutron source efficiency in a tangential beam hole. Nuclear instruments and Methods, 96, pp. 285-288, 1971

31. F.Zerdin, Z.Gabrovšeky, T.Kline, H.Solinc; Meritve fluksa termičnih in hitrih nevtronov v reaktorju TRIGA II. Jugoslavenki simpozijum iz reaktorske fizike, Hrečegnovi, , pp. 1-12, 1966
32. P. Ageron, Cold Neutron Sources at ILL. Nuclear Instruments and Methods A284, pp. 197-199, 1989
33. P. Ageron and W. Mampe. Cold and ultra cold neutron beams for fundamental physics research at the Institute Laue-Langevin. Proc: The Investigation of Fundamental Interactions with Cold Neutrons Workshop, NBS Special Publication 711, pp.16-24, 1986
34. B.Lebech; L P Soenderberg; Neutron scattering facilities at the research reactor DR3. 1989; 20 p; ISBN 87-550-1560-3; Available on loan from Risoe Library, DK-4000 Roskilde. INIS ref. Ref. Number 21036906, Volume 21, Issue 09, Publ. Year 1989
35. K. Stendal; Design and operation experience with cold moderators at GKSS, HMI, RISO. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp. 305-315, 1997
36. M. Tovar, T. Robertson, R. Michaelsen (edit.); Neutron-Scattering Instrumentation at the Research Reactor BER II. 43p., ISSN 0440-0836, HMI-B-577, 2001
37. G. Gastagno, M.Coppo, et al.; A cold-neutron spectrometer for inelastic-scattering studies. Nuclear Instruments and Methods, 114, pp. 21-27, 1974
38. C.P. Galotto, P. Pizzi, H. Walther; A cold neutron small angle scattering device for technological applications. Nuclear Instruments and Methods, 134, pp. 369-378, 1976
39. URL: <http://www.ife.no/en/ife/departments/physics/sections/neutronlab>.
Электронный ресурс со свободным доступом.
40. R.P. Crease; Making Physics: A Biography of Brookhaven National Laboratory, 1946-1972. The University Chicago Press, pp 345-346, ISBN 0-226-12017-1, 1999

41. J.M. Rowe; Existing Cold Sources at U.S. Reactors. Proceedings International Workshop on Cold Neutron Sources, Los Alamos, New Mexico USA, pp 121-129, 1990
42. P. Breant; The ORPHEE Reactor current status and proposed enhancement of experimental capabilities. IAEA Document XA041609. 28 pages, 1997 (http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/36/023/36023806.pdf). Электронный ресурс со свободным доступом.
43. I.S. Anderson, R. McGreevy, H. Z. Bilheux (editors); Neutron Imaging and Applications. pp 13-30, ISBN 978-0-387-78692-6, XVI, 341 p., 2009
44. A. A. Beliakov, I. T. Tretyakov, E. P. Shabalin; First experience with the new solid methane moderator at the IBR-2 reactor. Proc. ICANS-XV, Japan, pp. 1026-1036, 2000
45. V. Ananiev, A. Belyakov, M. Bulavin, E. Kulagin, S. Kulikov, K. Mukhin, T. Petukhova, A. Sirotin, D. Shabalin, E. Shabalin, V. Shirokov, A. Verhoglyadov; The world's first pelletized cold neutron moderator at a neutron scattering facility. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 320, pp. 70 - 74, 2014
46. И.С. Алтарев И.С. Н.В. Боровиков, А.П. Булкин и др. Универсальный жидководородный источник поляризованных холодных и ультрахолодных нейтронов на реакторе ВВР-М ЛИЯФ. Письма в ЖЭТФ, т.44, вып. 6, стр. 269 - 272, 1986
47. P. Schreiner, W. Knop; New Moderator Chamber of the FRG-1 Cold Neutron Source for the Increase of Cold Neutron Flux. Proc: 11th meeting of the International Group On Research Reactors, 2007
48. An. Sun. Yu; The cold multiplication of the cold neutron source (CNS) at IAE, Beijing. Proceedings International Workshop on Cold Neutron Sources, Los Alamos, New Mexico USA, pp 557-558, 1990
49. URL:
http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/23/079/23079095.pdf. Электронный ресурс со свободным доступом.

50. K. Unlü, C. Rios-Martinez, B. W. Wehring; The University of Texas Cold Neutron Source. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A353, pp. 397-401, 1994
51. URL: <http://triga-world.net/Texas/Austin.html>. Электронный ресурс со свободным доступом.
52. Young Ki Kim, Kye Hong Lee, Hark Rho Kim. Cold neutron source at KAERI, Korea. Nuclear Engineering and Design. 238, pp. 1664–1669, 2008
53. URL:
http://www.tnw.tudelft.nl/fileadmin/Faculteit/TNW/Samenwerken/Faciliteit_en/Reactor_Institute_Delft/OYSTER_PUBLIEK_IMG/OYSTERANNUAL_2012.pdf. Электронный ресурс со свободным доступом.
54. W. Gaubatz, K. Gobrecht; The FRM-II cold neutron source. Physica B: Condensed Matter, Vol. 276–278, pp. 104–105, 2000
55. URL: <https://www.frm2.tum.de/en/the-neutron-source/secondary-sources-for-neutrons-and-positrons/cold-source/>. Электронный ресурс со свободным доступом.
56. S. Kennedy; Construction of the neutron beam facility at Australia's OPAL research reactor. Physica B, 385–386, pp. 949–954, 2006
57. URL:
http://english.ihep.cas.cn/ls/cnss/zzsszz/201406/t20140620_123024.html.
Электронный ресурс со свободным доступом.
58. J.M. Carpenter, R. Kleb, T.A. Postol et al.; The liquid moderator on the ZING-P' pulsed spallation neutron source. Nuclear Instruments and Methods 189, pp. 485-501, 1981
59. Y. Ishikawa; Present status of the KENS facility. Proceedings of 4th Meeting on Collaboration of Advanced Neutron Sources (ICANS - IV), KEK, Tsukuba, Japan, pp. 89-101, 1981
60. K. Inoue; On the 20K methane moderator and its application to an intense pulsed cold neutron source. Nuclear Instruments and Methods, 216, pp. 537-538, 1983

61. G.M. Allen, T.A. Broome, R.A. Burrige; The ISIS Cold Moderators, Int. Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources, Argonne National Laboratory, Argonne (USA), pp.43-54,1997
62. J.L. Ericson, K.F. Schoenberg, M.V. Zumbro; Overview, Operational status and life extension plans for the Los Alamos Neutron Science Center (LANSCE). Proc: XX Meeting on Collaboration of Advanced Neutron Sources, Bariloche – Argentina, 2012
63. W. Wagner, B. Blau, H. Heyck et al.; Status and development of the Swiss spallation neutron source SINQ&UCN. Proc. ICANS XIX, 19th meeting on Collaboration of Advanced Neutron Sources, Switzerland, 2010
64. H. Spitzer, G. Baue, Th. Hofmann; First operation experience with the cryogenic moderator at the SINQ spallation neutron source. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp. 97-108, 1997
65. T.L.Scott, J.M. Carpenter and M. E. Miller; The Development of Solid Methane Neutron Moderators at the Intense Pulsed Neutron Source Facility of Argonne National Laboratory. DOE Scientific and Technical Information. Report authored by a contractor of the U. S. Government under contract No. W-31-109-ENG:38, pp.299-304, 1999
66. D.M. Jenkins; The ISIS Second Target Station Target, Reflector and Moderator Design and Operation. Proc. ICANS XIX, 19th meeting on Collaboration of Advanced Neutron Sources, Switzerland, 2010
67. F. Maekawa, K. Oikawa, M. Harada; Distinctive features in neutronic performance of JSNS. Proc. ICANS XIX, 19-th meeting on Collaboration of Advanced Neutron Sources, Switzerland, 2010
68. В.А. Митюхляев, М.С. Онегин, Д.Г. Маркушин, В.Л. Соловей и др., Нейтронно-физические расчеты источника нейтронов ГЭК-3 реактора ПИК, Препринт 2959, ПИЯФ 2014
69. В.В. Голиков, Ф.Л. Шапиро, А. Шкатула, Е.А. Яник; Установка для изучения рассеяния холодных нейтронов. Proceeding of Symposium of

- Inelastic scattering of neutrons in solids and liquids, Chalk River, vol. I, pp. 119-125, 1962
70. Е.П. Шабалин; Холодные замедлители нейтронов. Физика элементарных частиц и атомного ядра. Т. 36, Вып. 6, стр. 1424 -1444, 2005
71. Н.А. Гундорин, В.М. Назаров; Эффективный замедлитель для импульсных источников нейтронов. Препринт ОИЯИ, РЗ-80-721, 1980
72. J. Carpenter; Cold moderator for pulsed neutron sources. Proc. of International Workshop on Cold Neutron Sources, LANSCE, Los-Alamos, USA, pp. 131-153, 1990
73. K. Nuenighoff Ch. Pohl, V. Bollini, A. Bubak, H. Conrad, D. Filges, H. Glueckler, F. Goldenbaum, G. Hansen, B. Lensing, R.-D. Neef, N. Paul, D. Prasuhn, K. Pysz, H. Schaal, H. Soltner, H. Stelzer, H. Tietze-Jaensch, W. Bernnat, J. Keinert, M. Mattes, W. Ninaus, S. Koulikov et al.; Ice moderator experiments at very low temperatures. The European Physical Journal A, N 22, pp. 519-528, 2004
74. K.Nueninghoff, W.Bernnat, V.Bollini, A.Bubak, H.Conrad, D.Filges, S. Koulikov et al.; Experimental Investigations of Advanced Cold Moderators at JESSICA at COSY-Juelich and Comparison with MCNPX Simulations. "AccApp'03", Sixth International Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology, Accelerator Applications in a Nuclear Renaissance, ANS, San Diego, California, pp. 804-809, 2003.
75. K.Nueninghoff, N.Bayer, W.Bernnat, V. Bollini, A. Bubak, H. Conrad, D. Filges, F. Goldenbaum, H.-K. Hinssen, R.-D. Neef, W. Ninaus, K. Pyzs, J. Keinert, S.Koulikov et.al; Investigation of the Neutronic Performance of Advanced Cold Moderators and Validation of New Evaluated S (alpha,beta) Neutron Scattering Kernels, 16th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, FZ-Juelich, pp. 883-889, 2003
76. W. Van Dingenen; Systematic study of some cold -neutron sources. Nuclear Instruments and Methods, 16, pp.116-128, 1962

77. L.L. Daemen, T.O. Brun; Ortho-and para-hydrogen in neutron thermalization. Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources. Argonne National Laboratory, 14 p., 1997
78. T. Kai, M. Harada, M. Teshigawara et al.; Coupled hydrogen moderator optimization with ortho/para hydrogen ratio. Nuclear instruments and methods in physics research A, 523, pp. 398-414, 2004
79. Y. Ogawa and Y. Kiyonagi. Neutronic Performance on A Mixed Cold Moderator of Polyethylene Particles and Liquid Hydrogen. Proceedings of the International Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources Argonne National Laboratory, pp. 233-239, 1997
80. L. Torres, J.R. Granada, J.J. Blostein; Total cross sections of benzene at 90 K and light water ice at 115 K. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, 251, pp. 304–305, 2006
81. M. Utsuro, M. Sugimoto, Y. Fujita; Experimental study on a cold neutron source of solid methylbenzene. Annual Report Research Reactor Institute Kyoto University, Vol. 8, pp. 17-25, 1975
82. S. Ikeda, J. M. Carpenter; Wide-energy-range, high-resolution measurements of neutron pulse shapes of polyethylene moderators. Nuclear Instruments and Methods. A 239, pp. 536-544, 1985
83. D. V. Baxter, J. M. Cameron, V. P. Derenchuk, C. M. Lavelle, M. B. Leuschner, M. A. Lone, H. O. Meyer, T. Rinckel, W. M. Snow, Status of the low energy neutron source at Indiana University. NIM B 241, pp. 209–212, 2005
84. J.M. Carpenter; Cold moderator for pulsed neutron source. Workshop on Cold Neutron Sources held at LANL, pp. 1-23, 1990
85. L. Cser; Organic compounds for cold moderators. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp.241-244, 1997
86. I. Natkaniec, E. Shabalin, S. Kulikov, K. Holderna-Natkaniec. Comparison of Neutron Scattering and Radiation Properties of Methane and Water Ices with Methyl Derivatives of Benzene at Low Temperatures. In Proc. of 17th

- Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, ICANS-XVII, USA , LA-UR-06-3904, Vol. II, pp.519-529, 2006
87. G. S. Bauer; Pulsed neutron source cold moderators concept, design and engineering. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp. 27-41, 1997
 88. M.G. Zemlyanov; Propane cold neutron source: creation and operation experience. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp. 87-96, 1997
 89. A. Crabtree; SNS Hydrogen Moderator System – A Year in Review. Proc. ICANS-XVIII, 18th Meeting of the International Collaboration in Advanced Neutron Sources, China, ID171, 2007
 90. S. Ansell, S.D. Higgins, D.M. Jenkins, M.F.D. Simon; Thermal design for ISIS second target station moderators. Proc. ICANS XVII 17th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, USA, pp. 294-303, 2005
 91. S. Hasegawa, T. Aso, H. Tatsumoto, K. Ohtsu, S. Uehara, T. Kato, Y. Ikeda; Estimation of pressure change based on hybrid control system in JSNS hydrogen loop. Proc.: ICANS XVIII, ID71, Apr. 25-29, Dongguang, China, 2007
 92. H. Spitzer, G. Bauer, Th. Hofmann; First experience with the Cryogenic moderator at the SINQ spallation neutron source. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp.97-115, 1997
 93. R.E. Williams, J.M. Rowe, P. Kopetka; The liquid moderator at the NIST research reactor. Proc. International Workshop on Cold Neutron Sources, Argonne, USA, pp.79-86, 1997
 94. H.J. Guyon; Refurbishment and Upgrade of ILL reactor and instrument suite. 13th meeting of the International Group On Research Reactors. USA, 2010
 95. N. Watanabe; Neutronics of pulsed spallation neutron sources. Reports on Progress in Physics, 66, pp. 339–381, 2003

96. L. Zanini, K. Batkov, E. Klinkby, F. Mezei, T. Schoenfeldt, A. Takibayev, The neutron moderators for the European Spallation Source. Report at Second Research Coordination Meeting, 23 February 2016
97. H.Kogawa, S.Ishikura, R.Hino, T.Kato, T.Aso, H.Satoh, M.Harada, T.Kai, M.Teshigawara, F.Maekawa and N.Watanabe; Cold Moderator Design of JSNS 1MW Pulse Source. ICANS-XVI, Germany, ISSN 1433-559X, Vol. II, pp. 635- 656, 2003
98. R.K. Crawford, P. Thiyagarajan, J.E. Epperson, F. Throuw, R. Kleb et al.; The new small-angle diffractometer SAND at IPNS. ICANS-XVIII, Paul Scherrer Institute, Vol. I, pp.99-117, 1995
99. E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov, E. Shabalin; Radiation Effects In Cold Moderator Materials: Experimental Study of Accumulation and Release of Chemical Energy, Nuclear Instr. and Methods in Physics Research, B, 215, 1-2, pp. 181-186, 2004
100. E. Shabalin, A. Fedorov, E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov, D. Shabalin; Experimental study of swelling of irradiated solid methane during annealing. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 266, pp. 5126-5131, 2008
101. E. Shabalin, E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov; Experimental study of spontaneous release of accumulated energy in irradiated ices, Radiation Physics and Chemistry, V.67, N 3-4, pp. 315-319, 2003
102. J.M. Carpenter, IPNS Progress Report 1985-1986. Argonne National Laboratory, pp. 8-10, 1986
103. G. M. Allen, T. A. Broome, R. A. Burridge, D. Cragg, D. Evans, R. Hall et al.; The Isis Cold Moderators. Proceedings of the International Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources Argonne National Laboratory, pp.43-54, 1997
104. A.T. Lucas, G.S. Bauer, C.D. Sulfredge; A pelletized solid methane moderator for medium-to-high power neutron source. Proceedings of ICANS-XIII, 13th Meeting of the International Collaboration on Advanced

- Neutron Sources, Paul Scherrer Institute, Switzerland, V2, pp.644-653, 1995
105. C.A. Foster , J.M. Carpenter; An Advanced Cold Moderator Using Solid Methane Pellets. ICANS-XV 15th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, pp. 882-892, Tsukuba, Japan, 2000
106. O. Kirichek, A.J. Church, M.G. Thomas, D. Cowdery, S.D. Higgins, M.P. Dudman, Z.A. Bowden; Adhesion, plasticity and other peculiar properties of solid methane. *Cryogenics*, 52, pp. 325–330, 2012
107. Е.П. Шабалин, С.А. Куликов Холодный замедлитель нейтронов на основе ароматических углеводородов, Сообщения ОИЯИ, Е13-2004-73, 2004
108. R.D.Taylor and J.E.Kilpatrick; *The Journal of Chem. Physics*, V.23, N 7, pp.1232-1235, 1955
109. I. Natkaniec, K. Hołderna-Natkaniec; Structural phase transitions and dynamics of solid mesitylene investigated by diffraction and inelastic incoherent neutron scattering methods. Proc: ACoM 6, 6th Meeting of the Collaboration on Advanced Cold Moderators, Julich, Germany, ISSN 1433-5506, pp. 103-111, 2002
110. E. Shabalin; Cold Moderator Materials: Comparative Feasibility, Engineering Aspects. Proc: PNPI, Гатчина, 2003
111. L. Cher; Organic Compounds for Cold Moderators. Proc. of International Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources, Argonne National Lab., Sept. 29- Oct. 2, 1997. A Brochure of the Megascience Forum of the OECD. p. 241-244, 1998
112. И. М. Баранов, И.И. Воронин, В.Г. Ермилов, Е.Н. Кулагин, С.А. Куликов, В.В. Мелихов, Р.Г. Пушкарь, Ро Ду Мин, Д.Е. Шабалин, Е.П. Шабалин; Изучение процесса выхода радиолитического водорода из

- экспериментального элемента холодного замедлителя на твердом мезитиле. P3-2004-212, 14 стр., Сообщения ОИЯИ, 2004
113. С.Я. Пшежецкий; Механизм и кинетика радиационно-химических реакций. «Химия», М., 1968
114. A. Belyakov, M. Bulavin, A. Chernikov, A. Churakov, S. Kulikov, E. Litvinenko, K. Mukhin, A. Petrenko, T. Petukhova, A. Sirotin, E. Shabalin, V. Shirokov, and A. Verhoglyadov; Control system of pelletized cold neutron moderator at the IBR-2 reactor. *Physics of Particles and Nuclei Letters*, Vol. 12, No. 6, pp. 773–777, ISSN 1547-4771, 2015
115. E.P. Shabalin, A.A. Belyakov, V.G. Ermilov, V.V. Melikhov; Solid methane cold moderator at the IBR-2 reactor: test operation at 2 MW. In: *Advanced Pulsed Neutron Sources, Proc. of PANS-II, the Second International Meeting on Pulsed Advanced Neutron Sources, Dubna, 14-17 June 1994*, JINR, Dubna, D3-95-169, 1995
116. Е.П. Шабалин, Е.Н. Кулагин, С.А. Куликов, В.В. Мелихов; Радиационные эксперименты с водородсодержащими материалами на криогенной облучательной установке УРАМ-2 реактора ИБР-2. *Атомная Энергия*, 97, 3, стр. 183-189, 2004
117. Е.П. Шабалин, С.А. Куликов и В.В.Мелихов; Study of fast neutron irradiation effects in cold moderator materials. *Письма в журнал Физика элементарных частиц и атомного ядра (Письма в ЭЧАЯ)*, ISSN:1814-5957, 5, 114, 82-88, 2002
118. E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov, E. Shabalin; Radiation Effects In Cold Moderator Materials: Experimental Study of Accumulation and Release of Chemical Energy. *Nuclear Instr. and Methods in Physics Research, B.*, N215/1-2, P. 181-186, 2004
119. J. Carpenter; Thermally activated release of stored chemical energy in cryogenic media. *Nature*, pp. 358-360, 1998.
120. E.P. Shabalin, Consideration of the "Burp" Phenomenon in Solid Methane Accounting for Nonuniform Distribution of Irradiation Defects, *Proc. of the*

- International Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources, ANL, Argonne, Illinois, P. 245-249, 1997
121. S. Kulikov, V. Melikhov, E. Kulagin, E. Shabalin et al; The URAM-2 irradiation facility at the IBR-2 Reactor for Radiolysis Study. Proc. of the Joint Summer School JINR-Romania on Neutron Physics for Investigations of Nuclei, Condensed Matter and Life Sciences, Baia Mare, Romania, ISBN 5-9530-0028-6, pp. 52-57, 2003
 122. S. Kulikov, E. Shabalin, V. Melikhov, E. Kulagin; Radiation effects in cold moderator materials: Experimental study of accumulation and release of chemical energy. In: Proceedings of 16th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, May 12 – 15, Düsseldorf-Neuss, Germany. Edit. G. Mank, H. Conrad, Vol. II, p 865 - 872, 2003
 123. E.Shabalin, V.Golikov, S.Kulikov, and et. al; Study of radiation effects in hydrogenous moderator materials at low temperatures (URAM-2 project), ACoM-6, 11-13 September 2002 , FZJ, Juelich, Germany, 2002
 124. R. Livingston and A.J. Weinberger; Atomic and Molecular Hydrogen Yields from Irradiated Acids. The Journal of Chemical Physics, N 33, pp. 499-508, 1960.
 125. P. Fluornoy, Disappearance of Trapped Hydrogen Atoms in Gamma-Irradiated Ice. J. Chem. Phys, N36, pp. 22-29, 1963
 126. E.P. Shabalin, V.V. Golikov, S.A. Kulikov, and et. al.; URAM-2 cryogenic irradiation facility: JINR Communications, E13-2002-143, 2002
 127. E. Shabalin, A. Fedorov, E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov, D. Shabalin; Experimental Study of Swelling of Irradiated Solid Methane During Annealing. Сообщение ОИЯИ, E13-2008-41, 2008
 128. E. Shabalin, S. Kulikov, V. Melihov. Study of radiation effects in hydrogenous moderator materials at low temperatures. Report: URAM-2 Project, Research contract with PSI, 53 p., 2002

129. С.А. Куликов; Замедлители нейтронов для высокопоточных источников, диссертационная работа на соискание степени кандидат физико-математических наук, ОИЯИ, 2006
130. URL: http://flerovlab.jinr.ru/flnr/microtron_rus.html Электронный ресурс со свободным доступом.
131. А.А. Belyakov, V.G. Ermilov, V.L. Lomidze, V.V. Melikhov, E.P. Shabalin; The First Experience of a Cold Moderator and of Solid Methane Irradiation at the IBR-2 Pulsed Reactor. In the Proc. of the 12-th Meeting of International Collaboration on Advanced Neutron Sources, ICANS-XII, England, RAL Report 94-025, v. II, p.144 - 155, 1993
132. E. Shabalin, Yu. Borzunov, A. Fedorov, V. Ermilov, E. Kulagin, S. Kulikov, V. Melikhov, Ro Du Min, D. Shabalin; Experimental Study of Swelling of Irradiated Solid Methane during Annealing. Proceedings of ICANS-XVIII, 18th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS-XVIII), Dongguang, China, pp. 504-510, 2007
133. URL: http://www.solidworks.com/sw/docs/thermal_2010_eng_final.pdf . Электронный ресурс со свободным доступом.
134. E. Shabalin, S. Kulikov, V. Melikhov, E. Kulagin; Some Radiation Effects In Cold Moderator Materials, Experimental Study. In: Proceedings of 16th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, Düsseldorf-Neuss, Germany. Edit. G. Mank, H. Conrad, Vol. II, p 911 - 919, 2003
135. J.F.Briesmeister; MCNP- A general Monte Carlo n-particle transport code: LA-12625-M, 1997
136. URL: <http://flnp.jinr.ru/157/> Электронный ресурс со свободным доступом.
137. T. Nakagava, S. Shibata, S. Chiba, T. Fukahory, Y. Nakajima, and et al.; Japanese evaluated nuclear data library Version 3 Revision -2: JENDL-3.2. J. Nucl. Sci. Technol., p. 1259-1271, 1995

138. P.F. Rose; ENDF-201, ENDF/B-VI summary documentation, Report, 1991
139. C. Nordborg; The JEF-2.2 nuclear data library, Report, 2000
140. W. Bernnat, J. Keinert, and M. Mattes; Evaluation of scattering laws and cross sections for calculation of production and transport of cold and ultracold neutrons, Proc: ACoM-6, FZJ, Juelich, Germany, 2002
141. J.R. Granada, V.H. Gillete, and S. Petriw et al.; Neutron cross section of cryogenic materials: A synthetic kernels for molecular solids, Proc: ACoM-6, FZJ, Juelich, Germany, 2002
142. R.E. MacFarlane; Cold moderator scattering kernel methods, Proceedings of X-th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, LANL, USA, pp. 157-178, 1988
143. E.L. Bokhenkov, I. Natkanec, E.F. Sheka; Determination of the density of phonon states of pnaphtaline crystal from inelastic incoherent neutron scattering. Sov. Phys. JETP, Vol. 43, 3 pp. 536 – 545, 1976
144. Y. Kiyanagi, S. Ohnuma, T. Kamiyama, H. Iwasa, F. Hiraga et. al.; Proc.: ICANS – XVII, vol. II, pp. 498 – 505, 2005
145. P.A. Egelstaff, M.J. Poole, and P. Schofield; Experimental neutron thermalisation: Pergamon press, Oxford, 1969
146. ESS, Vol. III, The ESS Technical Study, ISBN 090-237-6-659, November 1996
147. URL: http://www.fz-juelich.de/ikp/EN/Forschung/Beschleuniger/_doc/COSY.html .
Электронный ресурс со свободным доступом.
148. K. Nuenighoff, Ch. Pohl, V. Bollini, A. Bubak, H. Conrad, P. D. Ferguson, D. Filges, F. X. Gallmeier, H. Glueckler, F. Goldenbaum, G. Hansen, E. B. Iverson, S. Koulikov et al.; Investigations of the Neutron Performance of a Methane Hydrate Moderator. In Proc. of 17-th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, ICANS-XVII, USA, LA-UR-06-3904, Vol. II, pp.530-541, 2005

149. H. Stelzer, N. Bayer, H.-K. Hinssen, Th. Matzerath; A Cryogenic moderator system for JESSICA, a test facility for advanced cold moderators. Proc: ACoM 6, 6-th Meeting of the Collaboration on Advanced Cold Moderators, Julich, Germany, ISSN 1433-5506, pp. 161 – 167, 2002
150. K. Neuninghoff, Ch. Pohl, V. Bollini, A. Bubak, H. Conrad, D. Filges, H. Glueckler, F. Goldenbaum, G. Hansen, B. Lensing, R. Neef, N. Paula, K.Pysz, H.g Schaal, H. Soltner, H. Stelzer, H. Tietze-Jaensch, W. Ninaus, M. Wohlmuther, P. Ferguson, F. Gallmeier, E. Iverson, S. Koulikov, A. Smirnov; Investigations of the neutron performance of a methane hydrate moderator, Nuclear Instr. and Methods in Physics Research A, 562, pp. 565–568, 2006
151. K. Nuenighoff, Ch. Pohl, S. Koulikov, F. Cantargi, H. Conrad, D. Filges, H. Glueckler, F. Goldenbaum, R. Granada, G. Hansen, T. Matzerath, N. Paul, S. Petriw, H. Schaal, H. Soltner, H. Stelzer, W. Ninaus and M. Wohlmuther; Neutron experiments with cryogenic methane hydrate and mesitylene moderators. European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei, 38, pp. 115-123, 2008
152. L. Cser, K. Holderna-Natkaniec, I. Natkaniec, A. Pawlukojc; Neutron spectroscopy and QC modeling of the low-frequency internal vibrations of mesitylene. Physica B, 276-278, pp. 296-297, 2000
153. F. Cantargi, J.R. Granada, S. Petriw, M.M. Sbaffoni; New Scattering Kernels for some materials of interest as Advanced Cold Neutron Moderators. Physica B, 385-386, pp. 1312-1314, 2006
154. R.E.MacFarlane and D.W.Muir; The NJOY nuclear data processing system Version 91, Report LA-12740, 1994
155. I. Natkaniec, K. Holderna-Natkaniec, J. Kalus; Neutron scattering studies of methyl derivatives of benzene selectedas potential materials foe cold neutron moderators. Physica B, 350, pp. 651-653, 2004
156. S. A. Kulikov, I. V. Kalinin, V. M. Morozov, A. G. Novikov, A. V. Puchkov, A. N. Chernikov, E. P. Shabalin; Measurement of Cold Neutron

- Spectra at a Model of Cryogenic Moderator of the IBR-2M Reactor. *Physics of Particles and Nuclei Letters*, Volume 7, Number 1, 57-60, 2010
157. С.А. Куликов, Е.П.Шабалин; Оптимизация замедлителей ИБР-2. *Журнал Атомная энергия*, ISSN: 0004-7163, т. 115, №7, стр. 41-44, 2013
158. R.E. MacFarlane; Cold moderator scattering kernel methods. *Proc. LANL, USA*, 7-10-1988, pp. 157-178, 1988
159. F. Cantargi, J.R. Grananda, S. Petriw, M.M. Scaffoni; New scattering kernels for some materials of interest as advanced cold neutron moderators. *Physica B*, Vol. 385-386, pp. 1312-1314, 2006
160. С.А. Куликов, Е.П. Шабалин; Сравнение эффективности материалов холодных замедлителей нейтронов для реактора ИБР-2М. *Сообщение ОИЯИ*, 8 стр., P17-2005-222, 2005
161. S. Kulikov, E. Shabalin; Complex of neutron moderators for the IBR2M reactor. In *Proc. of 17th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, ICANS-XVII*. April 25-29, 2005, Santa Fe, New Mexico, LA-UR-06-3904, Vol. II, p.341-345, 2005
162. V. Ananiev, A. Belyakov, S. Kulikov, A. Kustov, N. Romanova, E. Shabalin, D. Shabalin. Complex of moderators for the IBR-2M reactor. *Proceedings of ICANS-XVIII, 18th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS-XVIII)*, China, pp. 473-478, 2007
163. S.A. Manoshin, A.V. Belushkin, S.A. Kulikov, E.P. Shabalin, K. Walther, C. Scheffzuek, V.V. Zhuravlev; Optimization of a moderator-neutron guide system for diffractometers of beam line 7A of the IBR-2M reactor. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 608, 3, pp. 447-453, 2009
164. G. Muhrer, E.J. Pitcher, and G.J. Russell; The neutron performance of a pre-moderated beryllium reflector-filter hydrogen moderator system for the Manuel Jr. Lujan Neutron Science Center. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, N 536, pp. 154-164, 2005

165. Комплекс замедлителей реактора ИБР-2М. Пояснительная записка. ИРМ.2М.200.000ПЗ, ФГУП НИКИЭТ имени Н.А. Доллежала, 61 стр., 2007
166. В.Д. Ананьев, А.А. Беляков, М.В. Булавин, А.Е. Верхоглядов, С.А. Куликов, К.А. Мухин, Е.П. Шабалин. Холодный замедлитель нейтронов на модернизированном реакторе ИБР-2. Первые результаты пуска. Журнал технической физики, том 84, вып. 2, стр. 131-134, 2014
167. S. Kulikov, A. Belyakov, M. Bulavin, K. Mukhin, E. Shabalin, A. Verhoglyadov; Current status of advanced pelletized cold moderators development for IBR-2M research reactor. Physics of Particles and Nuclei, Letters, ISSN 1814-5957, v.10, 2(179), pp. 230-235, 2013
168. V. Ananiev, A. Belyakov, M. Bulavin, E. Kulagin, S. Kulikov, K. Mukhin, T. Petukhova, A. Sirotin, D. Shabalin, E. Shabalin, V. Shirokov, A. Verhoglyadov; The world's first pelletized cold neutron moderator at a neutron scattering facility. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 320, pp. 70-74, 2014
169. E. Shabalin, S. Kulikov; The World's First Pelletized Cold Neutron Moderator Began its Operation. Taylor & Francis group, Vol.24, Number 3, p. 27, 2013
170. S. Kulikov, E. Shabalin; Status and perspective of development of cold moderators at the IBR-2 reactor. Journal of Physics: Conference Series 351, 012023 doi:10.1088/1742-6596/351/1/012023, 2012
171. S. A. Kulikov, V. D. Anan'ev, A. A. Belyakov, M.V. Bulavin, A. E. Verkhoglyadov, E. N. Kulagin, A. A. Kustov, K. A. Mukhin, Fedorov, E. P. Shabalin, D. E. Shabalin; Recent Progress in Development of the Pelletized Cold Neutron Moderators for the IBR-2M Reactor. Proceedings of International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS XIX), PSI, Grendelvald, Switzerland, PSI-Proceedings 10-01, ISSN 1019-6447, TO070, pp. 1-8, 2010

172. В. Д. Ананьев, А. А. Беляков, А. А. Богдзель, М. В. Булавин, А. Е. Верхоглядов, Е. Н. Кулагин, С. А. Куликов, А. А. Кустов, А. А. Любимцев, К. А. Мухин, Т. Б. Петухова, А. П. Сиротин, А. Н. Федоров, Е. П. Шабалин, Д. Е. Шабалин, В. К. Широков; Испытательный стенд шарикового криогенного замедлителя нейтронов реактора ИБР-2. Приборы и техника эксперимента, №1, стр. 128-134, 2013
173. О.Г. Бузыкин, А.В. Казаков, Е.Н. Кулагин, С.А. Куликов, Д.Е. Шабалин, Е.П. Шабалин; О пневмотранспортировке твердых шариков холодного замедлителя нейтронов, Сообщение ОИЯИ, P13-2008-116, 2008
174. М.В. Булавин, Е.Н. Кулагин, С.А. Куликов, К.А. Мухин, Д.Е. Шабалин, Е.П. Шабалин; Моделирование пневмотранспорта твердых шариков холодного замедлителя нейтронов: распределение скорости и времени движения. Сообщение ОИЯИ, P13-2009- 72, 16, 2009
175. S. Kulikov, A. Belyakov, M. Bulavin, K. Mukhin et al.; Advanced pelletized cold moderators for the IBR-2M research reactor for condense matter research. Proceedings of International Conference of Advanced Neutron Sources, ICANS XX, 4-9 of March, Bariloche, Argentina, id 341, 2012
176. S. Kulikov V. Ananiev, A. Belyakov, A. Bogdzel, M. Bulavin, A. Verhoglyadov, E. Kulagin, A. Kustov, K. Mukhin, A. Lubimtsev, T. Petukhova, A. Sirotin, A. Fedorov, E. Shabalin, D. Shabalin, M. Sitnik, V. Shirokov. Test stand of the technological system of the cryogenic moderator with the control electronics. Journal of Science and Arts, No.3(16), pp. 339-346, 2011
177. С.А. Куликов, Т.Б. Петухова. Е.П. Шабалин; "Регистрация и обработка измерительной информации на испытательном стенде шарикового криогенного замедлителя нейтронов - СМControl". Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ №2011612201 от 16.03.11

178. Куликов С.А., Федоров А.Н., Шабалин Е.П.; Криогенный дозатор шариков для холодного замедлителя нейтронов. Патент на изобретение №2496165. 2013
179. Годовой научный отчет Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка. (http://flnp.jinr.ru/img/648/1291_Spectrometers_rus_1.pdf), стр. 55, 2014
180. А.В. Белушкин, А.А. Богдзель, В.В. Журавлев и др.; Двухкоординатный мониторинг позиционно-чувствительный детектор тепловых нейтронов. Журнал Технической Физики, т.78, №1, стр. 121-125, 2008
181. Aksenov V.L., Jernenkov K.N., Kozhevnikov S.V., Lauter H., Lauter Pasyuk V., Nikitenko Yu.V., Petrenko A.V.; The polarized neutron spectrometer REMUR at the pulsed reactor IBR-2. JINR Communications, D13-2004-47, 32 p, 2004
182. F. V. Levchanovskiy, B.Gebauer, E.I. Litvinenko, A.S. Nikiforov, V.I. Prikhodko. Ch. Schulz, Th. Wilpert; A PCI DAQ Board for MWPC Detectors with Delay Line Position Readout. Nuclear Instruments and Methods. A529, pp. 413-416, 2004
183. Г.М. Арзуманян; Результаты измерения на КАРС микроскопе облученной смеси. (готовится к публикации)
184. В.И. Фельдман; Исследование радиационно-химических превращений в системах на основе мезитилена и смесей мезитилена-ксилола. Научно-технический отчет. Московский Государственный университет им. М.В. Ломоносова, 2014
185. Ананьев В.Д., Беляков А.А., Богдзель А.А., Булавин М.В., Верхоглядов А.Е., Кулагин Е.Н., Куликов С.А. и др.; Первый в мире шариковый холодный замедлитель нейтронов. Сообщение ОИЯИ, P13-2012-113, 14 стр., 2012
186. V. Ananiev, A. Belyakov, S. Kulikov, A. Kustov, N. Romanova, E. Shabalin, D. Shabalin; Complex of moderators for the IBR-2M reactor.

- Proc. ICANS-XVIII, 18th Meeting of the International Collaboration in Advanced Neutron Sources, China, pp. 476-481, 2007
187. Ананьев В.Д., Беляков А.А., Булавин М.В., Верхоглядов А.Е., Кулагин Е.Н., Куликов С.А., Кустов А.А., Мухин К.А, Шабалин Е.П., Шабалин Д.Е.; Шариковый холодный замедлитель нейтронов. Патент на изобретение, №2492538, 2013
188. Shabalin E., Shabalin D., Kulagin E., Kulikov S.; R&D of productive pelletized cold neutron moderators. Proc. of The first Research coordination meeting, IAEA, Hokkaido University, Hokkaido, Japan, pp. 57-61, Vienna, Austria, ISSN:0587-4254 , eISSN:1509-5770, Jagellonian University, 2007
189. S. Kulikov, M. Bulavin, E. Kulagin, D. Shabalin, E. Shabalin, A. Verhoglyadov; R&D of productive pelletized cold neutron moderators (status), Proceeding of the second Research coordination meeting, IAEA, Kuala Lumpur, Malaysia, p.71-75, 2009
190. J.M. Carpenter. Neutron generation. National school on neutron and X-ray scattering, ANL/ORNL, 12–25 August 2012. URL: neutrons.ornl.gov/conf/nxs2012/pdf/carpenter-neutron-generation.pdf
Электронный ресурс со свободным доступом.
191. F.X. Gallmeier, E.B. Iverson, W. Lu, P.D. Ferguson, R.K. Crawford; SNS second target station moderator performance update. Proceedings of the 19th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources ICANS-XIX, Grindelwald, Switzerland, 2010
192. V.V. Golikov, E.N. Kulagin, E.P. Shabalin; Dose rates near water moderator of the IBR-2 Reactor: experiment and analysis. JINR Communications, E16–2002- 79, p. 14, 2002
193. I Natkaniec, D Chudoba, Ł Hetmańczyk, V Yu Kazimirov, J Krawczyk, I L Sashin, S Zalewski. Parameters of the NERA spectrometer for cold and thermal moderators of the IBR-2 pulsed reactor. Journal of Physics: Conference Series 554, 12 p., 2014

194. С. В. Кожевников, В. Д. Жакетов, А. В. Петренко, М. В. Булавин, А. Е. Верхоглядов, С. А. Куликов, Е. П. Шабалин; Использование криогенного замедлителя на нейтронном рефлектометре РЕМУР. Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. No 1, с. 1–11, 2016
195. Avdeev M. V. et al.; Multifunctional Neutron Reflectometer GRAINS with Horizontal Sample Plane at the IBR-2 Reactor. The 6-th Eur. Conf. on Neutron Scattering (ECNS 2015), Zaragoza, Spain, 2015
196. Годовой отчет Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка за 2013 год, ISBN 978-5-9530-0376-6, Editors: V.N. Shvetsov, D.M. Chudoba, O.A. Culicov, стр. 15, 2013