

P17-2005-222

С. А. Куликов, Е. П. Шабалин

СРАВНЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ МАТЕРИАЛОВ  
ХОЛОДНЫХ ЗАМЕДЛИТЕЛЕЙ НЕЙТРОНОВ  
ДЛЯ РЕАКТОРА ИБР-2М

Куликов С. А., Шабалин Е. П.

P17-2005-222

Сравнение эффективности материалов холодных замедлителей нейтронов для реактора ИБР-2М

В работе приведено расчетное сравнение выхода холодных нейтронов из холодного замедлителя реактора ИБР-2М при использовании нейтронных сечений для нескольких материалов холодных замедлителей, приготовленных в разных лабораториях. В библиотеках сечений учитываются молекулярные связи при взаимодействии с нейтронами, имеющими энергию  $< 10$  эВ. Приводятся результаты анализа оптимальной для выхода холодных нейтронов толщины замедлителя для разных материалов. Показано, что мезитилен является наиболее подходящим материалом для использования в холодных замедлителях реактора ИБР-2М. Для расчетов применялась программа транспорта частиц (MCNP).

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2005

Kulikov S. A., Shabalin E. P.

P17-2005-222

Comparison of Cold Neutron Efficiency of Neutron Moderator Materials for the IBR-2M Research Reactor

Calculations of neutron yield for the IBR-2M research reactor cold moderator with utilization of new cross-section libraries for different materials were done. Cross-section data were recently prepared at different laboratories in the world. Molecular bounds in the materials at interaction with neutrons with energy less than 10 eV are considered in libraries. Results of optimization of thicknesses for different materials and comparison of the most effective thicknesses, concerning cold neutron yield, were shown. The benefit of mesitylene based cold moderators at the IBR-2M reactor utilization is proved. Monte Carlo  $N$ -particle transport code (MCNP) has been used for all calculations.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2005

## ВВЕДЕНИЕ

Тенденции развития исследований в физике твердого тела в настоящее время ведут к использованию в экспериментах нейтронов с длиной волны более 4 Å. Снижение энергии быстрых нейтронов источника осуществляется в замедлителях нейтронов, которые являются «посредниками» между источником нейтронов (будь то исследовательские ядерные реакторы, источники на основе реакций «spallation» или др.) и инструментами физических экспериментов. Создание нужного спектра внешних нейтронных пучков происходит как в тепловых, так и в криогенных замедлителях, работающих при температуре замедляющего материала 20–100 К. Использование криогенных замедлителей нейтронов дает повышенный выход «холодных» нейтронов, что в свою очередь позволяет сократить время, необходимое для проведения одного эксперимента, а также проводить те эксперименты, которые были бы невозможны без такого замедлителя из-за их продолжительности. Другим, но не менее важным аргументом в пользу использования криогенных замедлителей является экономический, поскольку использование криогенных замедлителей позволяет получать сравнимые интенсивности нейтронов на более слабых источниках без строительства новых, требующих огромных затрат.

При создании комплекса замедлителей для источника нейтронов необходимо проведение предварительной исследовательской работы, заключающейся в выборе материала, толщины самих холодных замедлителей и предзамедлителей, оптимизация размещения и т. д. Весь этот комплекс исследований позволяет более эффективно использовать источник нейтронов. К таким источникам, в частности, относится исследовательский модернизируемый реактор ИБР-2М.

Для замедления нейтронов до тепловых энергий, как правило, используется обычная вода, использование же большинства материалов для холодных замедлителей затруднительно в связи с проблемами радиационной стойкости. В ныне действующих замедлителях в качестве замедляющего вещества используют обычную воду, жидкий водород, жидкие углеводороды (метан, пропан), твердый метан. Возможно также применение водяного льда, замороженных смесей метана с инертным газом или ненасыщенными углеводородами, метана в цеолитах, гидратов метана, аммиака, ароматических углеводородов (в частности, триметилбензола (мезитилена)) и др. Поэтому при проектировании криогенных замедлителей нейтронов, при достаточно богатом выборе материалов, необходимо отдать предпочтение какому-то одному, который бы наиболее подходил для использования.

На существующих на сегодняшний день источниках нейтронов чаще всего применяемым веществом для криогенных замедлителей является жидкий водород. Главное его достоинство — отсутствие радиолиза и радиационных эффектов. Однако термализация нейтронов в жидководородном замедлителе происходит не полностью. Это объясняется отсутствием низколежащих уровней возбуждения у молекулы водорода. К тому же водород взрывоопасен, что ограничивает круг его использования. Это особенно актуально для импульсного реактора, поскольку он в  $\sim 40$  раз более чувствителен к изменению геометрии, чем реакторы стационарного действия.

Метан оказывается более эффективным для замедления нейтронов, потому что его молекула имеет низколежащие вращательные (ротационные) уровни. 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 в 2–3 раза выше, чем из водорода. Метан также удобен тем, что может быть использован в сравнительно широком интервале температур. Главный же недостаток метана — низкая радиационная стойкость. В процессе работы метанового замедлителя на ИБР-2 по 2–3 раза в сутки необходимо менять температурный режим (для «выгонки» накопившегося водорода), что вызывает нестабильность нейтронного спектра. Кроме того, ресурс работы метанового замедлителя невелик из-за накопления в камере смол — твердых продуктов радиолиза.

Применение альтернативных материалов может оказаться более целесообразным, нежели метана или водорода, но большинство из этих материалов так же, как и метан, страдают наличием радиационных эффектов [1–8].

Применение новых веществ в холодных замедлителях нейтронов приводит к необходимости создания библиотек сечений взаимодействия этих веществ с нейтронами при низких температурах для дальнейшего их использования в моделировании и расчете источников нейтронов с криогенными замедлителями. В связи со сложностью динамики взаимодействия медленных нейтронов с веществом при низких температурах приготовление таких библиотек является нетривиальной задачей, для решения которой существует несколько методик. Чтобы быть уверенным, что созданные библиотеки адекватно описывают динамику взаимодействия молекул вещества с нейтронами, необходима их верификация путем сопоставления результатов экспериментов с результатами расчетов при использовании модели экспериментальной установки и библиотек верифицируемых материалов.

Целью данной работы является определение оптимальных (т. е. наиболее эффективных) толщин замедлителей для разных материалов, перспективных для использования при низких температурах в криогенных замедлителях реактора ИБР-2М.

## 1. СРАВНЕНИЕ БИБЛИОТЕК СЕЧЕНИЙ ДЛЯ МАТЕРИАЛОВ ХОЛОДНЫХ ЗАМЕДЛИТЕЛЕЙ

Для проведения сравнения была использована 3D-геометрия реактора ИБР-2М и его окружения (рис. 1) в формате, требуемом программой расчета транспорта нейтронов MCNP [9].

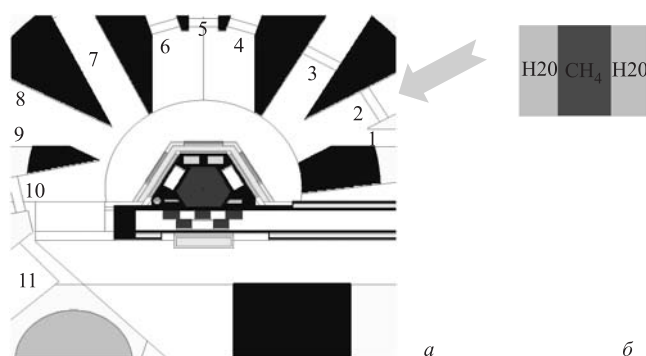


Рис. 1. Геометрия ИБР-2М, использованная в расчетах спектров нейтронов. (Цифры на рис. *a* обозначают номера исследовательских каналов)

В стандартном пакете библиотек сечений MCNP находятся библиотеки для расчета холодных замедлителей на основе метана и водорода. Благодаря коллаборации ACoM (Advanced Cold Moderators) нам были предоставлены библиотеки для этих и других материалов холодных замедлителей, которые были сгенерированы разными группами с использованием разных подходов. Более подробно о методе приготовления этих библиотек можно найти в [10–15]. Для сопоставления полученных и имевшихся в нашем распоряжении нейтронных сечений для материалов при низких температурах (метана и водорода) был проведен ряд расчетов для одного из холодных замедлителей реактора ИБР-2М. При расчетах изменялась только входная информация относительно используемой библиотеки, без изменения каких-либо других параметров расчета.

В расчетах с метаном при  $T = 20$  К применялись библиотеки сечений, приготовленных тремя независимыми группами ученых: группой проф. R. E. McFarlane, США [12, 13], группой проф. W. Bernnat, Германия [15] и группой проф. R. Granada, Аргентина [10, 11, 14]. Результаты расчетов приведены на рис. 2.

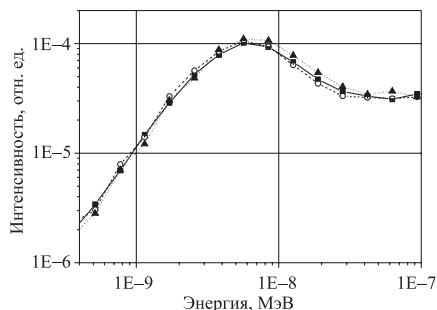


Рис. 2. Спектры нейтронов из метана при использовании трех библиотек сечений,  $T = 20$  К:  $\circ$  — библиотека сечений R. Granada, Аргентина [10, 11, 14],  $\blacktriangle$  — библиотека сечений W. Bernnat, Германия [15],  $\blacksquare$  — библиотека сечений R. E. McFarlane, США [12, 13]

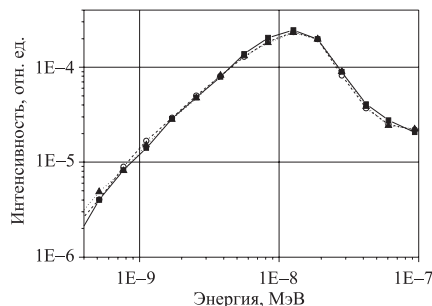


Рис. 3. Спектры нейтронов из водорода, полученные при использовании трех библиотек сечений,  $T = 20$  К:  $\circ$  — библиотека сечений R. Granada, Аргентина [10, 11, 14],  $\blacktriangle$  — библиотека сечений W. Bernnat, Германия [15],  $\blacksquare$  — библиотека сечений R. E. McFarlane, США [12, 13]

При сравнении сечений водорода также использовались библиотеки с сечениями рассеяния нейтронов, приготовленные тремя группами разработчиков [10–15]. Результаты расчетов приведены на рис. 3.

Как видно из приведенных на рис. 2 и 3 результатов при использовании разных библиотек сечений в расчетах для одного и того же материала, полученные спектры хорошо согласуются друг с другом. Разброс значений интегральных утечек холодных нейтронов с поверхности замедлителя при использовании нейтронных сечений, приготовленных разными группами и из водородного замедлителя, и из метанового, составляет менее 10 %.

## 2. ОПТИМИЗАЦИЯ ТОЛЩИНЫ МАТЕРИАЛОВ ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ МАКСИМАЛЬНОЙ УТЕЧКИ ХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ

Оптимизация толщины холодного замедлителя по интенсивности утечки холодных нейтронов была выполнена для следующих материалов холодных замедлителей: водород (50 % орто- и 50 % параводорода при толщинах 2, 4, 5, 6, 8, 10 см), метан (толщины: 1,5; 2; 2,5 см), вода (толщины: 2, 4, 6, 8 см, сечения W. Bernnat, Германия [15]) и кристаллический мезитилен (толщины: 1,5; 2; 2,5 см, сечения R. Granada, Аргентина [10, 11, 14]) при  $T = 20$  К). Спектр утечки оценивался точечным детектором на расстоянии 4,5 м от замедлителя, причем в учет брались только нейтроны из холодного замедлителя. На рис. 1 представлены:  $a$  — горизонтальное сечение реактора

ИБР-2М и окружения; *б* — схематический вид на используемую в расчетах поверхность замедлителя, состоящую из «холодной» части (разные материалы) в центре и двух «теплых» (вода) частей.

Для каждого из веществ были построены графики зависимости интегральной утечки холодных нейтронов с энергиями  $E < 0,005$  эВ относительно максимальной утечки из данного вещества при фиксированной толщине предзамедлителя, равной 5 см (рис. 4–7).

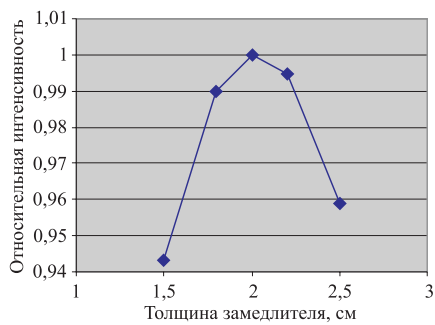


Рис. 4. Относительные интегральные утечки холодных нейтронов из метанового холодного замедлителя при варьировании толщины

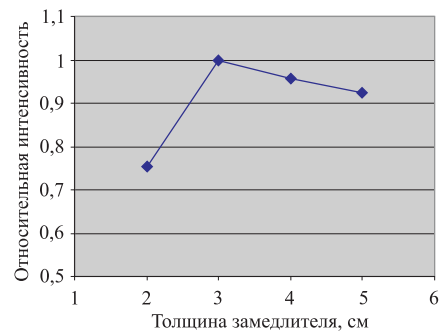


Рис. 5. Относительные интегральные утечки холодных нейтронов из замедлителя на льде при варьировании толщины

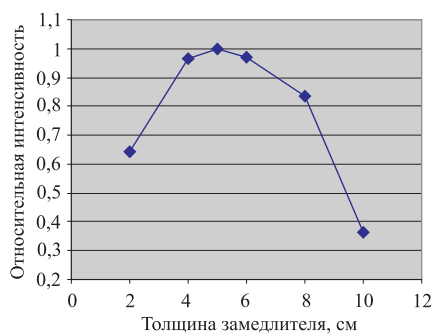


Рис. 6. Относительные интегральные утечки холодных нейтронов из водородного холодного замедлителя при варьировании толщины

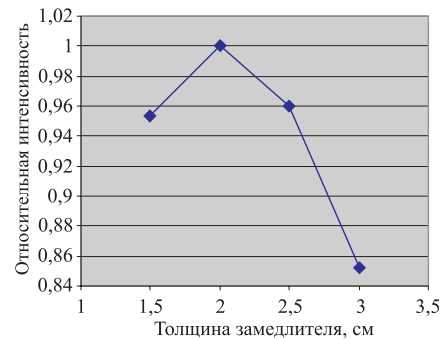


Рис. 7. Относительные интегральные утечки холодных нейтронов из мезитиленового холодного замедлителя при варьировании толщины

В результате анализа графиков рис. 5–8 получены наиболее эффективные для производства холодных нейтронов значения толщины для разных материалов, они приведены в таблице.

**Результаты оптимизации толщин материалов для холодного замедлителя нейтронов**

Материал	CH <sub>4</sub>	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O	C <sub>9</sub> H <sub>12</sub>
Наиболее эффективная толщина материала, см	2	5	3	2

Спектры нейтронов для эффективных толщин замедляющих материалов приведены на рис. 8.

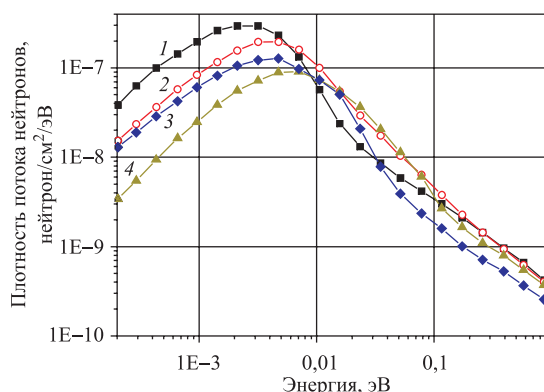


Рис. 8. Сравнение спектров нейтронов для разных материалов холодного замедлителя с оптимизированными для максимального выхода нейтронов толщинами, нормированные на один нейтрон источника на расстоянии 4,5 м от поверхности замедлителя (1 — 2 см метана; 2 — 2 см мезитилена; 3 — 5 см водорода; 4 — 3 см льда)

Исходя из данных рис. 9, можно увидеть, что наиболее эффективен в использовании для получения холодных нейтронов метан, за ним — мезитилен, водород и самый худший в этом отношении материал — лед. Однако водород не может быть использован на ИБР-2М в связи с проблемами безопасности эксплуатации импульсного реактора. Что касается метана, то, учитывая описанные во введении радиационные эффекты и связанные с этим проблемы, а именно: опасность разрыва камеры замедлителя накопленным в процессе облучения водородом, накопление радикалов, вызывающих саморазогрев замедлителя [1–4, 16–19], а также накопление высококипящих полимеров, при использовании его в высоких потоках нейтронов необходимо увеличение толщины предзамедлителя и температуры метанового холодного замедлителя. Результаты расчетов спектров нейтронов из холодного замедлителя для мезитилена и метана, нормированных на один нейтрон источника, приведены на рис. 9.



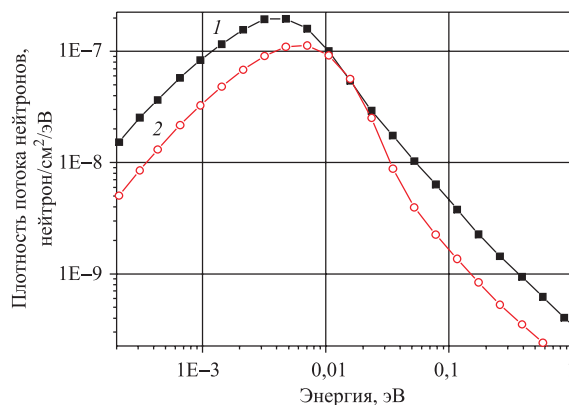


Рис. 9. Сравнение спектров нейтронов из замедлителей для метана и мезитилена при оптимальных для использования на ИБР-2М параметрах на расстоянии 4,5 м от поверхности замедлителя (1 — мезитилен при  $T = 20$  К и толщине предзамедлителя 5 см; 2 — метан при 57 К и толщине предзамедлителя 9 см)

Из сравнения результатов расчетов по оптимизации с учетом возможных эффектов, накладывающих ограничение на использование водородсодержащих материалов, получаем, что для ИБР-2М использование мезитилена в качестве холодного замедлителя нейтронов эффективнее, поскольку интегральная утечка холодных нейтронов из него  $\sim$  вдвое выше, чем из метана.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Kulagin E. et al.* Some Radiation Effects in Cold Moderator Materials, Experimental Study // Proc. of 16th Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources, Dusseldorf-Neuss, Germany, 12–5–2003, P. 911–919.
2. *Kulagin E. et al.* Radiation Effects in Cold Moderator Materials: Experimental Study of Accumulation and Release of Chemical Energy // Nuclear Instr. Meth. B. 2004. V. 215/1-2. P. 181–186.
3. *Shabalin E. P.* On the Phenomenon of the Fast Release of Energy in Irradiated Solid Methane: Discussion of Models Considering the Local Space Distribution of Energy. JINR Communication E17-95-142. Dubna, 1995.
4. *Shabalin E. P.* Consideration of the «Burp» Phenomenon in Solid Methane Accounting for Nonuniform Distribution of Irradiation Defects // Proc. ANL, Argonne, Illinois, 29–9–1997. P. 245–249.
5. *Shabalin E. P. et al.* URAM-2 cryogenic irradiation facility. JINR Communication E13-2002-143. Dubna, 2002.

6. *Shabalin E. et al.* Study of radiation effects in hydrogenous moderator materials at low temperatures (URAM-2 project), FZJ, Juelich, Germany, 2002.
7. *Kulikov S. et al.* The URAM-2 irradiation facility at the IBR-2 Reactor for Radiolysis Study, 2005.
8. *Шабалин Е. П. и др.* Радиационные эксперименты с водородсодержащими материалами на криогенной облучательной установке УРАМ-2 реактора ИБР-2 // АЭ. 2004. Т. 97. С. 183–189.
9. *Briesmeister J. F.* MCNP — A general Monte Carlo *N*-particle transport code. LA-12625-M, 1997.
10. *Cuello G. J., Granada J. R.* Thermal Neutron Scattering by Debye Solids: a Synthetic Scattering Function // *Annals of Nuclear Energy*. 1997. V. 24. P. 763–783.
11. *Granada J. R., Gillete V. H., Petriw S.* Neutron cross section of cryogenic materials: A synthetic kernels for molecular solids // *Proc. FZJ, FZJ, Juelich, Germany*, 11-9-2002.
12. *MacFarlane R. E.* Cold moderator scattering kernel methods // *Proc. LANL, USA*, 7-10-1988, P. 157–178.
13. *MacFarlane R. E., Muir D. W.* The NJOY nuclear data processing system Version 91, Report LA-12740, 1994.
14. *Gillette V. H. et al.* Thermal neutron cross sections for moderator materials: comparison of a synthetic scattering function and NJOY results // *Annals of Nuclear Energy*. 1999. V. 26. P. 1167–1181.
15. *Bernat W., Keinert J., Mattes M.* Evaluation of scattering laws and cross sections for calculation of production and transport of cold and ultracold neutrons // *Proc. FZJ, FZJ, Juelich, Germany*, 11-9-2002.
16. *Carpenter J.* Thermally activated release of stored chemical energy in cryogenic media // *Nature*. 1998. P. 358–360.
17. *Shabalin E. et al.* Experimental study of spontaneous release of accumulated energy in irradiated ices // *Radiation Physics and Chemistry*. 2003. V. 67. P. 315–319.
18. *Гольданский В. И., Руманов Э. Н., Шабалин Е. П.* Пределы распространения волн рекомбинации радикалов // *Химическая физика*. 1999. Т. 18. С. 16–20.
19. *Шабалин Е. П. и др.* Study of fast neutron irradiation effects in cold moderator materials // *Письма в ЭЧАЯ*. 5[114]-2002. С. 82–88.

Получено 30 декабря 2005 г.

Редактор *М. И. Зарубина*

Подписано в печать 17.03.2006.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,5. Уч.-изд. л. 0,59. Тираж 305 экз. Заказ № 55265.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: [publish@pds.jinr.ru](mailto:publish@pds.jinr.ru)

[www.jinr.ru/publish/](http://www.jinr.ru/publish/)