

ФИЗИКА ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ И АТОМНОГО ЯДРА
2005. Т. 36. ВЫП. 6

УДК 539.1.076: 621.039.5

ХОЛОДНЫЕ ЗАМЕДЛИТЕЛИ НЕЙТРОНОВ

Е. П. Шабалин

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

ВВЕДЕНИЕ	1425
РАДИОЛИТИЧЕСКИЙ ВОДОРОД	1427
«ЗАМОРОЖЕННЫЕ» РАДИКАЛЫ И ТЕПЛОВЫЕ ВЗРЫВЫ	1428
ДРУГИЕ РАДИАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ	1434
ХОЛОДНЫЕ ЗАМЕДЛИТЕЛИ НА РЕАКТОРАХ ЛНФ	1437
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	1442
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	1442

УДК 539.1.076: 621.039.5

ХОЛОДНЫЕ ЗАМЕДЛИТЕЛИ НЕЙТРОНОВ

Е. П. Шабалин

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Дан краткий обзор работ, проведенных в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ в связи с проблемой создания эффективных и надежных холодных замедлителей нейтронов как для реактора ИБР-2, так и для других высокоинтенсивных источников нейтронов. Главным результатом этих работ явилось получение новой и исчерпывающей информации о радиационных эффектах практически во всех потенциально возможных материалах для холодных замедлителей нейтронов, включая наиболее перспективный — ароматический углеводород мезитилен и смесь его с другими ароматическими углеводородами.

This is a review of works on the problem of cold neutron moderator development done at the Frank Laboratory of Neutron Physics. It is of great interest both for the IBR-2 reactor and for the other high intense neutron sources. Main result of the works is obtaining a new and exhaustive information on radiation effects practically in all potential materials for cold moderators including the most prospective one — aromatic hydrocarbon mesitylene and its mixture with other aromatic hydrocarbons.

ВВЕДЕНИЕ

В замедлителях нейтронов осуществляется снижение энергии быстрых нейтронов источника вплоть до их термализации, что создает нужный спектр внешних нейтронных пучков. В ныне действующих замедлителях в качестве замедляющего вещества используют обычную воду, жидкий водород, жидкие углеводороды (метан, пропан), твердый метан. В принципе, возможно применение еще водяного льда, полиэтилена, замороженных смесей метана с инертным газом или ненасыщенными углеводородами, метана в цеолитах, гидратов метана, аммиака, ароматических углеводородов (в частности триметилбензола) и др. Как правило, определенному материалу соответствует определенный интервал температур. Наиболее востребованы для новых проектов «холодные» замедлители с температурой замедляющего вещества 20–100 К, которые дают повышенный выход «холодных» нейтронов с длиной волны более 0,2–0,3 нм.

Наиболее технологичным веществом для холодного замедлителя является жидкий водород. Главное его достоинство — отсутствие радиоллиза и радиационных эффектов. Жидкий водород чаще всего используют в качестве замедлителя нейтронов. Однако термализация нейтронов в жидководородном

замедлителя происходит не полностью. Это объясняется отсутствием низколежащих уровней возбуждения у молекулы водорода. Метан менее технологичен, но он оказывается более эффективным для замедления, потому что его молекула имеет низколежащий вращательный (ротационный) уровень 1 мэВ. Это, наряду с большой плотностью ядер водорода, делает метан по нейтронно-физическим свойствам наилучшим из всех до сих пор известных веществ. Выход холодных нейтронов из твердого метана при температуре 20 К примерно в два раза выше, чем из водорода. Метан также удобен тем, что может быть использован в широком интервале температур. Для импульсного реактора, каковым является ИБР-2, жидкий водород мало применяется еще и по причине опасности его взрыва. Известны 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.

Главный недостаток метана — низкая радиационная стойкость. Вообще, проблема радиационной стойкости материалов холодного замедлителя является первостепенной при их проектировании. Из радиационных эффектов при облучении замороженных водородсодержащих газов и жидкостей при температурах 20–100 К наиболее существенны следующие три:

- образование радиолитического водорода; при отогреве это вызывает значительное увеличение давления;
- образование «замороженных» радикалов; при достижении критической их концентрации (которая достигается, например, в водяном льду за 5 ч при мощности дозы $0,1 \text{ кГр} \cdot \text{с}^{-1}$) возможно развитие цепной реакции рекомбинации и, соответственно, саморазогрев вещества;
- образование высокомолекулярных, высококипящих продуктов, которые трудно удалить из камеры холодного замедлителя и которые могут накопиться в значительных количествах.

Группа сотрудников ЛНФ вместе со специалистами из ЛВЭ ОИЯИ, из московских институтов и в сотрудничестве с коллегами по проекту европейского источника ESS в течение продолжительного времени (с 1993 г.) занималась решением проблемы создания эффективных и надежных холодных замедлителей нейтронов как для реактора ИБР-2, так и для других высокоинтенсивных источников нейтронов. Наиболее существенным результатом этой деятельности явилось получение исчерпывающей информации о радиационных эффектах практически во всех потенциально возможных материалах для холодного замедлителя; эти результаты, опубликованные в работах [1–16], кратко изложены в данном обзоре.

Обзор содержит также данные о ранних работах в ЛНФ по созданию холодных замедлителей.

1. РАДИОЛИТИЧЕСКИЙ ВОДОРОД

Водород есть непреходящий продукт радиолиза всех водородсодержащих соединений, каковыми являются замедляющие нейтроны материалы, кроме самого жидкого водорода. Частично молекулярный водород образуется непосредственно во внутритрековых реакциях, частично является продуктом последующей рекомбинации атомарного водорода. При низкой рабочей температуре холодного замедлителя водород малоподвижен, а при температуре ниже критической точки (33 К) находится всегда в конденсированном состоянии. Вследствие этого его накопление в процессе облучения не вызывает сколько-нибудь заметного набухания материала холодного замедлителя (в дальнейшем «матрицы») [3]. Но при повышении температуры матрицы (по окончании работы холодного замедлителя или в результате цепной реакции рекомбинации атомарного водорода, см. ниже) расширяющийся газ вызывает набухание матрицы или ее растрескивание, следствием чего может быть повреждение камеры замедлителя. Такие случаи имели место на источнике IPNS и на ИБР-2 [4, 17]. Знание скорости накопления молекулярного водорода имеет важнейшее значение для проектирования холодного замедлителя.

1.1. Метан. На скорость образования водорода в метане влияет доза облучения (т.е. степень разложения метана) и наличие акцепторной примеси; зависимости от температуры облучения не было замечено. Интенсивность образования водорода в технически чистом твердом метане измерена наиболее детально на холодных замедлителях реактора ИБР-2 в 1994 и 1999 гг. [4, 5] и подчиняется следующей зависимости (выведена В. В. Мелиховым):

$$\frac{\Delta\mu}{\Delta Q} = (0,33 \pm 0,01) \cdot 10^{-6} \left(1 + e^{-Q/Q_0} \right), \quad (1)$$

где величина $\Delta\mu/\Delta Q$ выражена в моль/Дж поглощенной энергии; Q — поглощенная доза и $Q_0 = (12 \pm 2)$ МГр. Эта величина при $Q \sim 0$ соответствует радиационному выходу $G = 6,2$ молекулы/100 эВ, которая совпадает с общепринятым значением для газообразного метана [18]. Как видно из соотношения (1), при больших дозах порядка десятков МГр интенсивность образования водорода снижается в два раза. Зависимость (1) сохраняется до максимально достигнутой на ИБР-2 дозе ~ 30 МГр, соответствующей разложению 30 % метана.

Добавление в метан *этилена* (C_2H_4) в количестве 2,5–5 мол. % снижает скорость образования водорода примерно вдвое только при малых поглощенных дозах до 5–6 МГр; в дальнейшем образование водорода происходит с той же интенсивностью, что и в чистом метане, согласно (1). Баланс дефицита накопленного водорода и концентрации этилена показывает, что снижение эффективности влияния этилена объясняется его истощением — продуктом

реакции этилена с водородом является насыщенный углеводород *этан*, который образует водород примерно с такой же скоростью, что и метан [18].

Распухание матрицы под действием радиолитического водорода при нагреве матрицы и соответствующее этому давлению на стенки камеры замедлителя зависят не только от концентрации накопленного водорода, но и от скорости выхода водорода из матрицы. Очевидно, что последняя активируется температурой. Было также замечено явление постепенного увеличения скорости выхода водорода из метана (его диффузии) с выгоранием метана. До $Q \sim 3$ МГр водород вообще не выходит из метана при $T < 75-80$ К. При больших Q он выходит при $T > 60-65$ К и тем легче, чем больше выгорание и выше температура. Непосредственные измерения показали, что скорость выброса увеличивается в два раза при изменении температуры метана на 1,4 К. Это соответствует температуре активации диффузии водорода 2000 К. Кроме того, выход водорода тормозится давлением внешнего газа. Примечательно, что выход водорода полностью «запирается» при внешнем давлении, равном расчетному давлению находящегося в матрице водорода, если бы последний свободно занимал весь объем матрицы. Увеличение скорости выброса водорода наблюдалось также при быстром снижении температуры (при сбросе аварийной защиты реактора). Все эти факты указывают на то, что водород диффундирует главным образом по дефектам кристаллической структуры и микротрещинам. Эффективный коэффициент диффузии для облученного метана, определенный по формуле $D \sim a^2/\tau$, где a — характерный размер матрицы, τ — время выхода водорода, оказывается $\sim 10^{-3}$ при 65–70 К.

1.2. Другие вещества. Скорость образования радиолитического водорода во льду и в некоторых ароматических углеводородах при 20–40 К была измерена в экспериментах УРАМ-2 [11]. Ниже приведены количественные данные:

— в мезитилене: $3,9 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж, что соответствует 11,7 % от той же величины для метана;

— в смеси мезитилена с толуолом (50 объем. %): $1,8 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж (5,5 % от той же величины для метана);

— во льду: $3,4 \cdot 10^{-8}$ моль/Дж (10 % от той же величины для метана).

Приведенные значения измерены при дозе 10–20 МГр.

Из мезитилена водород выходит при $T = 150-170$ К примерно с той же скоростью, что из метана при 65–70 К.

2. «ЗАМОРОЖЕННЫЕ» РАДИКАЛЫ И ТЕПЛОВЫЕ ВЗРЫВЫ

2.1. Эксперимент. Феномен накопления химической энергии в твердых замороженных соединениях под воздействием ионизирующего облучения известен с 1950-х гг. (см., например, [19–23]). Причина этого явления —

накопление радикалов, подвижность которых весьма мала при низкой температуре. Реакция рекомбинации радикалов, сопровождающаяся выделением тепла, может быть инициирована небольшим нагревом образца. Однако долгое время не знали, что рекомбинация радикалов, накопленных в течение нескольких часов и суток облучения, способна произойти даже спонтанно, без видимых причин, вызывая быстрый, в течение одной секунды, неконтролируемый разогрев вещества.

Первым наблюдал это явление в твердом метане (как результат рекомбинации радикалов CH_3 и H) Дж. Карпентер из Аргоннской национальной лаборатории США. В 1985 г. он установил на первом в мире источнике нейтронов на основе протонного ускорителя IPNS замедлитель из твердого метана. Температура метана была 14 К. Периодически и спонтанно возникали всплески температуры до 40–56 К, сопровождаемые выделением радиолитического водорода, поэтому Дж. Карпентер и назвал это явление «*burp*», что значит «отрыжка». Мы же будем называть его в дальнейшем «быстрая» (или «спонтанная») реакция рекомбинации радикалов. Периодичность спонтанных реакций рекомбинации радикалов составляла 1–4 сут в зависимости от мощности пучка протонов (ток протонов с энергией 400 МэВ был 5–16 мкА).

В Японии на установке KENS — нейтронном источнике на основе протонного ускорителя — также использовали твердометановый замедлитель. После начала работы продолжительными циклами через 7 сут при токе 2,5 мкА (что соответствовало средней по объему дозе ~ 7 кДж/г) при температуре 23–24 К наблюдались два раза спонтанные «*burps*» с нагревом метана до 50 и 57 К [24]. На первом твердометановом замедлителе СМ-1 реактора ИБР-2, где были приняты меры для избежания быстрых реакций рекомбинации радикалов, был зафиксирован только один такой случай, который произошел после 10 ч облучения при температуре метана в средней части камеры замедлителя 26 К.

В Лаборатории нейтронной физики были впервые проведены экспериментальные исследования процессов накопления и рекомбинации радикалов в твердом метане и других водородсодержащих соединениях при воздействии быстрых нейтронов. Эксперименты проводились на исследовательском реакторе ИБР-2 в Дубне в 1993 г. на установке УРАМ-1 (метан) [3] и в 2001–2003 гг. на установке УРАМ-2 (метан, лед, гидраты метана и тетрагидрофурана, мезитилен, смесь мезитилена с толуолом) [25]. В экспериментах на УРАМ-2 наблюдался один случай спонтанной реакции рекомбинации радикалов на метане: в образце толщиной 5 мм, массой 4,2 г после 11 ч облучения в потоке нейтронов $3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ температура резко «прыгнула» с 20 до 73 К (рис. 1). Много спонтанных реакций рекомбинации радикалов зафиксировано в других веществах (рис. 2) [9, 10]. Впервые было показано, что явление спонтанной реакции рекомбинации радикалов характерно для многих замороженных соединений, в которых одним из продуктов радиоллиза

являются радикалы. Из изученных веществ реакции рекомбинации радикалов невозможны только в ароматических углеводородах.

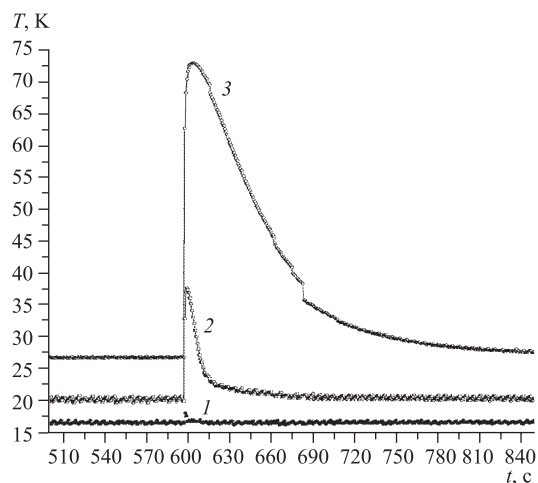


Рис. 1. Временной ход температур при спонтанном выделении энергии в облучаемом твердом метане: 1 — температура охлаждающего гелия; 2 — температура стенки капсулы образца; 3 — температура метана

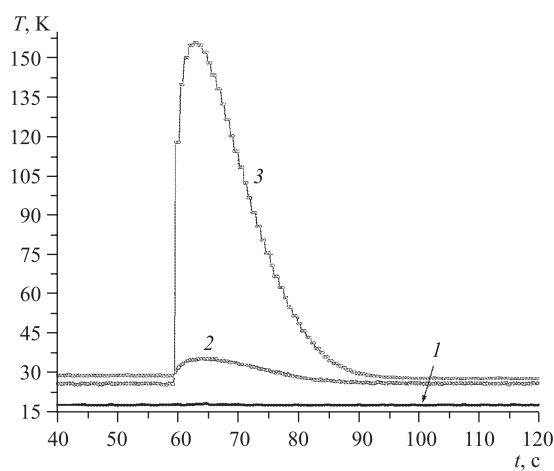


Рис. 2. Временной ход температур при спонтанном выделении энергии в облучаемом льду. Обозначения те же, что на рис. 1

Наиболее подвержен спонтанным реакциям рекомбинации радикалов водяной лед при температуре менее ~ 40 К. Спонтанный нагрев льда до 150–200 К возникал при дозе облучения 2–8 МГр (5–20 ч облучения пото-

ком быстрых нейтронов $3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$). Введение некоторых акцепторов водорода мало влияло на условия развития реакции рекомбинации радикалов.

Проведенные исследования позволили определить условия возникновения как индуцированных, так и спонтанных реакций рекомбинации радикалов, а также закономерности накопления скрытой энергии в процессе облучения. Наиболее существенны следующие выводы.

- Накопление энергии идет со скоростью 12–14 Дж/гч в метане (1,6–0,2 % от поглощенной дозы), 20–24 Дж/гч во льду (5,4–0,4 % от поглощенной дозы) и в сто раз медленнее — в мезитиле.

- Насыщенная плотность скрытой энергии понижается с увеличением температуры и становится ниже критической (при которой возможны быстрые реакции рекомбинации радикалов) при температуре 29–30 К в метане, 45–50 К во льду. При 20–25 К она равна 100–120 Дж/г в метане и ~ 300 Дж/г во льду.

- Связь критической плотности радикалов, при которой возможен индуцированный «поджиг» быстрой реакции рекомбинации радикалов, с температурой поджига неплохо описывается линейной зависимостью и для метана, и для льда (рис. 3).

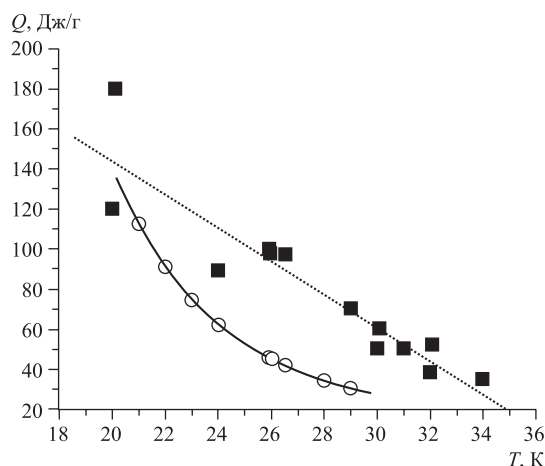


Рис. 3. Зависимость насыщенной плотности скрытой энергии в облучаемом твердом метане Q от температуры облучения T (кружки) и критической плотности скрытой энергии от температуры поджига (квадраты)

Эта закономерность не зависит от размера облучаемого образца, по крайней мере, для размеров больше 1–2 мм.

2.2. Анализ. Анализ экспериментов выявил ряд особенностей процесса накопления и диссипации химической энергии радикалов в исследованных ве-

щества, которые не могут быть поняты в рамках классических приближений Джексона и Франк-Каменецкого к теории термической стабильности [19, 26], основанных на термодиффузионной природе распространения рекомбинации по образцу. Эти особенности таковы [27, 28].

- Несовпадение значений энергии активации диффузии радикалов, оцененных по опытным данным для «холодной» (т. е. периода облучения и накопления радикалов) и «горячей» (т. е. периода быстрой, взрывной рекомбинации) стадий процесса. Первое значение оценивается из экспериментов как 100–150 К, а второе — не менее 1000 К, причем второе значение больше соответствует известным в литературе данным для диффузии в твердых газах.

- Независимость равновесной, насыщенной концентрации радиогенных радикалов от мощности дозы, свидетельствующая о том, что кинетика накопления радикалов в «холодной» фазе рекомбинации подчиняется уравнению первого порядка. В то же время была выявлена квадратичная связь между скоростью нарастания температуры в начале быстрого процесса рекомбинации радикалов («горячей» рекомбинации) и конечной величины подогрева метана, которая характерна для двухчастичной реакции рекомбинации (уравнение второго порядка).

- Большая скорость распространения волны рекомбинации при спонтанной реакции рекомбинации радикалов — не менее 10 см/с, которая слишком велика для термодиффузионной волны рекомбинации.

- Весьма слабая зависимость критической концентрации радикалов от температуры облучения в диапазоне температур 15–30 К (рис. 3); при термодиффузионной природе распространения волны рекомбинации эта зависимость должна была быть очень сильной, в соответствии с температурной зависимостью скорости диффузии радикалов по закону Аррениуса.

- Характерный для спонтанных реакций рекомбинации радикалов значительный разброс энерговыделения при одинаковой мощности дозы облучения (см. табл. 1).

Таблица 1. Разброс энерговыделения в образце льда при спонтанных быстрых реакциях рекомбинации радикалов

Образец	Время облучения, ч	Температура облучения, К (min/max)	Скачок температуры во время быстрой рекомбинации радикалов, К	Энерговыделение, Дж
H ₂ O (2,5 г)	6,25	25,1/26,1	До 156	86
H ₂ O (2,5 г)	8,62	25/26	До 167	108
H ₂ O (2,5 г)	7,48	24,4/27,4	До 161	93

Перечисленные особенности удалось понять на основе предложенной автором микроскопической вероятностной модели реакции рекомбинации ра-

дикалов. В основе этой модели — предположение о неоднородности пространственного распределения стабилизированных радикалов в масштабах 10^{-5} – 10^{-3} см. Неоднородность связана с трековым характером генерации радикалов, а также с размером зерен кристаллической структуры матрицы. В процессе облучения за счет очень малой подвижности радикалов при низкой температуре и за счет локальных областей массовой рекомбинации неоднородность усиливается. Это было показано на двухмерной компьютерной модели [29]. В конце концов, возникают достаточно большие области повышенной плотности радикалов, которые оказываются неустойчивыми относительно тепловых возмущений в них, например, по Джексону [19]. Распространение волны быстрой («горячей») рекомбинации далее на макрообъем образца уже происходит в основном по механохимическому каналу (т. е. рекомбинация стимулируется термопластическими деформациями матрицы); при этом термодиффузионный канал играет вспомогательную роль (последняя гипотеза принадлежит Э. Н. Руманову [30]).

В итоге в образце развивается спонтанная реакция рекомбинации радикалов при средней концентрации радикалов меньшей, чем того требует условие тепловой неустойчивости образца по Джексону или Франк-Каменецкому.

Одно из следствий микроскопической модели реакции рекомбинации радикалов состоит в том, что рекомбинация радиогенных радикалов в процессе облучения при низких температурах (менее 26–27 К) идет в основном за счет термостимулированной рекомбинации в горячей области треков протонов отдачи. Уравнение для плотности радикалов n можно тогда записать в виде

$$\partial n / \partial t = R(t) - D^* K_1(T)n - K_2(T, X)n^2, \quad (2)$$

где $R(t)$ — скорость генерации радикалов; D^* — мощность поглощенной дозы; $K_i(T)$ — коэффициенты скорости рекомбинации. В этом уравнении в фазе облучения будет превалировать член первого порядка с коэффициентом, пропорциональным мощности дозы, а в процессе спонтанной или индуцированной рекомбинации радикалов — член второго порядка. X обозначает некоторый параметр, зависящий от степени деформации матрицы, которая сама есть функция градиента температуры. Параметры для коэффициента K_1 были численно оценены из экспериментов для метана и водяного льда. Что касается коэффициента K_2 , то можно только отметить его сильную температурную зависимость, иначе говоря, высокую энергию активации радикалов в горячей фазе реакции рекомбинации радикалов.

При наиболее простом математическом описании спонтанной реакции рекомбинации радикалов [31, 32] связь критической средней плотности радикалов и температуры облучения (T_0) оказывается линейной (в приведенной ниже формуле вместо средней плотности радикалов дана эквивалентная ей

величина энергосвечения ($Q_{\text{ср}}$):

$$Q_{\text{ср}} = \frac{2c(T_{\text{cl}} - T_0)}{\gamma}. \quad (3)$$

При этом в одном лишь коэффициенте γ скрыты и степень неоднородности радикалов, и степень участия механохимического канала в процессе распространения волны рекомбинации. Значения параметров γ и T_{cl} для метана и льда были оценены из экспериментов. Кроме того, зависимость условий возникновения быстрой реакции рекомбинации радикалов от теплоемкости c была доказана в опытах со льдом, где теплоемкость сильно зависит от температуры.

Условие достижения критической плотности (3) является необходимым, но не достаточным для спонтанного развития реакции рекомбинации радикалов. Эта реакция проходит лишь при наличии очага «воспламенения», горячей точки или иной флуктуации, способной вызвать массовую реакцию рекомбинации в одном из кластеров плотности достаточно большого объема. Качественные оценки и компьютерное моделирование указывают на то, что такой кластер должен быть размером порядка 10^{-5} – 10^{-4} см. «Сгорание» первичного кластера есть вероятностный процесс, чем и объясняется значительный разброс времени облучения между последовательными спонтанными реакциями рекомбинации радикалов (см., например, табл. 1). Опираясь на экспериментальные данные, полученные на ИБР-2, и данные с IPNS, мы вывели соотношение для вероятности возникновения спонтанной реакции рекомбинации радикалов в образце объемом V со средней критической плотностью радикалов $n(t)$ [33]:

$$T_{\text{SB}} = Cn(t)\sigma \exp((n_0/n - 1)^2/2\sigma^2)/(VD^*),$$

где T_{SB} есть среднее время ожидания начала быстрой реакции рекомбинации радикалов после того, как достигнута критическая плотность радикалов; коэффициент C зависит от свойств вещества образца, а параметры σ и n_0 характеризуют неоднородность распределения радикалов в текущий момент. Характерна зависимость времени ожидания начала быстрой реакции рекомбинации радикалов от объема образца — этот результат является новым.

3. ДРУГИЕ РАДИАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ

Помимо образования водорода и радикалов, существенное влияние на работоспособность и эффективность холодного замедлителя оказывают следующие радиационные эффекты:

- накопление высококипящих и твердых трудноудаляемых продуктов радиолиза в камере замедлителя;

- расход замедляющего вещества и соответствующее снижение или нестабильность выхода холодных нейтронов;
- изменение теплофизических свойств, прежде всего, теплопроводности.

Первый из перечисленных эффектов существен только для метана. Среди продуктов радиолитического разложения метана есть низкокипящие (испаряющиеся при температуре ниже комнатной и давлении ~ 1 атм), высококипящие (испаряющиеся при комнатной температуре и при низком давлении) и твердые (смолы, полимеры), которые не испаряются даже в вакууме. Высококипящие продукты имеют давление насыщенных паров при комнатной температуре 0,14–0,15 атм (вероятно, парафиновые углеводороды от C_6 и выше) и легко удаляются из камеры путем откачки в течение нескольких часов при температуре камеры 300–340 К. Твердый остаток покрывает внутренние поверхности камеры и оседает частично на дне, имеет желто-коричневый цвет.

Для оценки количества твердого остатка в облученном метане был использован оригинальный метод, основанный на измерении скорости выделения летучих продуктов радиолитического разложения вещества твердого остатка. Из опубликованных данных известно, что основными составляющими твердого остатка являются высокомолекулярные насыщенные углеводороды C_{20} и выше, вплоть до полимеров. Радиационный выход летучих продуктов из таких веществ (в основном водорода) составляет $G = 2-4$ молекулы/100 эВ. Для полиэтилена $G = 3$, или $3 \cdot 10^{-7}$ моль/Дж. После испарения метана и низкокипящих продуктов и откачки высококипящих продуктов из камеры холодного замедлителя ИБР-2 газовая полость последней отсекалась, и твердый остаток подвергался воздействию радиации реактора при температуре 340–350 К в течение нескольких суток. По изменению давления в камере можно было судить о количестве твердого остатка. Скорость образования твердых, не удаляемых продуктов радиолитического разложения метана была оценена равной $(1,5-3) \cdot 10^{-7}$ г/Дж. Например, в холодном замедлителе ИБР-2 накопление твердого остатка в весовых долях составляет 0,1–0,2%/сут. Следует заметить, что смолы накапливаются в камере замедлителя не линейно во времени, а до насыщения, так как они сами подвержены радиолитическому разложению. Равновесное количество смолы в камере M_{equ} можно оценить из очевидного соотношения

$$\frac{dM}{dt} = M_{\text{equ}} 14 \frac{dH_2}{dT}, \quad (4)$$

где dM/dt — скорость образования смол; dH_2/dT — удельная скорость образования водорода в смоле; в соотношении (4) принято, что выделение 1 моль водорода сопровождается разложением 14 г углеводородов (соотношение массы водорода к массе молекулы стремится к 1:7 при увеличении массы молекулы). Из (4) следует, что равновесное количество смолы не зависит от мощности дозы и равно 3,5–7% по массе от массы облучаемого метана. Однако конечный продукт радиолитического разложения — углерод в виде сажи — будет

непрерывно накапливаться со скоростью $(1,3-2,6) \cdot 10^{-7}$ г/Дж. Для условий холодного замедлителя ИБР-2 это составляет примерно 9 г за месяц работы реактора.

Практика работы с твердометановыми замедлителями на ИБР-2 и IPNS показала, что влияние выгорания метана в пределах 20–30 % на выход холодных нейтронов незначительно. Гораздо более существен факт изменения спектра нейтронов при отжигах для выброса водорода и во время быстрых реакций рекомбинации радикалов (рис. 4).

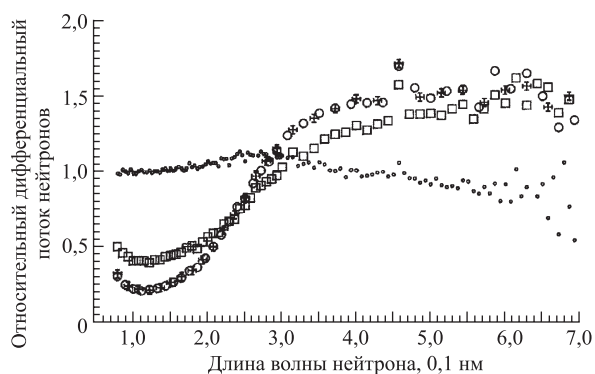


Рис. 4. Изменение спектра нейтронов твердометанового замедлителя СМ-1 при облучении и отжиге водорода: точки — спектр перед первым отжигом; квадраты, кружки и крестики — после первого, второго и третьего отжигов соответственно

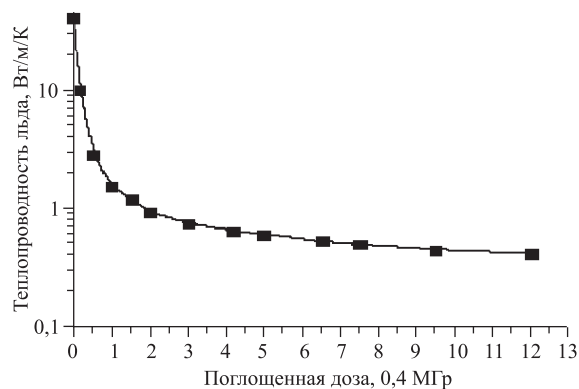


Рис. 5. Изменение теплопроводности льда при облучении быстрыми нейтронами

Во время экспериментов УРАМ-2 было обнаружено явление снижения теплопроводности материалов холодного замедлителя [11]. В материалах с низкой теплопроводностью (метан, мезитилен, гидрат метана) это проявляется

слабо и практически несущественно. Теплопроводность же водяного льда, которая при температуре 20–25 К равна 30–40 Вт/м/К, снижается почти в 100 раз после нескольких часов облучения (рис. 5). Это, вероятно, связано с накоплением дефектов, тормозящих движение протонов — переносчиков тепла в холодном льду ($T < 50$ К).

4. ХОЛОДНЫЕ ЗАМЕДЛИТЕЛИ НА РЕАКТОРАХ ЛНФ

Первые попытки использования холодных замедлителей были сделаны на реакторе ИБР в начале 1960-х гг. под руководством Ф.Л. Шапиро. Сначала В.В. Голиков и А. Шкатула провели удачный эксперимент, приблизив охлаждаемый до азотной температуры бериллиевый фильтр вплотную к штатному теплому замедлителю нейтронов из парафина. Выигрыш в потоке холодных нейтронов (с энергией ниже бериллиевой границы) оказался равным 4. В дальнейшем, в 1964–1965 гг., А.В. Стрелков с А. Шкатулой и И. Гордоном разработали первый холодный замедлитель с бериллиевым отражателем толщиной 6 см. Этот замедлитель дал выигрыш 15, что, по словам А.В. Стрелкова, удивило Ф.Л. Шапиро, который предсказывал меньшее значение выигрыша. Действительно, выигрыш такого холодного замедлителя складывается из двух факторов: снижения температуры нейтронного газа и увеличения источника тепловых нейтронов в замедлителе вследствие отражения от бериллия. Первый фактор пропорционален $T^{-1,5}$ и для температуры нейтронного газа 100 К (которая была экспериментально определена) равен 5–6. Второй фактор, по более поздним данным, полученным с прототипом холодного замедлителя на пучке реактора ИБР-30, равен 2 [6]. В итоге фактор выигрыша должен быть не более 12, что и ожидал Ф.Л. Шапиро. Вероятно, дополнительное увеличение потока нейтронов было связано с влиянием бериллиевого блока (а также азотного криостата, в котором находились и сам замедлитель, и бериллиевый отражатель) на распределение плотности делений в реакторе ИБР — эффективный центр активной зоны сместился в сторону замедлителя. Интересно отметить, что в качестве замедлителя был использован полиэтилен в виде стопки тонких пленок — для обеспечения свободного выхода радиолитического водорода.

Этот замедлитель использовался в течение нескольких лет на разных пучках реакторов ИБР и ИБР-30.

Ввиду очевидных трудностей использования полиэтилена и других водородсодержащих соединений в условиях больших доз облучения, при проектировании реактора ИБР-2 сначала предполагалась установка жидководородного замедлителя, и для этого был предусмотрен проем в бетонной защите. Концептуальный проект замедлителя был подготовлен В. М. Назаровым и А. Навроцким. Однако В. М. Назаров провел серию опытов с предложенным

им гребенчатым водяным замедлителем [1] и сделал вывод о том, что в области холодных нейтронов тот дает выигрыш до 5–6. Это лишь примерно в два раза хуже, чем дает реальный жидководородный замедлитель, в котором много металлических конструкций из-за необходимости обеспечения безопасности реактора.

При пуске ИБР-2 был уточнен эффект гребенчатого замедлителя, который оказался для холодных нейтронов таким же, как и для тепловых, т. е. всего около 2. И вновь встал вопрос о холодном замедлителе. Но Чернобыльская катастрофа (1986 г.) обострила вопросы ядерной безопасности, и работа по жидководородному замедлителю вновь была прекращена. Автор этого обзора предложил тогда использовать для холодного замедлителя твердый метан.

Как уже было выше сказано, главными продуктами радиолитического разложения метана являются водород и этан, а также высокомолекулярные углеводороды, среди которых есть и высококипящие, не удаляемые из камеры. Радиолитический водород при отогреве метана создает высокое давление на корпус камеры замедлителя и в итоге повреждает камеру. При температуре ниже 30 К в твердом облучаемом метане накапливаются «замороженные» радикалы CH_3 . При достижении концентрации $\sim 0,5\text{--}1\%$ они самопроизвольно и быстро рекомбинируют, вызывая повышение температуры метана (до 60 К и более) и давления газообразного водорода на стенки камеры. Радиолитический водород и радикалы приходится периодически «отжигать», что делает работу замедлителя нестабильной. Для преодоления этих трудностей в ЛНФ рассматривался вариант проточного замедлителя — в виде шариков из твердого метана, заполняющих объем камеры замедлителя и непрерывно сменяющихся. Охлаждать шарики предполагалось потоком гелия. Этот вариант замедлителя позднее разрабатывался для источников нейтронов на протонных ускорителях с охлаждением шариков жидким водородом.

Несмотря на плохую радиационную стойкость метана и связанные с этим вышеизложенные трудности, замедлители с твердым метаном уже использовались на нейтронных источниках в Японии (KENS) и США (IPNS) [24, 17]. Холодный замедлитель на основе твердого метана на реакторе ИБР-2 было решено создать в 1990 г. с целью повысить поток нейтронов с длиной волны более 0,4 нм не менее чем в 20 раз. Проточный вариант был отвергнут, так как требовал длительных и дорогих инженерных исследований. В 1994 г. был создан и установлен первый вариант замедлителя гребенчатого типа [3–5]. В процессе пуска и испытаний его камера все-таки лопнула при выпуске водорода. В том же году был спроектирован новый замедлитель СМ-2 с плоской камерой, из которой водород должен был выходить свободнее благодаря наличию щелевого зазора вблизи одной из стенок камеры [5–8] (рис. 6). Для сохранения выхода нейтронов был применен холодный бериллиевый отражатель. Факт повышения в два раза выхода холодных нейтронов при установке

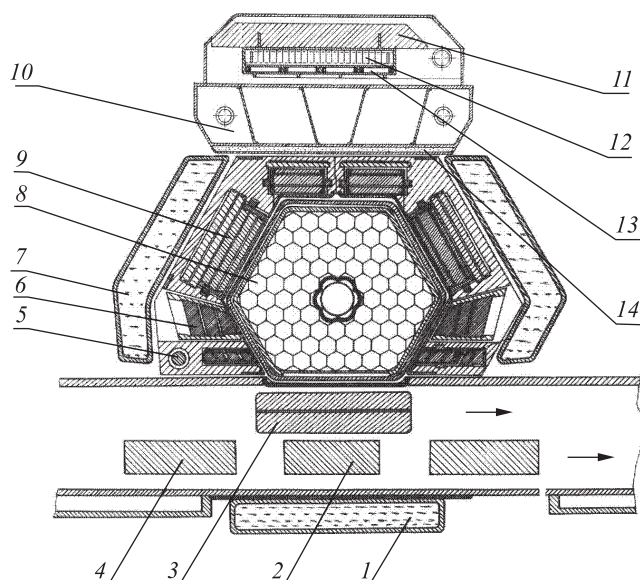


Рис. 6. Реактор ИБР-2 с твердометановым замедлителем, горизонтальное сечение в масштабе 1:8. 1, 7 — водяные замедлители; 2, 4 — средняя и крайняя лопасти дополнительного подвижного отражателя («трезубца»); 3 — лопасть основного подвижного отражателя (показана конструкция подвижного отражателя до 2004 г.); 5, 6, 9 — блоки управления в стационарном отражателе; 8 — топливная кассета; 10 — водяной предзамедлитель холодного замедлителя; 11 — бериллиевый отражатель-фильтр холодного замедлителя; 12 — метановая полость холодного замедлителя; 13 — полости охлаждающего гелия; 14 — борный фильтр

4-см бериллиевый отражатель был предварительно проверен в эксперименте на пучке ИБР-30 [6]. Этот отражатель отличался от ранее использованного на ИБР тем, что имел «окна», которые повышали выход тепловых нейтронов. Еще одна новинка, облегчающая работу с метаном, — это применение добавки этилена к метану в количестве нескольких процентов, уменьшающей выход водорода примерно в два раза. В 1999 и 2000 гг. твердометановый замедлитель СМ-2 был успешно испытан при полной мощности ИБР-2. Было изучено влияние температуры, времени работы, количества метана в камере замедлителя, концентрации поглотителей водорода и процедуры отжига на нейтронные и эксплуатационные характеристики замедлителя. Максимальное время работы замедлителя без смены метана в камере составило 4 сут. За это время около 30% метана трансформируется в водород, этан и высокомолекулярные углеводороды, и тем не менее не было замечено снижения интенсивности холодных нейтронов. Из новых знаний, полученных при ра-

боте СМ-2, два факта наиболее существенны: снижение в два раза скорости образования водорода при отравлении метана 2,5–5 % этилена и низкая, в сравнении с жидким метаном, скорость образования твердых неудаляемых продуктов радиолитического распада: $(1,5–3) \cdot 10^{-7}$ г/Дж.

В настоящее время вокруг стационарного отражателя реактора ИБР-2 размещаются три водяных замедлителя, два из которых — «гребенчатого» типа. Холодный замедлитель из твердого метана СМ-2 при необходимости устанавливается вместо одного из водяных замедлителей. При работе СМ-2 реактор ИБР-2 по средней плотности потока холодных нейтронов не уступает самым интенсивным действующим импульсным источникам нейтронов (см. табл. 2). Однако криогенный замедлитель ИБР-2 на основе твердого метана требует улучшения. Нестабильность температуры, вызванная перечисленными выше радиационными эффектами в метане, а также нестабильность в работе, вызванная необходимостью длительных (около суток) перерывов для смены метана, негативно сказываются на работе спектрометров. Сужается круг экспериментов, требующих продолжительного времени, особенно при изучении биологических материалов или при изучении фазовых переходов.

Радиационная нагрузка на метан в СМ-2 в три раза больше, чем на метановых замедлителях IPNS, а именно 0,1 Вт/г. Ресурс работы невысок из-за накопления в камере смол и сажи. Даже при малой скорости образования высокомолекулярных углеводородов за 1000 ч работы камера будет заполнена продуктами радиолитического распада на 40–50 %. Для продления ресурса, а также для увеличения продолжительности непрерывной работы, камера замедлителя защищена от быстрых нейтронов слоем воды толщиной 9 см, тогда как для предварительного замедления нейтронов достаточно 3 см воды. Эта необходимая в настоящее время мера снижает поток холодных нейтронов в три раза. Отсюда вытекает задача создания холодного замедлителя нейтронов, способного продолжительное время (не менее одной недели) работать без изменения температуры в более сильном радиационном поле (0,5 вместо 0,1 кГр/с) и иметь ресурс не менее 10 тыс. ч. Этот замедлитель указан в табл. 2 как СМ-3. На основе вышеизложенных результатов проекта УРАМ-2 предложено использовать в качестве замедляющего вещества вместо метана мезитилен, который имеет на порядок большую радиационную стойкость. Это позволит удовлетворить сформулированным выше условиям работы при незначительном снижении потока холодных нейтронов.

Другое преимущество мезитилена — возможность использовать его в широком диапазоне температур, вплоть до комнатной. Как предложил И. Натканец, добавка в мезитилен других производных бензола (м-ксилола или псевдокумола) может повысить выход холодных нейтронов [34]. Одновременно эта мера повышает радиационную стойкость смеси, что было показано экспериментально [11]. Повышение радиационной стойкости вещества замедлителя даст не только стабильность температуры и соответственно потока нейтронов,

Таблица 2. Холодные замедлители на импульсных источниках нейтронов

Материал	Название и место нахождения	Состояние	Поток холодных нейтронов, $10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Радиационная нагрузка, Вт/г	Число пучков
Жидкий H_2	ISIS, Резерфордская и Апплтонская лаборатории, Великобритания	Работает с 1985 г.	1	2,0	5
Жидкий CH_4	ISIS, Резерфордская и Апплтонская лаборатории, Великобритания	Заменяется дважды в год	0,6	0,5	7
Твердый CH_4 (2)	IPNS, Аргоннская нац. лаб., США	Работает с 1994 г.	0,25	0,04	
Твердый CH_4	KENS, КЕК, Япония	Работает с 1985 г.	0,13	0,03	
Жидкий H_2	MLNSC, Лос-Аламосская нац. лаб., США	Работает с 1985 г.	~ 1		3
Твердый CH_4	CM-2, ИБР-2, Дубна	Работает с 1999 г.	1,2	0,1	4
Жидкий H_2	SNS, JAERI, Япония (5 МВт)	<i>Проект</i>	~ 20	70	
Жидкий H_2	NSNS, Ок-Риджская нац. лаб., США	<i>Строится</i>	$\sim 3, 5$		
Твердый $\text{CH}_4 + \text{H}_2$	ESS (Европа)	<i>Проект</i>	~ 12	2	
Твердый C_9H_{12}	CM-3, ИБР-2М, Дубна	<i>Проект</i>	2,5, 3	0,24	8

но и позволит увеличить интенсивность нейтронов в 2–3 раза за счет приближения камеры замедлителя к реактору. Устойчивые к радиации вещества позволяют перейти к традиционной для реакторной техники конструкции замедлителя в виде плотно упакованных тонкостенных трубок, наполненных замедляющим веществом и охлаждаемых гелием [35]. В этом случае, однако, внимание должно быть обращено на давление водорода при разогреве вещества, что обсуждалось в этом обзоре. Так, в экспериментах по облучению твердого мезитилена, заключенного в цилиндрическую трубку, было зафиксировано давление на стенках трубки до 20 бар при небольшой поглощенной дозе 11 МГр [13]. Для проекта мезитиленового холодного замедлителя реактора ИБР-2М (СМ-3 в табл. 2) предпочтение отдано шариковому проточному варианту [16], предложенному еще в 1985 г., но до сих пор нигде не реализованному.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящее время из действующих в мире 30 холодных замедлителей 20 — с жидким водородом или дейтерием, 5 — с твердым, периодически сменяемым метаном, 3 — с жидким метаном и пропаном и 2 — с твердым мезитиленом [36]. Разработка эффективного и надежного холодного замедлителя нейтронов для высокоинтенсивных нейтронных источников является сложной инженерно-физической задачей. Этой проблемой в мире занимаются более десяти групп специалистов, обменивающихся информацией в рамках международной коллаборации по холодным замедлителям (АСоМ). Работа идет по трем направлениям: замедлитель с непрерывной сменой твердого метана («*pelletized cold moderator*»), замедлитель на основе ароматических углеводородов и совершенствование традиционного жидководородного замедлителя (в частности, применение 99 %-го параводорода). Лаборатория нейтронной физики ОИЯИ является единственным местом, где ведутся исследования радиационных эффектов в материалах холодных замедлителей. Кроме того, в ЛНФ изучается рассеяние медленных нейтронов на веществах холодных замедлителей, ведется работа по оптимизации геометрии замедлителей для модернизированного реактора ИБР-2М.

Автор благодарен А. В. Стрелкову за информацию о создании первого холодного замедлителя на реакторе ИБР и В. К. Игнатовичу за ценные замечания при подготовке статьи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Гундорин Н. А., Назаров В. М. Гребенчатый замедлитель. Препринт ОИЯИ РЗ-80-721. Дубна, 1980. 6 с.
2. Shabalin E. P. Pulsed neutron sources at Dubna: their past, present and future status // Proc. of the 16th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XI), KEK, Japan, Oct. 1990. KEK Report 90-25. 1991. V. I. P. 109–118.

3. *Beljakov A. A. et al.* First experience of cold moderator operation and solid methane irradiation at the IBR-2 pulsed reactor // Proc. of the 16th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XII), Abingdon, May 1993. RAL Report 94-025. V. II. P. T144–155.
4. *Shabalin E. P. et al.* Solid methane cold moderator at the IBR-2 reactor: test operation at 2 MW // Proc. of the Second Intern. Meeting on Pulsed Advanced Neutron Sources (PANS-II), Dubna, June 14–17, 1994. Dubna, 1995.
5. *Belyakov A. A. et al.* Solid methane cold moderator at the IBR-2 reactor // J. Neutron Res. 1996. V. 3. P. 209–221.
6. *Beliakov A. A. et al.* Solid methane cold moderator for the IBR-2 reactor // Proc. of the Intern. Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources, Argonne, Illinois, USA, Sept. 29–Oct. 2, 1997. OECD Brochure, 1998. P. 73–78.
7. *Shabalin E. P., Beliakov A. A.* Solid methane cold moderator for the IBR-2 reactor: present status // Proc. of the German–Russian User Meeting «Condensed Matter Physics with Neutrons at IBR-2», Dubna, April 2–4, 1998. Dubna, 1998. P. 25–32.
8. *Beliakov A. A., Tretyakov I. T., Shabalin E. P.* First experience with the new solid methane moderator at the IBR-2 reactor // Proc. of the 15th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XV), Tsukuba, Japan, Nov. 6–9, 2000.
9. *Shabalin E. P. et al.* Experimental study of spontaneous release of accumulated energy in irradiated ices // Rad. Phys. Chem. 2003. V. 67, Issues 3–4. P. 315–319.
10. *Kulagin E. N. et al.* Radiation effects in cold moderator materials: Experimental study of accumulation and release of chemical energy // Nucl. Instr. Meth. B. 2004. V. 215, Nos. 1–2. P. 181–186.
11. *Shabalin E. P. et al.* Some radiation effects in cold moderator materials, experimental study // Proc. of the 16th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XVI), Dusseldorf-Neuss, Germany, May 12–15, 2003. V. II. P. 911–919.
12. *Шабалин Е. П. и др.* Радиационные эксперименты с водородсодержащими материалами на криогенной облучательной установке УРАМ-2 реактора ИБР-2 // АЭ. 2004. Т. 97, вып. 3. С. 183–189.
13. *Баранов И. М. и др.* Изучение процесса выхода радиолитического водорода из экспериментального элемента холодного замедлителя на твердом мезитиле. Сообщение ОИЯИ РЗ-2004-212. Дубна, 2004.
14. *Ро Ду Мин.* Распределение температуры в капсуле для облучения материалов холодного замедлителя нейтронов. Сообщение ОИЯИ РЗ-2004-140. Дубна, 2004.
15. *Natkaniec I. et al.* Comparative studies of neutron scattering and radiation properties of methane, methanol, mesitylene and water at low temperatures // Proc. of 17th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XVII), Santa Fe, New Mexico, April 25–29, 2005.
16. *Kulikov S., Shabalin E.* Complex of neutron moderators for the IBR-2M reactor // Ibid.
17. *Carpenter J. M.* Cold moderator for pulsed neutron sources // Proc. of the Intern. Workshop on Cold Neutron Sources, Los-Alamos, USA, 1990. LA-121-C. P. 131–153.
18. *Пшежецкий С. Я.* Механизм и кинетика радиационно-химических реакций. М.: Химия, 1968.
19. *Jackson J. L.* Dynamic stability of frozen radicals // J. Chem. Phys. 1959. V. 31. P. 154–157; 722–730.
20. *Luebbe R. H., Jr., Willard J. E.* // J. Am. Chem. Soc. 1959. V. 81. P. 761.
21. *Judeikis H. S., Flournoy J. M., Siegel S.* // J. Chem. Phys. 1962. V. 37. P. 2272.
22. *Siegel S. et al.* // J. Chem. Phys. 1961. V. 34. P. 1782–1788.

23. *Fluornoy J. M. et al.* Disappearance of trapped hydrogen atoms in gamma-irradiated ice // *J. Chem. Phys.* 1962. V. 36. P. 2229.
24. *Ikeda S. et al.* Cold neutron moderator at KENS-I // *Proc. of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-IX)*, PSI, Villigen, Sept. 22–26, 1986. V. II. P. 18–26.
25. *Shabalin E. P. et al.* URAM-2 Cryogenic irradiation facility. *JINR Commun.* E13-2002-143. Dubna, 2002. 10 p.
26. *Франк-Каменецкий Д. А.* Диффузия и теплопередача в химической кинетике. М.: Наука, 1969.
27. *Шабалин Е. П.* О накоплении и освобождении скрытой энергии в облучаемом твердом метане: Применение классической теории теплового взрыва. Сообщение ОИЯИ P17-95-141. Дубна, 1995.
28. *Shabalin E. P.* On the phenomenon of the fast release of energy in irradiated solid methane: discussion of the models concerning the local space distribution of energy. *JINR Commun.* E17-95-142. Dubna, 1995.
29. *Shabalin E. P.* Consideration of the «Burp» phenomenon in solid methane accounting for nonuniform distribution of irradiation defects // *Proc. of the Workshop on Cold Moderators for Pulsed Neutron Sources*, Argonne, Illinois, USA, Sept. 28–Oct. 2, 1997. OECD Report. 1998. P. 245–259.
30. *Гольданский В. И., Руманов Э. Н., Шабалин Е. П.* Пределы распространения волн рекомбинации радикалов // *Хим. физика.* 1999. Т. 18, № 6. С. 16–20.
31. *Shabalin E. P. et al.* URAM-2: Irradiation Experiments at the Dubna IBR-2 Reactor. Report ESS 99-92-T. July 1999.
32. *Shabalin E. P.* On radiation effects in water ice at low temperatures // *Proc. of the ICANS-XIV Meeting*, Starved Rock, Illinois, USA, June 1998. Report ANL-98/33. V. 2. P. 497–506.
33. *Shabalin E. P.* Probabilistic model of spontaneous release of accumulated energy in irradiated ices // *Rad. Phys. Chem.* (in press); *JINR Preprint* E12-2004-75. Dubna, 2004.
34. *Natkanec I. et al.* Vibrational spectra of selected methyl derivatives of benzene and their solutions as potential materials for cold moderators // *Proc. of the 16th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS-XVI)*, Dusseldorf-Neuss, Germany, May 12–15, 2003. V. II.
35. *Шабалин Е. П., Куликов С. А.* Холодный замедлитель нейтронов на основе ароматических углеводородов. Сообщение ОИЯИ P13-2004-73. Дубна, 2004. 12 с.
36. <http://perso.wanadoo.fr/ottosix.com/>