

ФЭИ-2293

ФЭИ-2293



ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

А. Г. НОВИКОВ, А. Д. РОГОВ

**Выбор холодного замедлителя
для спектрометра ДИН-2ПИ**

Обнинск — 1992

ФСН - 2293

МИКРО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ

А. Г. РОВКОВ, А. Л. РОГОВ

ВЫБОР ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ
ДЛЯ СПЕКТРОМЕТРА ДИП-2ПМ

ОБНИНСК - 1969

А.Г.Новиков, А.Д.Рогов

Выбор холодного замедлителя
для спектрометра ДИН-2ПИ.

ФЭИ-2293, Обнинск, 1992. - 28 с.

В работе рассмотрены общие вопросы, связанные с выбором холодного замедлителя для нейтронного спектрометра ДИН-2ПИ на пучке № 2 реактора ИБР-2. Сделан вывод, что в условиях пучка № 2 и спектрометра ДИН-2ПИ наиболее подходящим будет водяной холодный замедлитель гребенчатой геометрии.

The main problems concerning the choice of a cold moderator for the neutron spectrometer DIN-2PI on the neutron beam N^o2 of the IBR-2 reactor are considered. It is concluded, that under neutron beam N^o2 and spectrometer DIN-2PI conditions the cold water grooved moderator is the most suitable one.

1. ОБЩИЕ СООБРАЖЕНИЯ ОТНОСИТЕЛЬНО ВЫБОРА ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ НА ПУЧКЕ № 2 РЕАКТОРА ИБР-2

1.1. Анализ характеристик нейтронного спектрометра неупругого рассеяния ДИН-2ПМ /1/, работающего на 2-м пучке реактора ИБР-2 Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ (г. Дубна), и сравнение этого спектрометра с зарубежными приборами аналогичного назначения, такими как IN₂ и IN₆ (ILL, /2/), MARKI (RAL, ISTR, /3/), LRMECS (ANL, IRRS, USA, /4/) приводит к следующему заключению. При отличных фоновых условиях, характерных для ДИН-2ПМ, этот спектрометр может иметь разрешение, не уступающее упомянутым выше приборам, если работать на нейтронах с низкой начальной энергией ($E_0 \sim 5$ мэВ; $\lambda \sim 4$ А) (рис.1). Однако, интенсивность монохроматических нейтронов на образце в случае ДИН-2ПМ оказывается при этом в 10-20 раз ниже, чем на упомянутых выше зарубежных аналогах.

Из двух возможных путей повышения интенсивности нейтронного пучка в области низких энергий: установки зеркального нейтронновода и использования холодного замедлителя, первый путь в случае ДИН-2ПМ отпадает. Это связано с большой естественной расходимостью первичного нейтронного пучка ($\Delta \theta_{\text{ест}} \approx 0,01$), которая оказывается близка к критическому углу (например, для никеля при $\lambda \sim 6$ А $\theta_{\text{кр}} \approx 0,01$), а в таком случае, как известно /5/, зеркальный нейтронновод не дает заметного выигрыша в области длин волны нейтронов ($\lambda > 3$ -6А), пригодных для практического использования. Следовательно, единственным способом поднять интенсивность нейтронного пучка в области низких энергий в случае спектрометра ДИН-2ПМ является использование холодного замедлителя.

1.2. К настоящему времени накоплен богатый опыт по конструированию, созданию и эксплуатации холодных замедлителей (ХЗ) нейтронов как на импульсных, так и на стационарных нейтронных источниках, включая и реакторы значительной мощности (ILL, Гренобль; ИБР-2, Брукхайвен) /6/. В большинстве из них в качестве замедляющей среды используется жидкий водород (или дейтерий) при $T = 20$ К, однако есть холодные замедлители на основе жидких металлов /7/ и пропана /8/, твердого метана /9/, легкого /10/ и тяжелого /11/ льда. В процессе создания находится в данный момент и источник холодных нейтронов на реакторе ИБР-2, где в качестве материала ХЗ предполагается использовать твердый метан, охлажден-

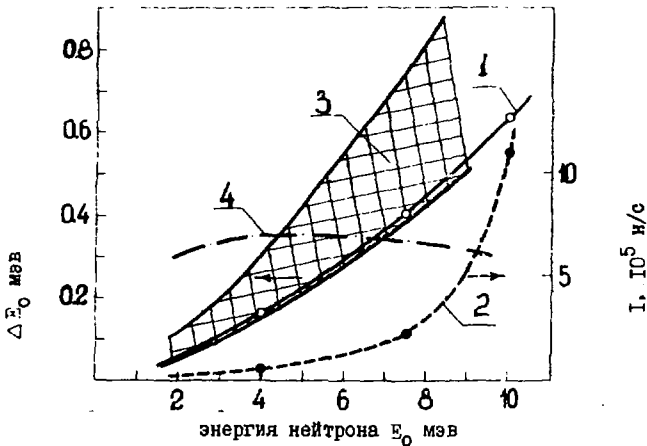


Рис. 1. Характеристики спектрометра ДИН-2ПМ (скорость вращения прерывателя $n = 3000$ об/мин).

1 - разрешение в упругом пике ΔE_0 ; 2 - интенсивность монохроматических нейтронов на образце (s обр. = $= 12 \times 16 = 192 \text{ см}^2$); 3, 4 - соответствующие характеристики спектрометра IN 5 (ILL, Гренобль) (границы области 3 определяются предельными скоростями вращения прерывателя: $n = 6000$ об/мин и $n = 20000$ об/мин).

емый газообразным гелием до температуры 20K /12/.

Некоторые из нейтронно-физических характеристик для основных материалов ХЗ представлены на таблицах 1 и 2, взятых нами из работ /13/ и /14/, соответственно.

1.3. Выбор и создание ХЗ на пучке № 2 реактора ИБР-2 требует учета специфики, связанной как с особенностями реактора ИБР-2, так и с будущими условиями эксплуатации ХЗ на пучке № 2. Эта специфика состоит в следующем:

а) ХЗ не может периодически извлекаться из пучка в зону обслуживания, как это предусмотрено проектом ИБР для пучков № 4, 5, 6;

он должен быть стационарным, расположенным около или вместо штатного водяного замедлителя;

б) установка ХЗ на пучке № 2 не должна исключать возможности, когда это необходимо, работать на водяном замедлителе комнатной температуры;

в) использование водородосодержащих жидкостей (водород, метан, углеводороды и т.д.) из соображения реакторной и пожарной безопасности исключено.

В этих условиях одним из немногих оставшихся вариантов материала ХЗ оказывается вода. Существует ряд примеров использования ХЗ на основе льда (легкого и тяжелого) как на импульсных /IО/, так и на стационарных /II/ нейтронных источниках. Такой замедлитель с точки зрения технологичности и безопасности эксплуатации обладает перед жидководородными или твердометановыми замедлителями рядом преимуществ, а именно:

а) поскольку замедлитель находится в твердом состоянии, резкое повышение температуры, связанное, например, с отказом системы охлаждения и потенциально чреватое в случае жидкости взрывом, здесь оказывается безопасным;

б) в то же время он радиационно более стоек, чем твердометановый (в 40-50 раз, см. табл.1) и, следовательно, может выдерживать более высокие дозовые нагрузки;

в) его большая радиационная стойкость, а также особенности процесса рекомбинации первичных продуктов радиолитиза приводят к тому, что для удаления продуктов радиолитиза (H_2 , H_2O_2 , O_2) не требуется специальных сложных устройств, что существенно упрощает технологическую схему установки;

г) в случае необходимости такой замедлитель может быть использован как обычный водяной замедлитель при комнатной температуре.

Однако, по своим нейтронно-физическим характеристикам водяной УЗ проигрывает твердометановому (см. рис.2 и табл.2). Это относится и к интенсивности холодных нейтронов, и к временным характеристикам нейтронного импульса, испускаемого замедлителем, и связано, как неоднократно подчеркивалось в литературе, с отсутствием низкочастотных колебаний в обобщенном спектре частот воды (см. табл.1).

Что касается интенсивности холодных нейтронов, то, по крайней мере, хотя бы частично это обстоятельство может быть компенсировано использованием гребенчатого (дырчатого) замедлителя.

Таблица 1 [13]

Замедлитель	Плотность ат. водорода в $1 \text{ см}^3 \cdot 10^{23}$	Темпер. плавл. ТК	Темпер. кипен. ТК	Низкочастотные моды в спектре частот и их веса.	Относит. радиац. стойкость*
H_2	0,042	14	20,4	0,015	-
H_2O	0,067	273	373	0,005-0,020 (0,056)	0,43
CH_4	0,078	90	112	0,017 (0,32)	22,2
C_9H_{12}	0,052	220	438	0,0074	-
(CH_2)	0,079	тв	тв	-	13,2
N H_3	0,088	195	240	0,0025 0,3	4,4

* Полный объем газа, возникающий при нормальной температуре и давлении в 1 см^3 замедлителя толщиной 50 мм на расстоянии 100 мм от источника гамма излучения.

Таблица 2 [14]

Замедлитель	ТК	Относительный выигрыш в интенсивности.			Полуширина нейтронного импульса мкс			
		$\lambda=4\text{A}$	$\lambda=6\text{A}$	$\lambda=10\text{A}$	$\lambda=2$	$\lambda=4\text{A}$	$\lambda=6\text{A}$	$\lambda=10\text{A}$
H_2	20	0,18	0,19	0,23	-	-	-	-
H_2O	20	0,83	0,52	0,28	51	195	260	310
CH_4	100	0,51	0,23	0,2	75	105	105	105
	20	1	1	1	15	55	96	132

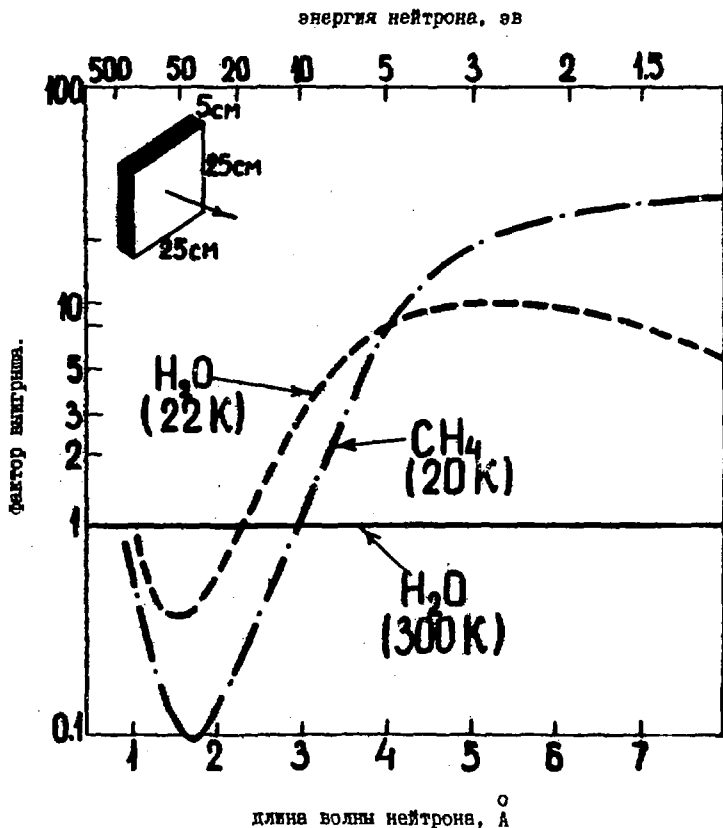


Рис. 2. Относительная интенсивность нейтронного потока, испускаемого холодными водяным и метановым замедлителями плоской геометрии.

К сожалению, в настоящее время трудно количественно оценить выигрыш в интенсивности, даваемый гребенчатым замедлителем. По одним данным (реактор ИБР-30, водяной замедлитель комнатной температуры) этот выигрыш составляет в интересующей нас области энергий нейтронов ($\lambda = 3-6\text{А}$) 4-6 раз /15/; по другим данным (полиэтилен комнатной температуры, "факал", ИАЭ) ~ 2,4 раза /16/, наконец, для твердого метана, $T = 20\text{К}$ этот выигрыш оказывается всего лишь 1,2 - 1,5 (КЕНС, /17/).

При этом следует иметь в виду, что использование гребенчатого замедлителя приводит к уширению нейтронного импульса, испускаемого замедлителем (на водном и полиэтиленовом замедлителе комнатной температуры - в ~ 1,5 раза /15,16/, на твердом метане, $T = 20\text{К}$, на ~ 15% /17/). Однако, в условиях реактора ИБР-2 это обстоятельство также, как и некоторое увеличение длительности нейтронного импульса в холодном водяном замедлителе по сравнению с твердометановым (см. табл.2), не имеет принципиального значения. Эти различия в значительной степени скрадываются большой длительностью импульса быстрых нейтронов, характерной для ИБР-2 (~ 240 мкс), вносящего основной вклад в формирование импульса тепловых нейтронов, испускаемых замедлителем (см., например, /18/). Скачанное выше иллюстрируется рис. 3 и 4, позволяющими составить представление об относительных вкладах, которые в условиях реактора ИБР-2 вносят в формирование импульса медленных нейтронов как собственное время жизни этих нейтронов в замедлителе, так и длительность импульса быстрых нейтронов источника (реактора).

1.4. Таким образом, изложенные выше соображения дают основание заключить, что оптимальным вариантом ХЗ в условиях пучка №2 реактора ИБР-2 будет водяной ХЗ гребенчатой геометрии. При охлаждении этого замедлителя до $T = 20\text{К}$ можно ожидать выигрыш интенсивности холодных нейтронов ($\lambda > 3-6\text{А}$) по сравнению со штатным замедлителем в ~ 10-15 раз. При этом подшерстка импульса холодных нейтронов составит ~ (300-350) мкс, т.е. увеличится по сравнению с существующей на (15-20)%, что не повлияет заметным образом на разрешающую способность спектрометра ДИИ-2ПН. В то же время, рост интенсивности холодных нейтронов позволит перейти на работу с более низкими начальными энергиями нейтронов, что, как следует из рис.1, дает возможность существенно улучшить разрешение спектрометра ДИИ-2ПН.

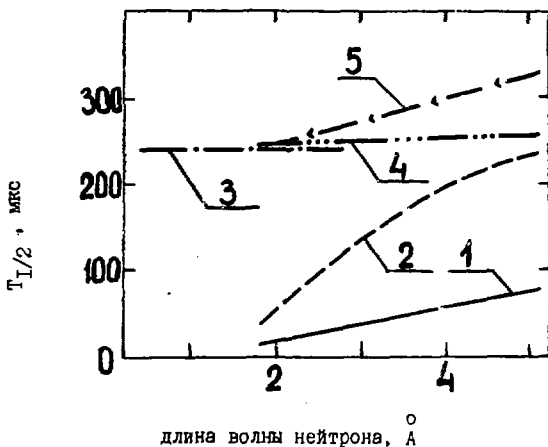


Рис. 3. Полуширина нейтронного импульса, испускаемого метановым и водяным замедлителями ($T=20\text{K}$, размеры $25 \times 25 \times 5 \text{ см}^3$)

1 - метан	} источник быстрых нейтронов;
2 - вода	
3 - полуширина импульса быстрых нейтронов ИБР-2;	
4 - метан	} источник быстрых нейтронов ИБР-2.
5 - вода	

2. ДЕТАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ НЕЙТРОННО-ФИЗИЧЕСКИХ ХАРАКТЕРИСТИК ВОДЯНОГО ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ

Для того, чтобы уточнить и конкретизировать общие соображения об оценке, высказанные выше в связи с выбором холодного замедлителя для пучка № 2, необходимо провести детальный анализ нейтронно-физических характеристик предлагаемого варианта ХЗ с целью оптимизации этих характеристик применительно к условиям спектрометра ДЛН-2ВМ и пучка № 2. Если говорить конкретнее, речь идет о выборе такой геометрии ХЗ, которая обеспечила бы максимальный выход холодных нейтронов при тепловыделении, отвод которого

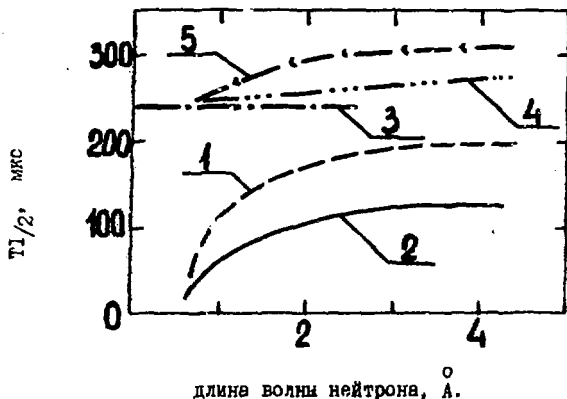


Рис. 4. Полуширина нейтронного импульса для плоского и гребенчатого замедлителей (вода комнатной температуры)

- | | |
|---|-------------------------------------|
| 1 - гребенчатый замедлитель | } источник быстрых нейтронов ИБР-2; |
| 2 - плоский замедлитель | |
| 3 - полуширина импульса быстрых нейтронов | } источник быстрых нейтронов ИБР-2. |
| 4 - плоский замедлитель | |
| 5 - гребенчатый замедлитель | |

был бы практически реализуем. С этой целью методом Монте Карло был проведен ряд вариантных расчетов, результаты которых кратко представлены ниже.

2.1. Общая характеристика программы моделирования переноса нейтронов методом Монте Карло.

Методы Монте Карло дают возможность: практически точно моделировать геометрию любых трехмерных систем, включая возможность детального описания конструкций с десятками тысяч конструктивных элементов; без каких-либо упрощений моделировать на базе имеющихся ядерных данных физические процессы взаимодействия нейтронов с веществом; получать информацию о широком наборе реакторных параметров, в том числе недоступную из физических экспериментов. Таким

образом, метод Монте Карло позволяет создать весьма точную математическую модель рассчитываемой конструкции. Точность современных программ МК лимитируется только точностью имеющихся в распоряжении научного сообщества ядерных данных.

Оптимизационные расчеты выполнены с помощью пакета MCSU 2.0, который был разработан и развивается в Российском научном центре "Курчатовский институт" для проведения реперных нейтронно-физических расчетов реакторов / IУ . Версия MCSU -2.0 обладает следующими основными свойствами: константное обеспечение расчетов базируется на рекомендованных нейтронно-физических данных; используется детальное описание энергетической зависимости сечений с любым числом точек по энергии во всей области энергий; имеется возможность моделирования непрерывного изменения энергии при упругом рассеянии и неупругих процессах во всей области энергий; моделирование столкновений в области термализации проводится с учетом химических связей, теплового движения ядер и когерентных эффектов; допускается групповое и подгрупповое описание сечений; возможно моделирование практически без упрощений сколь угодно сложных по конструкции трехмерных систем на основе алгоритмов комбинаторной геометрии с телами, ограниченными любыми поверхностями второго порядка. Константное обеспечение включает библиотеки: КОРТ - библиотека тепловых констант, область энергий от нуля до 5эв ; LIPAK - резонансные параметры нуклидов в области разрешенных резонансов; БНАБ/ТР - 26-групповая система констант (расширенная и модифицированная версия системы БНАБ), Для подготовки библиотеки констант переноса холодных нейтронов мы использовали программу ТЕРМАК /20/ , которая рассчитывает групповые микроконстанты для области термализации (0, ..., 5 эв) и записывает результаты в библиотеку ТЕРКОН . Сечения рассеяния в зависимости от энергии и типа элемента вычисляются по разным моделям: одноатомного газа, тяжелого газа, в некогерентном гауссовском приближении по заданному обобщенному фонному спектру с использованием библиотеки фонных спектров ВРЗ .

Как правило, пользователь работает с уже готовой библиотекой ТЕРМАК . В частности, для расчетов холодных замедлителей методом Монте Карло по MCSU составлена 40-групповая библиотека с верхней границей 0.215 эв, с равномерным разбиением по скоростям нейтронов, сопряженная с библиотекой БНАБ.

При расчете сечений рассеяния на воде нами использовалась модель обобщенного фононного спектра Коппеля /21/, а при расчете сечений рассеяния на метане - модель из работы /13/. Быстрый спектр нейтронов источника, падающий на замедлитель, формировался на основе экспериментальных данных, представленных в /22/. Подроности расчета и связанные с ним детали можно найти в работе /23/.

2.2. Расчет характеристик холодного замедлителя методом Монте-Карло.

Рассчитываемая геометрия представлена на рис. 5. Предполагалось, что замедлитель состоит из двух пластин площадью 200×200 см и толщиной d_1 и d_2 . Пластины представляют собой коробки, сделанные из алюминия с толщиной стенки 0.5 см и наполненные водой. Левая пластина, имитирующая предзамедлитель, теплая ($T=300K$) и положение в пространстве её грани, обращенной в сторону активной зоны, фиксировано. Вторая пластина холодная ($T=20K$ или $100K$). Зазор между ними ($x = 1$ см), имитирующий вакуумную изоляцию, также остается постоянным. Нейтроны всех 40 энергетических групп, утекающие из замедлителя, регистрировались плоским детектором, положение которого в пространстве фиксировано. Таким образом, рассчитывался поток нейтронов утечки, покидающих поверхность замедлителя в пределах телесного угла, определяемого детектором, и проинтегрированный по всей поверхности замедлителя (подробности см. в /23/). Расчет включал в себя несколько серий, в каждой из которых при неизменной толщине предзамедлителя d_1 варьировалась толщина холодного замедлителя d_2 . В свою очередь серии расчетов отличались одна от другой толщиной предзамедлителя d_1 . Геометрические характеристики вариантов показаны на таблице I:

вар	I-1	I-2	I-3	I-4	2-2	2-3	2-4	3-2	3-3	3-4	4-2	4-3	4-4
d_1 см	5	5	5	5	3	3	3	1	1	1	1	3	6
d_2 см	0	1	3	5	1	3	5	1	3	5	0	0	0

В качестве примера на рисунках 6 и 7 показаны потоки утечки, полученные в двух сериях расчетов. Для сглаживания статистики, необходимость которого особенно сильно проявлялась в области

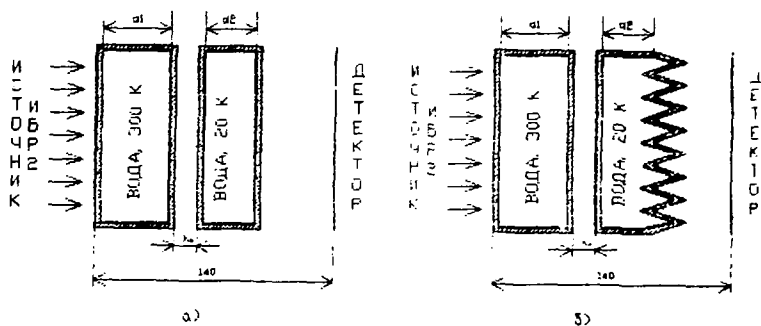


Рис. 5. Геометрия рассчитываемых замедлителей:
 а) плоского; б) гребенчатого.

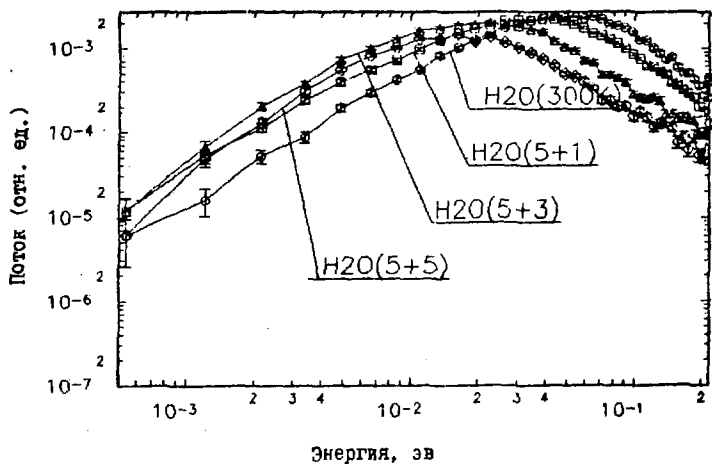


Рис. 6. Потоки утечки холодных нейтронов для первой серии расчетов.

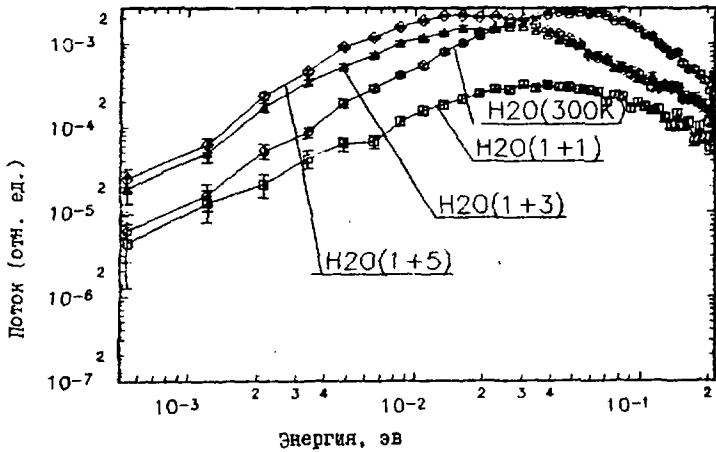


Рис. 7. Потоки утечки нейтронов для третьей серии расчетов.

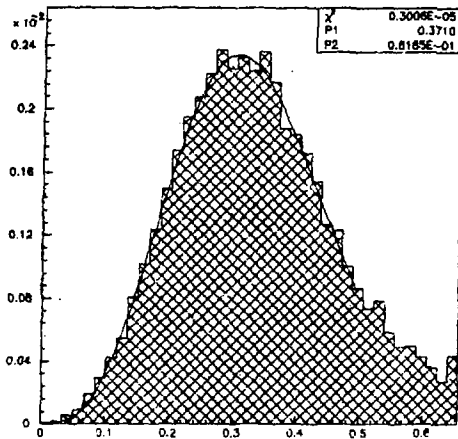


Рис. 8. Аппроксимация потока утечки спектром Максвелла (вода, 50 см, 300°)

низких энергий, расчетные кривые аппроксимировались соответствующим обрезом подобранными спектрами Максвелла. Пример такой аппроксимации для варианта I-I показан на рис.8. В каждой серии расчетов выбирался вариант, соответствующий максимальному потоку утечки, который нормировался на спектр варианта I-I, принятого за базовый. Полученные в результате этого коэффициенты, называемые факторами выигрыша, представлены на рис.9.

Из анализа кривых рис.9 следует, что наибольший выигрыш в интенсивности холодных нейтронов дает холодный замедлитель толщиной 5-6 см без предзамедлителя. Однако, как будет показано ниже, этот вариант может оказаться неприемлемым с точки зрения тепловыделения и мы будем вынуждены остановиться на вариантах I-2 или I-3, которые близки по даваемым ими факторам выигрыша.

Как отмечалось выше, в наших условиях весьма важным оказывается оценка возможностей гребенчатого замедлителя. Такой расчет был выполнен для геометрии, представленной на рис.5. К пластине толщиной 3 см добавлены зубья высотой 4 см с шагом 4 см. Поток утечки с поверхности гребенчатого замедлителя сильно анизотропен, и чтобы увидеть реальный эффект выигрыша, необходимо фиксировать только те нейтроны, которые покидают замедлитель под малыми углами к общей нормали. В нашем случае этот угол составлял $\theta = 1,85^\circ$, что примерно соответствовало естественной расходимости нейтронного пучка в условиях спектрометра ДИН-2ПИ. Использование такого угла требовало для получения необходимой статистики увеличения счетного времени примерно в 10 раз. Сравнение плоского и гребенчатого замедлителей показано на рис.10. Видно, что использование последнего позволяет поднять интенсивность холодных нейтронов по меньшей мере в 2 раза, и компенсировать проигрыш водяного замедлителя метановому (см. рис.2).

3. ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ ВОДЯНОГО ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ

3.1. Радиолитиз льда и связанные с ним эффекты

Анализ явлений, возникающих в процессе взаимодействия льда с ионизирующими излучениями (быстрыми нейтронами, γ -лучами) необходим, прежде всего, по двум причинам. Во-первых, радиолитиз льда приводит к появлению газообразных водорода и кислорода во всеми вытекающими отсюда последствиями, и, во-вторых, образование

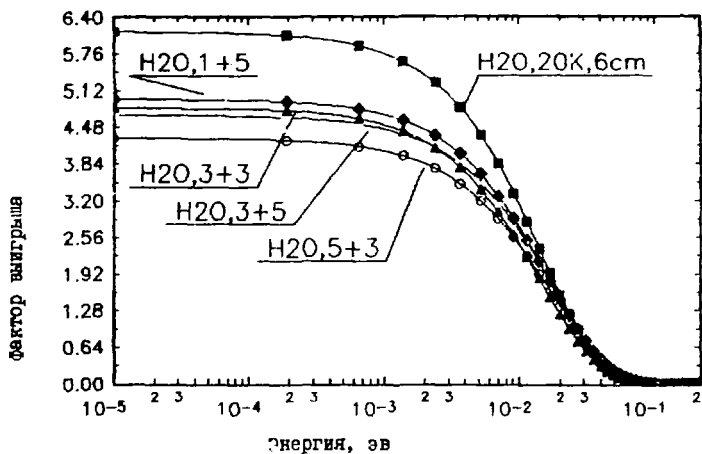


Рис. 9. факторы выигрыша для лучших вариантов по сериям.

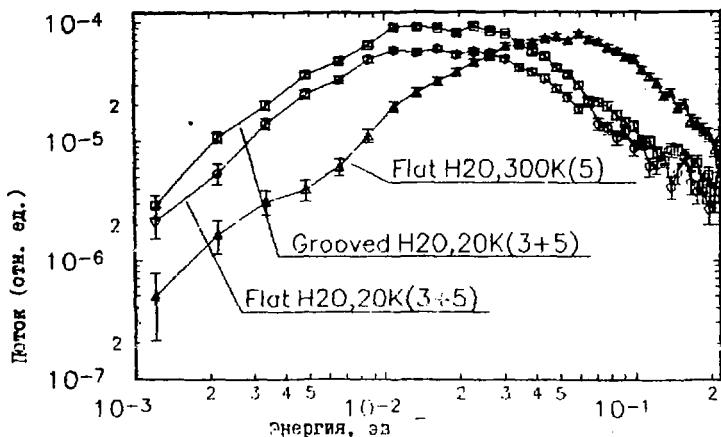


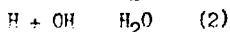
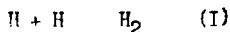
Рис. 10. Поток утечки холодных нейтронов для плоского и гребенчатого замедлителей.

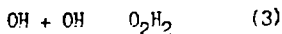
льда связано с накоплением в нем так называемой вигнеровской энергии, что в определенных условиях может приводить к резким спонтанным скачкам температуры замедлителя и даже его взрывам /24/ .

Если радиолиз жидкой воды изучен весьма подробно и в широком диапазоне температур /25,26/ , что связано с её активным использованием в энергетических и исследовательских реакторах, то информация, относящаяся к радиолузу льда, представляется более скудной. В основном это работы 60-х годов, касающиеся радиолиза льда в температурном интервале (4,2 - 77)К при облучении его γ -лучами Co^{60} /27-29/ и электронами /30,31/ . Основные выводы, касающиеся радиолиза льда при низких температурах, которые можно сделать на основании этих работ, состоят в следующем:

а) Первичными продуктами радиолиза льда, которые могут быть обнаружены и проанализированы экспериментально (методом ЭПР), являются атомы H и радикалы OH. Их выходы в температурном интервале (4 - 77)К (усредненные по данным различных авторов) составляют $G_H = G_{OH} = (0,2 - 0,3)^{рад} / 100 \text{ зв}$. Анализ концентрации первичных продуктов радиолиза показывает, что при $T = 4\text{K}$ кривая накопления H имеет тенденцию к выполаживанию. В работе /30/ сообщается, что концентрация атомарного водорода для этой температуры достигает насыщения при дозе $1,6 \cdot 10^7 \text{ рад}$ (10^{21} эв/г) и равна $C_H = 8 \cdot 10^{-3} \text{ м}$. С ростом температуры концентрации насыщения H убывает примерно линейным образом (при 25К она составит $4,5 \cdot 10^{-3} \text{ м}$), и при $T = 77\text{K}$ следов атомарного водорода в облученном льде обнаружить уже не удастся /28,30/ . Кривая накопления радикалов OH для этой температуры (77К) достигает насыщения $C_{OH} = 0,6 \cdot 10^{-3} \text{ м}$ (в /31/ дается цифра $0,8 \cdot 10^{-3} \text{ м}$). Согласно /28/ , можно предположить, что при $T = 4\text{K}$ эта концентрация будет на порядок выше. Предполагая, что и для концентрации насыщения OH также имеет место линейная зависимость от температуры, при 25К получим: $C_{OH} (25\text{K}) = 4 \cdot 10^{-3} \text{ м}$;

б) Основным механизмом, управляющим температурным поведением первичных продуктов радиолиза, являются процессы рекомбинации, включающие в себя три основные реакции:





Реакции (1) и (2) вследствие более высокой подвижности водорода идут при всех исследованных температурах (от 4К и выше), тогда как (3) становится возможной лишь при нагреве выше 77К и плавлении.

На первой стадии облучения скорости реакций (1) и (2) примерно одинаковы, однако по мере накопления радикалов OH реакция (2) становится преобладающей. Анализ облученных образцов на содержание в них молекулярного водорода и перокси водорода, проведенный после плавления (как манометрически, так в масспектроскопически), показывают, что содержание H_2 и H_2O_2 в этих образцах не превышает 10% от того, что можно было бы ожидать, если бы в процессе рекомбинации реакции (1) и (3) были бы преобладающими. Таким образом, реакция (2) представляет основной канал, которому идет исчезновение первичных продуктов радиолиза. Это крайне благоприятное обстоятельство смягчает ряд проблем, связанных с накоплением и удалением из облученного льда продуктов радиолиза. Выход конечных продуктов радиолиза: газообразного водорода и перокси водорода составляет $G_{\text{H}_2} = 0,1$ молек./100 эв и $G_{\text{H}_2\text{O}_2} = 0,2$ молек./100 эв и, как экспериментально установлено в /27/, при $T = 100\text{K}$ от температуры не зависят. Концентрации H_2 и H_2O_2 , найденные после плавления в образцах, облученных дозами $D = 2 \cdot 10^{21}$ эв/г, составляют $\sim 10^{-3}$ м /27,28/. В /24/ приводятся данные, согласно которым на твердометановом замедлителе нейтронного источника IFRS (АНЛ, США) за неделю работы (мощность дозы $\sim 1,2 \cdot 10^7$ эв/г, полная доза за рабочий цикл $\sim 7 \cdot 10^{22}$ эв/г) было накоплено 5,4 мол.% газообразного водорода. Если принять во внимание, что выход водорода на метане в ~ 40 раз выше, чем на воде (см. табл. I), то приводимая выше концентрация H_2 , полученная для льда, находится с данными /24/ в удовлетворительном согласии.

Что касается кислорода, то найденная в /28/ его концентрация в облученных образцах после плавления на порядок ниже, чем водорода, а в /27,32/ утверждается, что после облучения льда примерно такой же дозой, следов кислорода обнаружено не было.* Последний вывод находит подтверждение в опыте эксплуатации хо-

* Согласно данным /30/ (табл. 1.1.) выход атомарного кислорода в жидкой воде $G_{\text{O}} = 0,1$ молек./100 эв.

лодного тяжеловодного замедлителя на реакторе MBSR /II/
(подробнее см. ниже).

в) Как отмечалось выше, в процессе облучения льда часть первичных продуктов радиолиза накапливается в нерекombинированном виде. Это может привести к тому, что по достижении определенной концентрации продуктов радиолиза или подогреве замедлителя, стимулирующей их подвижность, возникает процесс лавиной рекомбинации, что, в свою очередь, приводит к выделению скрытой энергии, в результате следствием резкий скачок температуры замедлителя, или, даже его тепловой взрыв. Такие случаи имели место на холодных твердометановых замедлителях /24/.

Используя приведенные выше концентрации насыщения для первичных продуктов радиолиза льда H и OH в γ -облученном льде, предполагая, что 90% этих продуктов будет рекомбинировать через реакцию (2), а оставшиеся 10% через реакции (1) и (3), и приняв для теплот этих реакций значения, данные в /33/ ($Q(1) = 432^{\text{KJ}}/\text{моль } \text{H}_2$, $Q(2) = 484^{\text{KJ}}/\text{моль } \text{H}_2\text{O}$; $Q(3) = 197^{\text{KJ}}/\text{моль } \text{H}_2\text{O}_2$) получим скрытую энергию при 4K:

$$Q(4\text{K}) = 6,33^{\text{KJ}}/\text{л} = 1,5 \text{ ккал на } 1 \text{ дм}^3 \text{ льда} = 1,5^{\text{ккал}}/\text{см}^3.$$

При 25K эта величина составит $Q(25\text{K}) = 0,8^{\text{ккал}}/\text{см}^3$. Чтобы определить, какой скачок температуры может вызвать такое выделение тепла (без учета возможных посторонних потерь, т.е. оценка по максимуму), следует помнить, что в области низких температур теплоемкость льда мала и сильно зависит от температуры /34/. Поэтому скачок температур, соответствующий выделению тепла определим из уравнения:

$$Q = \int_{T_{\text{рав}}}^{T_{\text{max}}} C(T) dT \quad (1)$$

Предположив линейную температурную зависимость для $C(T)$ и подставив соответствующие цифры, при $T_{\text{рав}} = 4\text{K}$ находим: $T_{\text{max}} = 35\text{K}$.

3.2. Опыт эксплуатации холодного тяжеловодного замедлителя на реакторе MBSR.

Изложенная выше картина радиолиза льда находится в согласии с практикой эксплуатации современных холодных замедлителей. В частности, выводы, сделанные на основе опыта работы тяжеловодного холодного замедлителя на реакторе MBSR (Национальный институт стандартов и технологии, США /II/) состоят в следующем:

а) при работе реактора циклами по 5 недель при средней тепловой нагрузке на замедлитель $0,04^{BT}/г$ (полная поглощенная энергия за рабочий цикл $\sim 10^{24}$ эв/г) выделения газообразного водорода отмечено не было; он появлялся лишь при отогреве замедлителя; появления газообразного кислорода не было отмечено никогда; в воде отработавшего 16 недель замедлителя (3 цикла) находили слабый раствор перекиси водорода (к сожалению, конкретных цифр, связанных с выходом продуктов радиолиза льда в /II/ не приводятся);

б) основная мера безопасности, связанная с выходом газообразных продуктов радиолиза, состояла в том, чтобы воспрепятствовать попаданию в объем замедлителя кислорода из внешней атмосферы. С этой целью замедлитель и соответствующие коммуникации окружались гелиевым одеялом, и буферный гелий тщательно контролировался на содержание в нем посторонних примесей;

в) для предотвращения тепловых взрывов за счет накопления внутренней энергии непрореагировавших продуктов радиолиза (а такие случаи неоднократно имели место на твердометановых холодных замедлителях /24/) температура охлаждающего замедлитель гелия поднималась с 25K до 30K каждые 48 часов на 1 час, чтобы стимулировать рекомбинационные процессы, после чего замедлитель вновь переводился на рабочий режим; во время остановки реактора между циклами замедлитель поддерживался при $T = 100K$.

3.3. Что можно ожидать в условиях пучка № 2 реактора ИБР-2.

а) Радиолиз

При мощности реактора ИБР-2 $w = 2$ мвт в месте расположения замедлителя на пучке № 2 мощность дозы составляет /22,35/:

$$D_0 = 10^{18} \text{ эв/г.с}$$

а с учетом предзамедлителя (2 см воды, см /35/) примерно в 1,5 раза меньше. Таким образом, полная доза, поглощенная замедлителем за рабочий цикл (2 недели, 260 часов) составляет (5-10) 10^{23} эв/г. Эта цифра близка к тому, что имело место на реакторе ИБР-2 (за 5-недельный рабочий цикл) и, следовательно, накопленные там опыт и выводы относительно процесса радиолиза будут справедливы и в нашем случае. Однако, поскольку конкретных цифр в /II/ не приводится, мы сделаем оценку основных эффектов радиолиза льда: концентрации и конкретных продуктов радиолиза (в том

числе газообразных) и запасенной энергии, опираясь на данные, полученные в упоминавшихся выше экспериментах по γ -облучению льда и ввода поправки, учитывающие отличия условий этих экспериментов от радиационных условий пучка № 2.

Необходимо принять во внимание, что, во-первых, протоны отдачи, которые вносят главный вклад в процесс радиолиза льда на реакторе ИБР, имеют иную линейную потерю энергии (ЛПЭ), чем электроны, рождаемые γ -лучами. Поэтому трековые выходы первичных продуктов радиолиза для них (а при низких температурах все рекомбинационные процессы во льде носят только внутритрековый характер) оказываются отличными от таковых для γ -лучей, а именно, в ~ 2 раза ниже последних (см./26/, табл. I.1. и I.2.). Во-вторых, мощность дозы в экспериментах с γ -лучами составляла $\sim 10^{16}$ эв/г.с, тогда как в условиях пучка № 2 она оценивается в $\sim 10^{18}$ эв/г.с / 22,35/.

Используя предложенное в /24/ выражение для процесса накопления первичных продуктов радиолиза:

$$N(t) = N_{\infty} \operatorname{th}(t/), \quad (2)$$

где $N_{\infty} = \sqrt{R/K}$ - концентрация насыщения, $R = D_0 G$ - скорость создания первичных продуктов радиолиза (G - выход, D_0 - мощность дозы), K - коэффициент рекомбинации, находим, что в наших условиях концентрация насыщения N_{∞} будет в $\sqrt{100/2} \approx 7$ раз выше, чем это имело место для γ -лучей, т.е. составит (оценка по максимуму): $\sim 4 \cdot 10^{-2}$ М по радикалам ОН и $\sim 5 \cdot 10^{-2}$ М по атомарному водороду. Следовательно, запасенная энергия также увеличится примерно на порядок (до $10^{\text{кал}}/\text{г}$) и соответствующий этой энергии скачок температур, оцененный по (1) при $T_{\text{раб}} = 25\text{К}$, составит $\Delta T = 70^{\circ}$. Это весьма серьезное обстоятельство, и для предотвращения эффектов спонтанной рекомбинации должны быть приняты специальные меры, например, подобные тому, как это делалось в условиях реактора NBSR /II/.

Оценим концентрацию газообразного водорода, которая накопится в земедятеле за рабочий цикл. Приняв полную дозу поглощенной энергии $D = 10^{24}$ эв/г и выход молекулярного водорода

$$G_{\text{H}_2} = 0,07 \frac{\text{молек}}{100 \text{ эв}} / 32/, \text{ получаем:}$$

$$C(\text{H}_2) = 10^{24} \cdot 0,07 \cdot 10^{-2} = 0,7 \cdot 10^{21} \frac{\text{молек}}{\text{г}} \text{H}_2 = 1 \text{ М/дм}^3$$

Из опыта работы холодного тяжеловодного замедлителя известно/II/, что весь этот газ при рабочей температуре $T = 25\text{K}$ находится в связанном состоянии и в окружающую атмосферу не выходит. Поэтому его накопление при определенных концентрациях может привести к радиационному газовому распуханию. Однако, полученная выше концентрация в 1% означает, что 1 молекула H_2 приходится на 50 молекул H_2O . Этого явно недостаточно, чтобы вызвать какие-то заметные (макроскопические) деформации в кристаллической структуре льда. Следует заметить также, что согласно опыту, накопленному в радиационной физике общий флюенс быстрых нейтронов, получаемый замедлителем на пучке № 2 за рабочий цикл ($\sim 10^{20}\text{н/см}^2$) сравнительно мал, чтобы проявились какие-либо эффекты радиационного распухания.

Наконец, следует подчеркнуть, что выход продуктов радиолиза заметно возрастает, если в воде присутствуют посторонние примеси, в том числе газовые /26/. Поэтому вода, используемая в замедлителе, предварительно должна быть тщательно очищена и обезгажена.

б) Тепловыделение и теплоотвод.

Данные по тепловыделению в воде и алюминии в условиях реактора ИБР-2 в месте расположения замедлителей на реакторе ИБР-2 были получены экспериментально в работе /35/. Согласно этим данным удельное тепловыделение в воде составляет $Q(\text{H}_2\text{O}) = 0,141\text{ Вт/г Мв}$ и в алюминии $Q(\text{Al}) = 0,05\text{ Вт/г Мв}$.

Если принять, что предполагаемый объем воды в замедлителе $V_{\text{H}_2\text{O}} = 3\text{ л}$, а объем металла алюминиевого контейнера $V_{\text{Al}} = 1,5\text{ дм}^3$, т.е. 4 кг, то полное тепловыделение в замедлителе:

$$Q = 0,141 \cdot 3 \cdot 10^3 + 0,05 \cdot 4 \cdot 10^3 = 850\text{ Вт} + 400\text{ Вт} = 1250\text{ Вт}.$$

При использовании водяного предзамедлителя толщиной 2 см эта цифра, согласно данным /35/, будет уменьшена до

$$Q = 1250 \cdot 0,6 = 750\text{ Вт}.$$

Снять такое количество тепла вполне под силу криогенным установкам, выпускаемым отечественной промышленностью. Отвод тепла от замедлителя должен быть организован таким образом, чтобы свести к минимуму градиенты температур в замедлителе, т.е. обеспечить эффективный теплоотвод из его внутренних областей. С этой целью объем замедлителя представляется целесообразным секционировать, например, алюминиевыми пластинами. Задача теплоотвода осложняется еще тем, что в процессе замерзания лед растрескивается. И свизи

с этим для улучшения теплового контакта в самом теле льда внутренний объем замедлителя следует заполнить газом с хорошей теплопроводимостью (например, гелием).

3.4. Конструкция холодного замедлителя, Общая технологическая схема установки.

Теперь, когда мы составили представление об основных физических процессах, которые могут иметь место в холодном замедлителе в условиях пучка № 2, можно обсудить его возможную конструкцию. Эта конструкция показана на рис. II и I2. Холодный замедлитель представляет собой алюминиевый кожух в форме прямоугольной пластины, наполненной водой (размеры см. на рис. 5). Одна плоскость этой пластины изготовлена в форме "гребенки" (1). Для улучшения теплоотвода от внутренних областей замедлителя кожух секционирован вертикальными алюминиевыми пластинами (2). К нижней части кожуха примыкает полость (3), заполняемая холодным гелием. Полость соединена с V-образной охлаждающей трубкой (спиралью) (4), находящейся в теле замедлителя. Заполнение замедлителя водой и её слив проводится через трубку (5), подходящую к нижней грани кожуха (6). При этом внутренняя (рабочая) полость замедлителя предварительно откачивается и заполняется буферным гелием.

В верхней части внутренней полости замедлителя находится поплавок (7), который ограничивает уровень заполнения (замыканием контакта (8)) так, чтобы оставшийся свободный объем был достаточен для увеличения объема льда, происходящего в процессе замерзания. Этот объем, однако, не должен быть излишним по сравнению с тем, что необходимо, т.к. согласно /26/, выход газообразных продуктов радиолиза увеличивается при наличии свободного объема. Для предотвращения деформации кожуха процесс замораживания воды должен начинаться снизу и последовательно идти вверх. С этой целью в начальный момент охлаждения холодный гелий проходит напрямую через полость (3), не заходя в спираль (4). Расширяясь по мере замерзания, вода (или лед) поднимает поплавок (7), который в свою очередь тянет вверх заслонку (12), перекрывающую прямой ток холодного гелия через полость, в результате чего последний оказывается вынужденным циркулировать через спираль (4). Буферный гелий, оставшийся в свободном объеме (9) на-

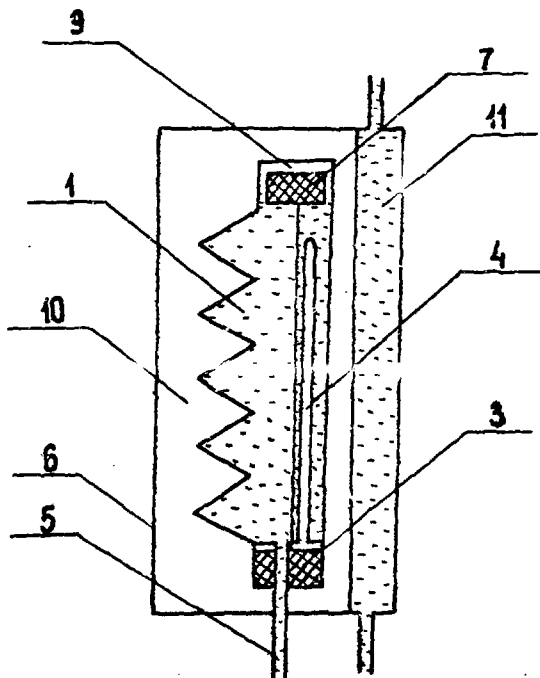


Рис. II. Конструкция холодного замедлителя.
Пояснения в тексте.

до льдом выполняет двойную роль:

а) заполняя трещины и пустоты, возникшие в объеме льда в процессе замерзания, гелий обеспечивает лучшую его теплопроводность;

б) буферный гелий постоянно контролируется на содержание в нем газообразного водорода, и в случае его появления в контуре включается циркуляция, прогоняющая гелий через систему очистки. Циркуляция буферного гелия включается также автоматически, если температура замедлителя поднимается до 100К. Весь корпус замедлителя помещается в вакуумный кожух (I0), к которому со стороны реактора примыкает предзамедлитель (II), также представляющий собой алюминиевую полую пластину, заполненную циркулирующей водой подобно тому, как это делается на штатных водяных замедлителях реактора ИБР-2.* Вакуумный кожух замедлителя и вакуумная изоляция коммуникаций холодного гелия, будучи единой системой, постоянно контролируются на вакуум, и в случае его ухудшения до также дается команда на включение циркуляции буферного гелия.

Общая технологическая схема установки и основные функциональные связи отдельных её систем представлены на рис.12. Комплекс холодного замедлителя включает в себя следующие системы: а) систему охлаждения (циркуляция холодного гелия) с криогенной гелиевой установкой (I); б) систему наполнения замедлителя водой, включая устройства её очистки и обезгаживания (II); в) вакуумную систему (III), включающую в себя вакуумный кожух замедлителя, вакуумную изоляцию коммуникаций холодного гелия, а также используемую для откачки рабочего объема замедлителя перед наполнением; г) систему циркуляции буферного (IV) гелия с контролем его по водороду в системах очистки (V); д) систему измерения и контроля температуры (VI).

Проведенный выше анализ холодного водяного замедлителя применительно к условиям пучка № 2 реактора ИБР-2 и сделанные в результате этого анализа выводы о физических и технологических

* Если возможности КТУ, включенной в систему УЗ, окажутся достаточными для снятия тепловыделения 1,5 кВт, необходимость в предзамедлителе может отпасть.

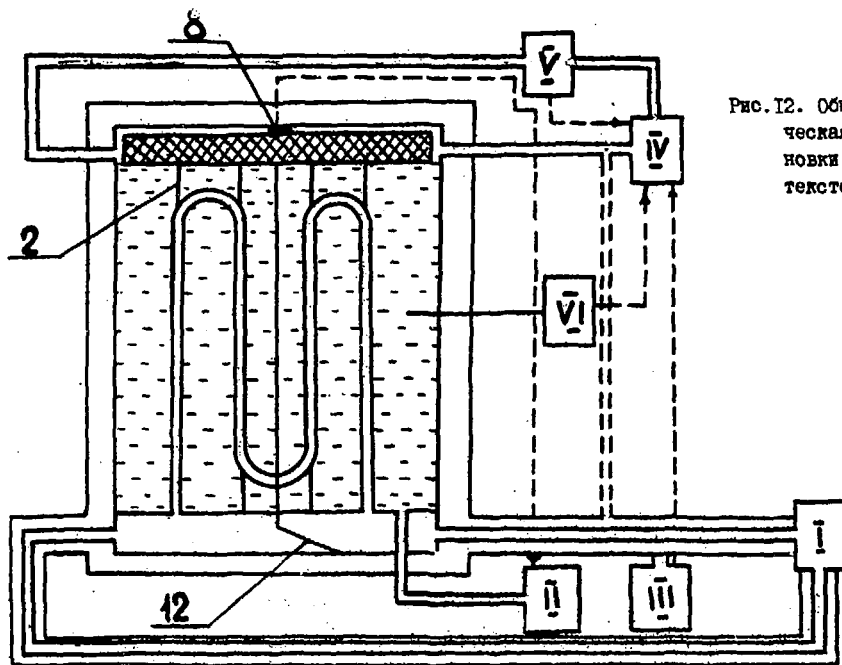


Рис. 12. Общая технологическая схема установки. Пояснения в тексте.

особенностях такого замедлителя следует рассматривать как начальный этап, за которым последует более детальная и глубокая проработка соответствующих вопросов. Сделанные выводы в предположения могут послужить основой составления технического задания на проектирование холодного замедлителя для спектрометра ДИН-2ПИ.

ЛИТЕРАТУРА

1. Абрамов А.В., Благовещенский Н.М., Блинов Б.К. и др. Спектрометр ДИН на пучках ИБР-2 и ИБР-30. Основные характеристики и направления исследований. - Атомная энергия, 1989, т. 66, № 3, с. 316 - 321.
2. Guide to neutron research facilities at the ILL, Grenoble, 1988.
3. Guide to neutron research facilities at the ISIS, RAL, 1989.
4. Loong C., Ikeda S., Carpenter J. The resolution function of a pulsed source neutron chopper spectrometer. Nucl. Instr. and Meth. 1987, v. 260, № 2 - 3, p. 381 - 402.
5. Корнилов В.В., Назаров В.М., Сисоев В.П., Шамчук В.П. Характеристики зеркальных нейтронпроводов, изготовленных из стекла типа FLOAT. Сообщения ОИЯИ, P13-80-496, Дубна, 1980, 7 с.
6. Proc. of Intern. Workshop on Cold Neutron Sources. LANSCE, Los-Alamos, US, 1990, March 5 - 8.
7. Carpenter J. Cold moderators for pulsed neutron sources. In: 6, p. 131 - 153.
8. Землянов М.Г., Головин А.Е., Миронов С.П. и др. Спектрометр по времени пролета с источником холодных нейтронов. ПТЭ, 1973, № 5, с. 34 - 38.

9. Inoue K., Kiyonagi Y., Iwasa H. An accelerator based cold neutron source. *Nucl. Instr. & Meth.*, 1982, v. 192, # 2 - 3, p. 129 - 135.
10. Чернышев А.А., Ишмаев С.Н., Садиков И.П. Импульсный источник тепловых и холодных нейтронов на ускорителе "Факел". *Ат. энергия*, 1989, т. 66, # 4, с. 267 - 270.
11. Rowe J., Roger D. Existing cold sources at US reactors. *In: 6*, p. 121 - 126.
12. Шабалин Е.П., Рогов А.Д. Сравнительные характеристики различных вариантов модернизации импульсного источника нейтронов ИБР-2. *Материалы Международного рабочего совещания по перспективным импульсным источникам нейтронов. Дубна, 1992*, с. 45 - 55.
13. Pikton D., Rosa D., Taylor A. Optimization studies for a moderator on a pulsed neutron source. *J. of Phys. D.*, 1982, v. 15, p. 2369 - 2400.
14. Inoue K. On the 20K CH₄ moderator and its applicability to a pulsed cold neutron source. *Nucl. Instr. & Meth.*, 1983, v. 216, # 3, p. 537 - .
15. Гундорин Н.А., Назаров В.М. Эффективный замедлитель для импульсных источников нейтронов. *Сообщение ОИЯИ, РЗ-80-721, Дубна, 1980*, 6 с.
16. Ишмаев С.Н., Садиков И.П., Чернышев А.А. Выбор и оптимизация замедлителей для импульсного источника медленных нейтронов. *Препринт ИАЗ-2019, М., 1970*, 40 с.
17. Ishikawa Y., Ikeda S., Kiyonagi Y., et al. Grooved cold moderator at KENS. *Proc. of ICANS-VII, 1983*, p. 230 - 235.
18. Моле Э., Пола Н., Полеску М. Функция разрешения нейтронного спектрометра по времени пролета в обратной геометрии на реакторе ИБР-2. *Сообщение ОИЯИ, РЗ-85-279, Дубна, 1980*, 12 с.

19. Майоров Л.В., Оджевич М.С. Нейтронно-физические константы в расчетах реакторов на тепловых нейтронах. М.: Энергоатомиздат, 1988.
20. Гомин Е.А., Майоров Л.В. ВАНТ, сер.: Физика и техника ядерных реакторов, 1982, вып. 5(27), с. 70.
21. Koppel J., Young J. Neutron scattering by water taking into account the anisotropy of the molecular vibrations. Nucl. Sci. Eng., 1964, v. 19, № 4, p. 412 - 417.
22. Архипов В.А., Комочков М.М., Кулигов С.Б., Стпичински А. Физический пуск реактора ИБР-2. Измерение спектра нейтронов утечки. Препринт ОИАИ, Р13-12466, Дубна, 1979.
23. Рогов А.Д. Исследование параметров холодных замедлителей нейтронов с помощью метода Монте-Карло. Сообщение ОИАИ, Р11-85-554, Дубна, 1985, 7 с.
24. Carpenter J. Thermally activated release of stored chemical energy in cryogenic media. Nature, 1987, v. 330, № 6146, p. 358 - 360.
25. Аллен А. Радиационная химия воды и водных ресурсов. М.: Госатомиздат, 1963, 203 с.
26. Бяков В.М., Ничипоров Ф.Г. Радиоллиз воды в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1990, 177 с.
27. Chormley J., Steward A. Effects of γ -radiation on ice. J. of Am. Chem. Soc., 1961, v. 78, № 13, p. 2934 - 2939.
28. Siegel S., Flournoy J., Baum L. Irradiation yields of radicals in γ -irradiated ice at 4.2K and 77K. J. of Chem. Phys., 1961, v. 34, № 5, p. 1782 - 1788.
29. Flournoy J., Baum L., Siegel S. Disappearance of trapped hydrogen atoms in γ -irradiated ice. J. of Chem. Phys., 1962, v. 36, № 8, p. 2229 - 2230.
30. Piette L., Rempel R., Weaver H., Flournoy J. EPR studies of electron irradiated ice and solid hydrogen. J. of Chem. Phys., 1959, v. 30, № 6, p. 1623- 1624.

31. Gunter T. Electron paramagnetic resonance studies of radicals of H_2O in the solid state. J. of Chem. Phys., 1967, v. 46, № 10, p. 3818 - 3820.
32. Siegel S., Rennick R. Isotope effects in the 77K γ -irradiated ice. J. of Chem. Phys., 1966, v. 45, № 10, p. 3712 - 3720.
33. Энергия разрыва химических связей. Потенциалы ионизации и сродство к электрону. Справочник под ред. В.П.Кондрашева. М.: Изд. АН СССР, 1962.
34. Зацепина Г.Н. Физические свойства и структура воды. М.: Изд. МГУ, 1987, 172 с.
35. Мелихов В.В., Шабалин Е.П. Измерение тепловыделения в водородосодержащем замедлителе. Препринт ОИЯИ, РС-86-592, Дубна, 1986, 8 с.

Технический редактор **Н. П. Герасимова**

Подписано к печати 22.12.92 г. Бумага писчая № 1
Формат 60×90^{1/16} Усл. п. л. 1,8 Уч.-изд. л. 1,1 Тираж 70 экз.
Цена 1 р. 50 к. Индекс 3649 ФЭП-2293

Отпечатано на ротарите
249020 г. Обнинск Калужской обл. ФЭП

**Выбор холодного замедлителя для спектрометра ДИН-2ПИ.
ФЭИ-2293. 1992. 1-28.**