

# ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЗАМОРОЖЕННЫХ ШАРИКОВ ИЗ СМЕСИ МЕЗИТИЛЕНА И МЕТАКСИЛОЛА СО СВОЙСТВАМИ КАПЕЛЬ РУПЕРТА В КРИОГЕННЫХ ЗАМЕДЛИТЕЛЯХ НЕЙТРОНОВ

*А. В. Галушко, Р. В. Чепурченко, М. В. Булавин,  
И. Л. Литвак<sup>1</sup>, К. А. Мухин, В. А. Скуратов*

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Проведено экспериментальное исследование возможности использования замороженных шариков со свойствами капель Руперта — твердых замороженных шариков увеличенной прочности из смеси ароматических углеводородов — в шариковых криогенных замедлителях нейтронов. Показано, что при использовании новой модификации дозирующего устройства с высокой скоростью выгрузки (~ 6 шт./с) и стандартными параметрами пневмотранспортировки возможно осуществить загрузку твердых замороженных шариков из смеси мезитилена и метаксилола в камеру криогенного замедлителя в 5 раз быстрее без их разрушения в процессе пневмотранспорта.

Experimental research on the possibility of using frozen Rupert's drops — solid frozen beads from a mixture of aromatic hydrocarbons with high strength properties — in cryogenic neutronmoderator beads has been conducted. It is shown that, when using a new modification of the dosing device with a high discharge rate (~ 6 pcs/s) and standard parameters of pneumatic transportation, it is possible to load solid frozen mesitylene beads into a cryogenic moderator's chamber 5 times faster without destroying them during transportation.

PACS: 28.41.Pa; 07.20.Mc; 28.20.Fc; 28.20.Gd

## ВВЕДЕНИЕ

Шариковые криогенные замедлители на основе ароматического углеводорода мезитилена являются эффективным инструментом получения высокоинтенсивных пучков холодных нейтронов на исследовательских нейтронных источниках [1–5].

Мелкодисперсное равномерное заполнение замедлителя, находящегося в непосредственной близости от источника, твердыми замороженными шариками со средним значением диаметра ( $3,7 \pm 0,2$ ) мм позволяет получать равномерный нейтронный

---

<sup>1</sup>E-mail: vanya.litvak@gmail.com

спектр по всему объему его камеры, что является важным параметром для снижения погрешности и получения адекватных результатов при проведении нейтронно-физического эксперимента. Для этого твердые замороженные шарики, транспортируемые в камеру замедлителя по пневмотрассе холодным гелием, должны иметь хорошие механические свойства (прочность, твердость и т. п.) и не должны разрушаться. Это также важно для обеспечения нормального охлаждения камеры и пневмотрассы замедлителя [6, 7].

Доставка шариков в камеру начинается из дозирующего устройства, находясь внутри которого шарики испытывают повышенное механическое давление и трение из-за постоянного контакта друг с другом и металлическими стенками при перемещении, особенно если используется новая модификация дозирующего устройства с высокой скоростью выгрузки (6–8 шт./с). Такие условия эксплуатации могут приводить к образованию осколков вследствие полного или частичного разрушения шариков, которые затем будут попадать в пневмотранспортную систему.

Кроме того, в процессе пневмотранспортировки, перемещаясь вдоль трубопровода, шарики испытывают постоянные удары о стенки стальной трубы. В результате таких ударов также могут образовываться осколки. Их накопление на разных участках трубопровода (особенно на участках подъемов и в самой камере) может приводить к увеличению гидравлического сопротивления потока, которое обратно пропорционально размеру шариков, что, в свою очередь, приводит к снижению расхода и повышению температуры гелия. В результате растет и температура шариков, что в конечном итоге приводит к повышению температуры во всем объеме камеры замедлителя и уменьшению выхода холодных нейтронов с его поверхности, а в некоторых случаях и к полному прекращению циркуляции гелия и аварийному останову замедлителя, что является негативным сценарием, если речь идет, например, о рутинной эксплуатации криогенного замедлителя на исследовательском реакторе при номинальной мощности.

В настоящее время проблема сколов и разрушений шариков отчасти решена подбором пневмотранспортных параметров. Однако в этом случае существует ограничение: с одной стороны, скорость шариков не должна быть слишком маленькой во избежание образования заторов в тракте, с другой — слишком большой во избежание их разрушения. Данное ограничение не позволяет при возникновении необходимости ускорить процесс загрузки камеры замедлителя увеличением скорости гелия или, например, сделать технологическую продувку многократным увеличением его расхода в связи с образованием заторов и т. п. К тому же часть шариков все еще может разрушаться в самом дозаторе до попадания в пневмотракт. На этом фоне экспериментальный поиск способов изготовления твердых шариков с изначально лучшими прочностными и ударными механическими свойствами выглядит более перспективным.

Согласно разрабатываемой авторами данной статьи физической модели изготовления твердых замороженных шариков из смеси мезитилена и метаксилола их возможно изготавливать подобными каплям Руперта за счет увеличения теплоотдачи капли в процессе изготовления. В сравнении с обычными материалами капли Руперта обладают повышенной прочностью за счет наличия внутреннего механического напряжения [8–10]. При этом в процессе транспортировки или вследствие увеличения давления на шарики в дозаторе во время реальной эксплуатации все еще нельзя исключать их спонтанного разрушения.

Поэтому для проверки целесообразности использования твердых замороженных шариков со свойствами капель Руперта на первом этапе необходимо провести экспериментальное исследование по загрузке камеры замедлителя на полномасштабном испытательном стенде, а на втором этапе — на комплексе криогенных замедлителей реактора ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна).

### **ФОРМИРОВАНИЕ ТВЕРДОГО ЗАМОРОЖЕННОГО ШАРИКА ИЗ МЕЗИТИЛЕНА ПО ТИПУ КАПЛИ РУПЕРТА**

Изготовление твердых замороженных шариков происходит при помощи специальных устройств — механических гравитационных капельниц [11].

Процесс формирования капли в таком устройстве происходит при помощи каплеформирователей — форсунок, расположенных в нижней части капельницы (рис. 1).

Под каждой форсункой имеется ячейка, которая расположена внутри криостата с хладагентом (жидкий азот), предназначенная для замораживания каждого шарика отдельно, для предотвращения их слипания между собой, возникающего из-за высокой адгезии шариков вплоть до температуры 150 К [11]. В каждой ячейке шарик изготавливается 30 с. Верхняя часть капельницы устанавливается сверху на криостат и заполняется смесью жидкого мезитилена и метаксилола. Производительность такой гравитационной капельницы довольно низкая и обычно не превышает 50 мл/ч.

Экспериментально установлено, что для изготовления шариков со свойствами капель Руперта необходимо достичь скорости изготовления одного шарика около 10 с. Достижение такой скорости изготовления в стандартных гравитационных капельницах осуществляется при помощи дополнительного подогрева жидкого азота нихромовой нитью, установленной в нижней части ячеек, отделяющих шарики друг от друга. Характеристики нити-нагревателя следующие: длина  $\sim 1,8$  м, сечение  $\sim 0,46$  мм, сила подаваемого тока 3 А, напряжение 24 В.

Опустим описание процесса формирования капли и обратного эффекта Лейденфроста [12] и сразу перейдем к рассмотрению стадии кристаллизации капли из смеси мезитилена и метаксилола.



Рис. 1. Гравитационная капельница для изготовления замороженных шариков из смеси мезитилена и метаксилола

Длительность стадии кристаллизации капли определяется следующим образом [13]:

$$t_2 = C_{\text{drop}} \frac{\lambda^f}{c_p} (T_{\text{Fr}} - T_N)^{-3/4}, \quad (1)$$

$$C_{\text{drop}} = \frac{4\rho_d c_p R}{3\eta} \left( \frac{9\mu R}{2\rho_d \rho_g g k^3 L^v} \right)^{1/4}, \quad (2)$$

где  $T_N$ , К — температура жидкого азота;  $T_{\text{Fr}}$ , К — температура плавления смеси мезитилена и метаксилола;  $\lambda^f$ , Дж/кг — удельная теплота плавления смеси мезитилена и метаксилола;  $\rho_d$ , кг/м<sup>3</sup> — плотность капли;  $c_p$ , Дж/кг·К — удельная теплоемкость капли;  $R$ , м — радиус капли;  $\eta$  — доля поверхности капли, контактирующей с паровой подушкой;  $\mu$ , Па·с — вязкость паров азота;  $\rho_g$ , кг/м<sup>3</sup> — плотность паровой подушки;  $g$ , м/с<sup>2</sup> — ускорение свободного падения;  $k$ , Вт/(м·К) — коэффициент теплопроводности паров жидкого азота;  $L^v$ , Дж/кг — удельная теплота парообразования жидкого азота.

Расчеты показывают, что для среднего диаметра капли 3,7 мм теоретическое значение  $t_2$  составляет  $\sim 16$  с (рис. 2).

При увеличении интенсивности теплообмена капли с жидким азотом (для увеличения коэффициента теплоотдачи в результате внешнего воздействия) процесс изготовления шарика не является квазистатическим, следовательно, формула (1) не может быть применима для описания процесса кристаллизации. В этом случае кристаллизация начинается с внешней области капли, которая непосредственно контактирует с паровой «подушкой» (парами азота). Таким образом, плотность внешнего слоя будет изменяться тем меньше, чем выше интенсивность теплоотдачи. Данная корреляция наблюдается экспериментально посредством уменьшения числа шариков с диаметром менее 3,6 мм и увеличением числа шариков с диаметром более 3,9 мм.

При этом жидкость внутри твердой оболочки затвердевает с увеличением плотности, в результате чего в шарике возникает градиент механического напряжения и цилиндрическая или сферическая полость с радиусом основания около 1 мм и образующей около 2 мм, подобно тому, что наблюдается в каплях Руперта (рис. 3) [10, 11, 14].

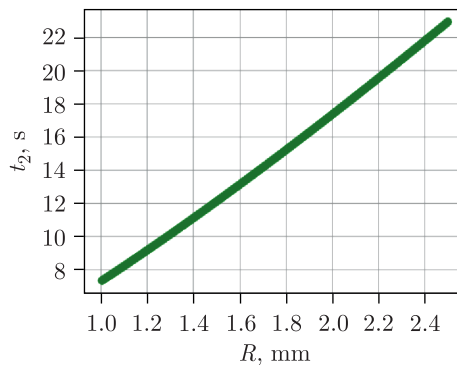


Рис. 2. Расчетные зависимости длительности кристаллизации от радиуса капли

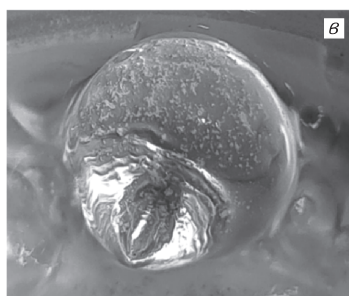
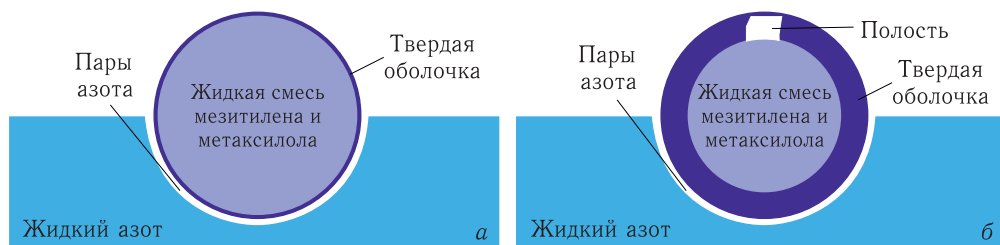


Рис. 3. Стадия кристаллизации капли: а) формирование твердой внешней оболочки; б) возникновение полости внутри шарика; в) фото шарика в режиме макросъемки, изготовленного в гравитационной капельнице, с наличием полости

Формирование полости возможно в случае, когда величина механического напряжения убывает соразмерно росту дефекта, от чего она формируется [15].

Кроме того, характер разрушения твердых шариков при внешнем воздействии или, в редких случаях, спонтанный, в виде мелких осколков с высоким разнообразием форм (рис. 4), а также наличие дисперсии света внутри шарика говорит о том, что полученные при помощи гравитационной капельницы за время 10 с замороженные шарики из смеси мезитилена и метаксилола обладают свойствами капель Руперта [8–10, 14].

Предварительные эксперименты показали, что замороженные капли Руперта, изготовленные из заранее охлажденной до 230 К жидкой смеси мезитилена и метаксилола, но при аналогичных параметрах хладагента в гравитационной капельнице, имеют практически в 2 раза меньший размер полости. Такое поведение полости подтверждается и исследованиями капель Руперта, проведенными другими авторами для других типов веществ при различной температуре [10, 14]. Поскольку шарики, изготовленные при помощи нового способа, обладают свойствами капель Руперта, мы считаем, что они также обладают повышенной прочностью в сравнении с обычными шариками, поскольку увеличенная прочность капель Руперта является их важным свойством и возникает благодаря механическим напряжениям внутри капель [10]. Аналогичные механические напряжения возникают

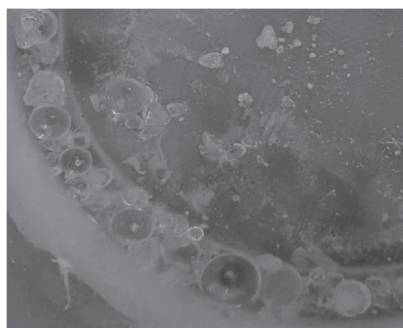


Рис. 4. Фрагменты разрушенного шарика, указывающие на их схожесть с каплями Руперта

**Параметры производства шариков из смеси объемом 280 мл**

Параметр	Стандартный способ	Оптимизированный способ	
		1 шарик в 10 с	1 шарик в 7 с
Время производства, ч	6	3	2
Частота добавления жидкого азота, раз/ч	1	3	3
Дефектные шарики с диаметром более 3,9 мм, %	< 2,5	< 8,5	< 12,5
Дефектные шарики с диаметром менее 3,6 мм, %	< 2,5	< 1,5	< 0,5

и внутри шариков со свойствами капель Руперта, следовательно, их прочность также возрастает.

Предложенный способ применили для изготовления шариков со свойствами капель Руперта и получили параметры этого способа, представленные в таблице.

### **ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА ПО ЗАГРУЗКЕ КАМЕРЫ ЗАМЕДЛИТЕЛЯ ЗАМОРОЖЕННЫМИ ШАРИКАМИ СО СВОЙСТВАМИ КАПЕЛЬ РУПЕРТА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ МОДИФИЦИРОВАННОГО ДОЗИРУЮЩЕГО УСТРОЙСТВА С ВЫСОКОЙ СКОРОСТЬЮ ВЫГРУЗКИ**

Цель модификации дозирующего устройства заключается в увеличении скорости выгрузки шариков из дозатора и повышении объема хранения шариков, за счет чего происходит увеличение скорости загрузки шариков в камеру замедлителя при помощи пневмотранспортной системы. Повышение объема хранения позволяет загружать шарики в дозатор один раз вместо трех, как в обычном дозаторе. Таким образом, возможно осуществлять очистку гелия в трубопроводе всего один раз, поскольку загрязнение теплоносителя в трубопроводе происходит в процессе загрузки шариков в дозирующее устройство [11].

Модификация дозирующего устройства с высокой скоростью выгрузки (рис. 6) представляет собой цилиндрический криостат, изолированный многослойной высоковакуумной теплоизоляцией, тепловым экраном и сильфонным соединением для снижения теплопередачи из окружающей среды. Во внутренней части криостата располагается емкость для хранения шариков объемом 1,4 л, соединенная в нижней части с пневмотранспортным трубопроводом криогенного замедлителя. Емкость также оборудована термодиодами в верхней и нижней части для контроля за температурой во время работы. Рабочие температуры достигаются за счет подключения дозатора к пневмотранспортной системе, соединенной с криогенной установкой. Диапазон рабочих температур модифицированного дозирующего устройства аналогичен диапазону рабочих температур обычного дозирующего устройства [11].

На дне емкости располагается диск с шестью отверстиями, который приводится во вращение металлическим валом, соединенным с шаговым двигателем. Загруженные шарики располагаются на диске с отверстиями и попадают в пневмотранспортный трубопровод во время вращения диска. Скорость вращения диска может варьироваться от 0,5 до 1000 об./мин. Визуальный контроль за шариками осуществляется при

помощи специального смотрового окна и световода (рис. 5, 6). Существенным отличием от обычного дозирующего устройства [11] являются: увеличенная емкость для хранения шариков, наличие светодиодной подсветки и смотрового окна.

Параметры пневмотранспортной системы при проведении экспериментов оставлены без изменений, т.е. новый дозатор испытывается в условиях, аналогичных для обычного, за исключением повышенного числа шариков, а именно 1 л шариков в мо-

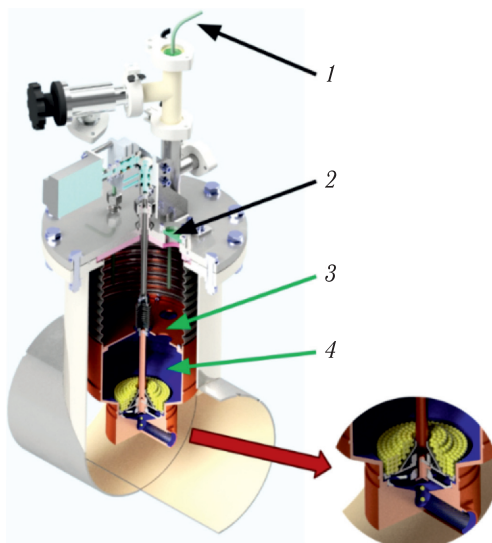


Рис. 5. Модель модифицированного дозатора с высокой скоростью выгрузки: 1 — световод; 2 — смотровое окно; 3 — тепловой экран; 4 — камера с шариками вместимостью до 1,4 л

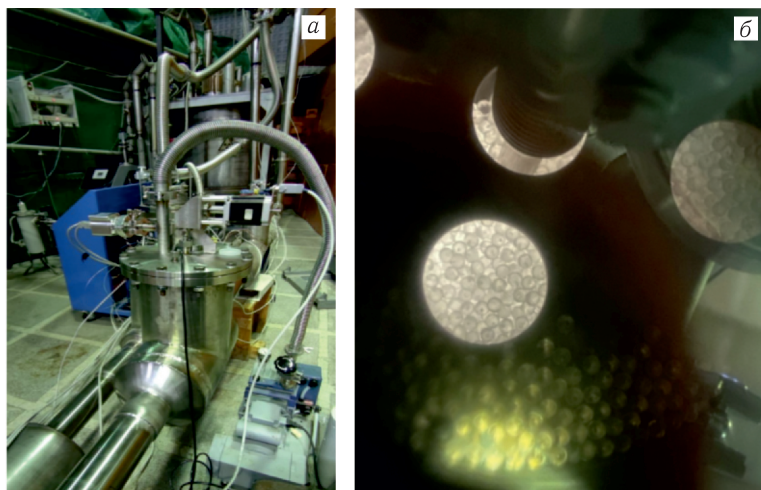


Рис. 6. Модификация дозирующего устройства с высокой скоростью выгрузки: а) внешняя часть криостата; б) фото шариков в процессе загрузки в режиме реального времени

дифицированном дозаторе вместо 330 мл шариков в обычном дозаторе. Выгрузка шариков в пневмотранспортный трубопровод производилась со скоростью  $\sim 6$  шт./с, со скоростью вращения диска около 4 об./мин в импульсном режиме. Скорость движения шариков по пневмотрассе от дозатора к камере составляла 2,5–3 м/с при

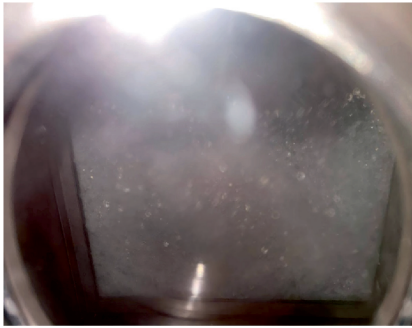


Рис. 7. Замороженные шарики со свойствами капель Руперта, загруженные в камеру испытательного стенда криогенного замедлителя нейтронов

скорости потока гелия 11–14 м/с (массовый расход 1,5–2 г/с), температура гелия в процессе загрузки составляет 80 К, а в процессе эксплуатации после полной загрузки камеры замедлителя — 16 К. Во время экспериментов были произведены две полные загрузки камеры полномасштабного испытательного стенда (рис. 7) и пять полных загрузок камер криогенных замедлителей исследовательского быстрого реактора ИБР-2 замороженными шариками со свойствами капель Руперта в количестве 1 л или  $\sim 27\,000$  шт. каждая загрузка. Первая загрузка производилась в три этапа смешанной партией шариков:  $\sim 330$  мл «обычных» шариков и  $\sim 660$  мл шариков со свойствами капель Руперта. Каждая загрузка осуществлялась партиями по  $\sim 330$  мл шариков.

Контроль целостности шариков осуществляется при помощи визуального наблюдения шариков в камере тестового стенда в процессе загрузки. При проведении экспериментов также осуществляется мониторинг температуры, массового расхода и скорости потока гелия.

В результате проведения серии экспериментов было установлено:

— время полной загрузки камеры замедлителя испытательного стенда с использованием модифицированного дозирующего устройства с высокой скоростью выгрузки составило 1,2 ч, что в пять раз быстрее по сравнению с обычным дозирующим устройством. Отличий от обычного дозирующего устройства в температуре, массовом расходе и скорости потока гелия в пневмотранспортной системе обнаружено не было;

— с использованием стандартных параметров пневмотранспорта в общей сложности в камеры замедлителей было успешно загружено  $\sim 6,7$  л или  $\sim 180\,000$  шт. замороженных шариков из смеси мезитилена и метаксиллола со свойствами капель Руперта. Осколков замороженных шариков во время проведения эксперимента обнаружено не было.

## ВЫВОДЫ

1) При пневмотранспортировке шариков со свойствами капель Руперта эффект спонтанного разрушения не наблюдается. Таким образом, такие шарики можно подвергнуть более интенсивному механическому воздействию, что позволит ускорить время их загрузки за счет повышения скорости газа или массового расхода гелия в пневмотранспортном трубопроводе.

2) Использование модифицированного дозирующего устройства для загрузки замороженных шариков со свойствами капель Руперта в камеру шарикового криогенного замедлителя позволяет снизить время загрузки в пять раз.



## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Теоретические и экспериментальные исследования формирования твердых замороженных шариков из смеси мезитилена и метаксилола со свойствами капель Руперта имеют важное прикладное значение для эксплуатации шариковых криогенных замедлителей на исследовательских нейтронных источниках, заключающееся в изготовлении замороженных шариков со свойствами капель Руперта, имеющих улучшенные прочностные свойства по сравнению с обычными шариками, получаемыми в стандартных гравитационных капельницах. Использование таких улучшенных шариков из смеси мезитилена и метаксилола вместе с модифицированным дозирующим устройством с высокой скоростью выгрузки позволяет в несколько раз снизить время загрузки камеры шарикового криогенного замедлителя. В перспективе, увеличив скорость выгрузки шариков из дозирующего устройства и скорость транспортирующего газа в 2–3 раза, не опасаясь разрушения прочных шариков, можно довести скорость загрузки камеры до  $\sim 20$  мин и существенно приблизиться к разработке системы быстрой смены рабочего материала в камере, что позволит создать универсальный криогенный замедлитель на основе углеводородов для использования на исследовательских нейтронных источниках любой интенсивности.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-15-2022-830 от 27 мая 2022 г. (продолжение Соглашения № 075-15-2021-1358 от 12 октября 2021 г.).

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Shabalin E., Kulikov S., Bulavin M., Verkhoglyadov A.* The World's First Pelletized Cold Neutron Moderator Began Its Operation // *Neutron News*. 2013. V. 24, No. 3. P. 27.
2. *Ananiev V., Belyakov A., Bulavin M., Kulagin E., Kulikov S., Mukhin K., Petukhova T., Sirotin A., Shabalin D., Shabalin E., Shirokov V., Verhoglyadov A.* The World's First Pelletized Cold Neutron Moderator at a Neutron Scattering Facility // *Nucl. Instr. Meth. B*. 2014. V. 320. P. 70–74.
3. *Ananiev V., Belyakov A., Bulavin M., Verkhogliadov A., Kulagin E., Kulikov S., Mukhin K., Shabalin E., Loktaev K.* Pelletized Cold Moderator of the IBR-2 Reactor: Current Status and Future Development // *J. Phys. Conf. Ser.* 2016. V. 746. P. 012031.
4. *Bulavin M., Belyakov A., Verkhoglyadov A., Mukhin K., Kulikov S.* Gain Factor of the Pelletized Cold Neutron Moderator at 22 K // *J. Surf. Invest.: X-Ray Synchrotron Neutron Tech.* 2020. V. 14, No. 3. P. 434–436.
5. *Bulavin M. V., Mukhin K. A., Yskakov A., Rogov A. D., Galushko A. V., Skuratov V. A., Smelyansky I. A.* Some Features of the Operation of Pelletized Cryogenic Mesitylene-Based Moderators at the IBR-2 Pulsed Fast Reactor // *J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech.* 2022. V. 16. P. 1–6.
6. *Bulavin M. V., Belyakov A. A., Verkhoglyadov A. E., Skuratov V. A., Smelyansky I. A., Kulikov S. A., Kustov A. A., Mukhin K. A., Lyubimtsev A. A., Sirotin A. P., Shirokov V. K., Petukhova T. B.* Possibility of Loading the Chamber of the “Central” Pelletized Cold Moderator for IBR-2 Reactor Beams 1, 4–6, and 9 // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2016. V. 13, No. 6. P. 774–781.
7. *Bulavin M. V., Kazakov A. V., Shabalin E. P.* To Theory of Pneumotransport of Beads of Cold Neutron Moderator of the IBR-2 Reactor // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2017. V. 14, No. 3. P. 520–532.

8. *Hooke R.* Micrographia: or Some Physiological Descriptions of Minute Bodies Made by Magnifying Glass: with Observations and Inquiries thereupon. London: Martyn Jo., and Allestry Ja., M DC LX V, 1665.
9. *Snart J.* Physico-Mechanical Experiments and Discussions of the Phenomena Observable in That Casual Product of Art the Hand Grenade, Prince Rupert's Drop, or Glass Tear // *L. Philos. Mag.* 1805. V. 22. P. 334–339.
10. *Johnson W., Chandrasekar S.* Rupert's Glass Drops: Residual-Stress Measurements and Calculations and Hypotheses for Explaining Disintegrating Fracture // *J. Mater. Proces. Tech.* 1992. V. 31. P. 413–440.
11. *Булавин М. В.* Шариковый холодный замедлитель реактора ИБР-2: некоторые аспекты создания и применения. Дис. . . . канд. физ.-мат. наук. 01.04.01. ОИЯИ. Дубна, 2017. 23 с.
12. *Gauthier A., Rémi C. D., Lohse D., van der Meer D.* Self-Propulsion of Inverse Leidenfrost Drops on a Cryogenic Bath // *PNAS.* 2019. V. 116, No. 4. P. 1174–1179.
13. *Adda-Bedia M., Kumar S., Lechenault F., Moulinet S., Schillaci M., Vella D.* Inverse Leidenfrost Effect: Levitating Drops on Liquid Nitrogen // *Langmuir.* 2016. V. 32, Iss. 17. P. 4179–4188.
14. *Cashman K. V., Liu E. J., Rust A. C.* Prince Rupert's Drops: An Analysis of Fragmentation by Thermal Stresses and Quench Granulation of Glass and Bubbly Glass // *PNAS.* 2022. V. 119, No. 31.
15. *Ерасов В. С., Орешко Е. И., Луценко А. Н.* Площадь свободной поверхности как критерий хрупкого разрушения // *Авиаци. материалы и технол.* 2017. №2(47). С. 69–79.
16. *Делигирова В. В., Рахимова Н. Н.* Проблемы психологии безопасности в техносфере // *Шаг в науку.* 2020. № 1. С. 20–24.

Получено 16 сентября 2024 г.