

РЗ-2009-114

А. И. Куклин, А. Х. Исламов, А. Д. Рогов, Ю. Е. Горшкова,
П. К. Утробин, Ю. С. Ковалев, А. В. Рогачев, О. И. Иваньков,
С. А. Кутузов, Д. В. Соловьев, В. И. Горделий

РЕЗУЛЬТАТЫ ИСПЫТАНИЙ КРИОГЕННЫХ
МЕТАНОВЫХ ЗАМЕДЛИТЕЛЕЙ
НА 4-М КАНАЛЕ РЕАКТОРА ИБР-2

Куклин А. И. и др.

P3-2009-114

Результаты испытаний криогенных метановых замедлителей на 4-м канале реактора ИБР-2

Представлены результаты измерений на спектрометре ЮМО (4-й канал ИБР-2) во время испытаний криогенных метановых замедлителей. Обсуждаются расчетные спектры, полученные методом Монте-Карло для гребенчатого и криогенных замедлителей. Получены факторы отношений спектров для гребенчатого и криогенных замедлителей. Показано, что поток от криогенного замедлителя в 4 раза меньше, чем от гребенчатого. Предложены пути развития программы создания замедлителей для спектрометра малоуглового рассеяния нейтронов на реакторе ИБР-2.

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

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2009

Kuklin A. I. et al.

P3-2009-114

The Results of Tests of Methane Cryogenic Moderators on Beam 4 of the IBR-2 Reactor

The results of measurements at the YuMO spectrometer (beam 4 of IBR-2) obtained in the course of the tests of the cryogenic methane moderators are presented. Monte-Carlo simulation spectra for comb-like and cryogenic moderators are discussed. The G_{in} -factor for comb-like and cryogenic moderators was determined. It was shown that a flux from a cryogenic moderator is 4 times less than for a comb-like moderator. The ways for future development of the moderator program for the small-angle neutron scattering spectrometer at IBR-2 are suggested.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2009

ВВЕДЕНИЕ

Для экспериментов на малых углах принципиально важно продвинуться в область малых векторов рассеяния нейтронов \mathbf{q} и, соответственно, в область больших размеров объекта. Это возможно реализовать, если использовать или (и) меньшие углы при регистрации нейтронов, рассеянных на образце, или (и) большие длины волн. Как правило, величины малых углов лимитируются размером прямого пучка, формируемого коллимационной системой, и, соответственно, расходимостью пучка. Поэтому именно изменение спектра в сторону более холодных нейтронов дает возможность проводить измерения больших по размерам объектов. Сдвиг спектра в сторону больших длин волн позволяет также улучшить разрешение по вектору рассеяния \mathbf{q} за счет улучшения углового разрешения и улучшить статистическую достоверность кривых рассеяния.

Метод времени пролета дает возможность использовать широкий спектр длин волн. Спектр падающих на образец нейтронов имеет близкое к максвелловскому распределение. В этом распределении плотность потока при длине волны 6 Å примерно в 250 раз меньше, чем для максимума теплового спектра [1]. Чтобы увеличить количество холодных нейтронов, используют криогенные замедлители (КЗ). Практически каждый нейтронный центр имеет такой замедлитель [2–6], существуют и коммерческие продукты [7].

Работы по созданию холодного замедлителя выполнялись и на реакторе ИБР-2. Результаты испытаний по оптимизации формы замедлителей были проведены на реакторе ИБР-30 еще в 1980 г. [8]. Для реактора ИБР-2 были изготовлены и испытаны два оригинальных КЗ, выполненных на метане [9, 10]. Выбор метанового замедлителя определялся тем, что он имеет преимущество перед водородным замедлителем в выходе нейтронов от 3 до 3,5 раз при длине волны больше 4 Å, как это было показано, например, учеными Аргоннской национальной лаборатории [11, с. 281], а в целом выход холодных нейтронов выше в 2 раза.

Выбор замедлителя происходит по нескольким параметрам, но, например, использование дешевого азотного замедлителя неоптимально из-за высокого сечения поглощения (в 6 раз выше, чем для водорода) и относительно высокой температуры жидкой фазы. Так что реально в мире используются вещества —

водород (или дейтерий) (на 20 замедлителях), метан в твердой или жидкой фазе (8 замедлителей) и твердый мезитилен (2 замедлителя) [10]. Твердый мезитилен (химическая формула C_9H_{12}) в виде шариков предполагается использовать в качестве замедлителя для новой зоны реактора ИБР-2М [10].

В табл. 1 представлена краткая информация о замедлителях некоторых нейтронных центров [2–6]. Как видно, большинство ведущих нейтронных исследовательских центров имеют водородные (дейтериевые) криогенные замедлители. Недостаток водорода как взрывоопасного вещества именно для реактора ИБР-2 (стационарные реакторы менее (в 40 раз) чувствительны к

Таблица 1. Холодные замедлители для некоторых нейтронных источников

Институт, реактор	Тип холодного замедлителя	Температура, К	Примечание
HMI, BER II [2]	Водородный	25–35	Сверхкритический водород в диапазоне давлений 14–16 бар
GKSS, FRG-1 [3]	Водородный	25	Давление > 13 бар
ISIS, ускоритель [4]	Водородный и жидкий метановый	20 100	1. Композитный водород/твердый метан (8,3×3 см) 2. Жидкий метан (12×12 см)
NIST, NCNR [5]	Водородный	20	Жидководородный замедлитель эллипсоидальной формы помещен в криостат с тяжелой водой
ILL [6]	Жидкий дейтерий	25	Горизонтальный криогенный замедлитель: алюминиевая сфера диаметром 38 см, заполненная кипящим жидким дейтерием. Вертикальный криогенный замедлитель: 20 дм ³ жидкого дейтерия, цилиндр диаметром 21 см, заполненный жидким дейтерием.
SINQ [7]	Жидкий дейтерий	25	Изотепловой двухфазный: в одну сторону жидкий дейтерий, обратно — жидкогазовая смесь, объем замедлителя 20 л, общий объем 60 л, работает при давлении 1,5 бар
HFBR [8]	Жидкий водород	19	Сплюснутая эллипсоидальная камера диаметром 20 см с максимальной толщиной 7 см заполнена 1,4 л жидкого водорода. Циркулирующий охлаждаемый гелий поддерживает водород при постоянной температуре

изменениям геометрии) отмечают авторы статьи [9]. На реакторе ИБР-2 на 4, 5 и 6-м каналах длительное время использовался гребенчатый по форме тепловой замедлитель с легкой водой. Геометрия замедлителя и конструктивные особенности были связаны с измерениями на ИБР-30 в теплой и холодной модах [8]. Было показано, что гребенчатый замедлитель позволяет увеличить средний поток тепловых нейтронов в три раза по сравнению с дырчатым замедлителем и замедлителем с отражателем из бериллия. Гребенки были расположены горизонтально, их сечением был треугольник высотой 10 см, расстояние между гребнями 2 см. Толщина плоской части, расположенной ближе к реактору, составляла 3 см. К сожалению, авторы не указали, сравнение с каким замедлителем дает увеличение потока холодных нейтронов в 5–6 раз. Судя по расположенному рядом другому рисунку, фактор выигрыша приведен для плоского замедлителя толщиной 4,5 см и размерами 25×25 см. Авторы провели измерения и с водно-спиртовым раствором при понижении температуры до 85 К. Несмотря на то, что на макете был получен выигрыш в выходе холодных нейтронов в 3 раза, авторы утверждают, что при наличии рабочей криогенной системы поток холодных нейтронов оказался чуть выше, чем у теплового режима (300 К).

Объяснение этому авторы видели в увеличении количества конструктивного материала и удалении замедлителя от активной зоны. Следовательно, создание хорошего замедлителя включает в себя учет конструктивных и геометрических особенностей источника и замедлителя.

Конструктивные особенности, режимы и специфика работы, а также некоторые результаты испытаний метановых замедлителей на реакторе ИБР-2 представлены в работах [9, 10, 12]. Результаты исследований на 5, 6-м каналах ИБР-2 изложены в работе [13].

В нашей работе анализируются результаты систематических измерений, полученных при испытаниях холодных метановых замедлителей нейтронов на спектрометре ЮМО, а также результаты расчетов спектров нейтронов с использованием метода Монте-Карло. Целью исследований было не только получение нейтронных спектров, но и определение факторов выигрыша при использовании гребенчатого и криогенного замедлителей нейтронов для малоуглового спектрометра, имеющего геометрию прямой видимости поверхности замедлителя с позиции образца.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

Криогенный замедлитель по размерам и расположению был подобран так, что работал на 3 спектрометра: 4, 5 и 6-й канал ИБР-2. В отличие от дифрактометров 5 и 6-го каналов на малоугловом спектрометре ЮМО (рис. 1) не используется зеркальный нейтронный провод и имеется прямая видимость по-

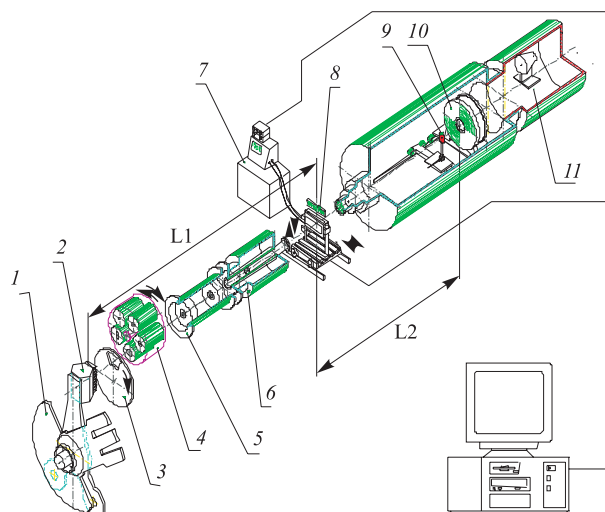


Рис. 1. Вид спектрометра ЮМО на 4-м канале ИБР-2 в процессе измерений: 1 — отражатель; 2 — зона с холодным замедлителем; 3 — прерыватель; 4 — первый коллиматор; 5 — вакуумная труба; 6 — второй коллиматор; 7 — жидкостный термостат; 8 — столик с образцами; 9 — ванадиевый стандарт; 10 — кольцевой детектор нейтронов; 11 — детектор прямого пучка

верхности замедлителя с позиции образца, поэтому полученные результаты нет необходимости корректировать на функцию пропускания нейтронотода. Расстояние замедлитель – позиция образца (L_1) 18 м, замедлитель – детектор прямого пучка 35 м, замедлитель – детектор рассеяния (L_1+L_2) 30 м. Первый коллиматор находится на расстоянии 5,28 м от замедлителя, второй коллиматор — 17,7 м.

ИЗМЕРЕНИЯ С МЕТАНОВЫМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕМ I

Измерения на 4-м канале ИБР-2 с первым криогенным метановым замедлителем [9, 12] проводились с использованием двух независимых детекторов: детектора прямого пучка (конвертором нейтронов служит алюминиевая пластина с напыленным ${}^6\text{LiF}$, а α -частицы регистрируются группой поверхностно-барьерных кремниевых детекторов, расположенных в стороне от линии пучка нейтронов) и детектора рассеяния (кольцевой пропорциональный детектор рассеяния оригинальной конструкции [14]). При использовании пучка без образца определяли фоновую составляющую на детекторе рассеяния, а по детектору прямого пучка при этих условиях измерялась интенсивность. В качестве образцов служили ванадий (как в позиции образца, так

и перед детектором рассеяния уже в качестве стандарта) и пластик с сажей, имеющий чрезвычайно высокое сечение рассеяния, особенно при больших длинах волн при измерениях интенсивности пучка кольцевым детектором рассеяния.

Проверка показала, что отношения спектров, получаемые от разных детекторов и различных образцов, дают самосогласованный результат. В дальнейшем мы не уточняем, какой образец использовался при получении спектров.

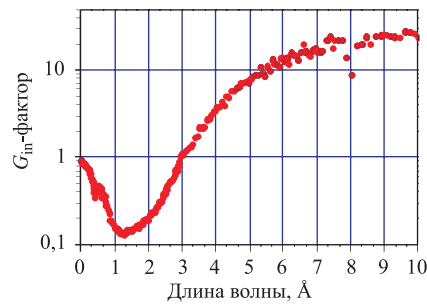


Рис. 2. Фактор выигрыша КЗ, полученный с помощью рассеяния от образца и зарегистрированный кольцевым детектором нейтронов с учетом фона

На рис. 2 представлен фактор выигрыша для первого метанового замедлителя. Выигрыш при использовании КЗ начинается для нейтронов с длиной волны 3 Å и достигает величины 20–25 раз при длинах волн свыше 10 Å. По интегральному потоку криогенный замедлитель проигрывает гребенчатому водяному примерно в 3 раза.

ИЗМЕРЕНИЯ С МЕТАНОВЫМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕМ II

Эксперименты со вторым метановым замедлителем (1999–2000 гг.) на 4-м канале ИБР-2 проводились в стандартной на тот момент конфигурации установки (рис. 1). Угол между нормалью к поверхности замедлителя и осью пучка составляет, как и для измерений 1994 г., 14° . В измерениях были задействованы два детектора, как и при испытаниях с метановым замедлителем I: детектор рассеяния *10* — кольцевой пропорциональный гелиевый счетчик и детектор прямого пучка *11* — поверхностно-барьерный детектор с литиевым конвертором, а также, дополнительно, камера деления [1]. Приведенные ниже спектры — результат анализа данных по этим детекторам.

На рис. 3 представлен эффективный спектр нейтронов. По сравнению с первым КЗ тепловая часть имеет характерные зубцы, являющиеся результатом «выедания» от бериллиевых частей замедлителя.

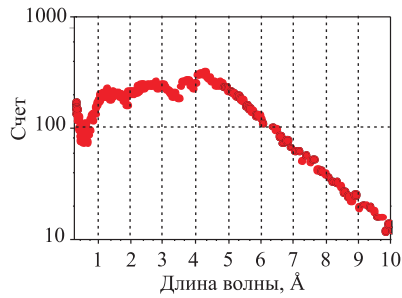


Рис. 3. Эффективный спектр нейтронов от криогенного замедлителя при $T_{КЗ} = 32$ К

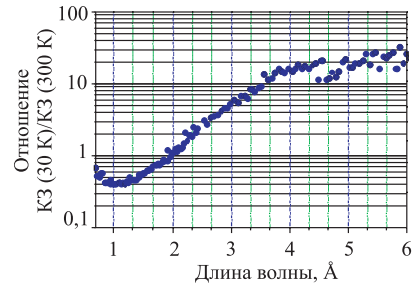


Рис. 4. Отношение спектров криогенного замедлителя с метаном при 30 К и без метана при 300 К (предзамедлитель)

На рис. 4 показан результат отношения спектров, полученных во время работы холодного замедлителя в температурном режиме 30 и 300 К. Фактор выигрыша криогенного замедлителя по отношению к этому же замедлителю, но без метана (водяной предзамедлитель), составляет около 20 при длине волны нейтрона больше 4 Å. При длине волны 2 Å это отношение равно 1, минимальное отношение 0,4 при длине волны около 1 Å.

После проведения тестов с криогенным замедлителем был установлен штатный гребенчатый с легкой водой. Были проведены эксперименты и получены спектры от гребенчатого замедлителя (ГЗ).

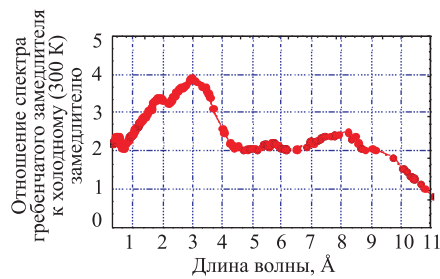


Рис. 5. Отношение спектра водяного гребенчатого замедлителя к холодному замедлителю без метана (фактор выигрыша гребенки)

Проведено сравнение спектров холодного замедлителя без метана при $T = 300$ К и гребенчатого замедлителя при такой же температуре. На рис. 5 представлены результаты этого сравнения: отношение эффективного спектра во время работы гребенчатого замедлителя к эффективному спектру того же детектора и образца при работе реактора с КЗ без метана при $T = 300$ К (предзамедлитель КЗ). Средний выигрыш ГЗ составляет примерно 2–2,5 раза. Максимальный выигрыш — около 4 раз при длине волны 3 Å. При длинах волн 4 Å и выше гребенчатый замедлитель эффективней плоского КЗ без метана в 2 раза.

На рис. 6, 7 приведены факторы выигрыша по спектру длин волн до 10 Å при работе реактора с холодным замедлителем при температурах $T = 29$ –30 и $T = 66$ К. Фактор выигрыша КЗ по отношению к ГЗ составляет около 10 при длине волны нейтрона 6 Å и при $T = 29$ –30 К. При длине волны нейтрона 1 Å величина отношения эффективных спектров холодного замедлителя к гребенчатому составляет 0,06. Если температуру холодного замедлителя повысить до $T = 66$ К, то отношение значений плотностей потоков при длине волны около 1 Å становится 0,1, а для холодных нейтронов (свыше 4 Å) это отношение больше чем 5.

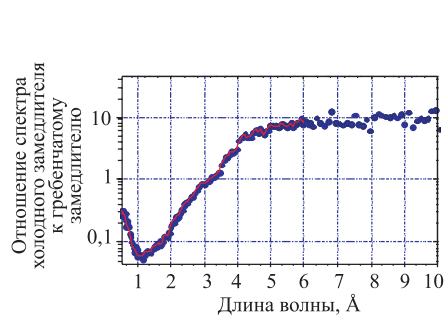


Рис. 6. Фактор выигрыша от криогенного замедлителя при 29–30 К по отношению к гребенчатому замедлителю

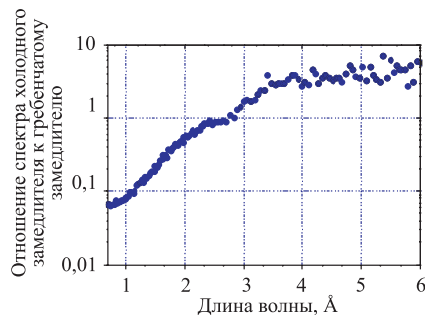


Рис. 7. Фактор выигрыша от криогенного замедлителя при 66 К по отношению к гребенчатому замедлителю

В январе 2000 г. были проведены измерения с камерой деления по определению абсолютных потоков на 4-м канале [1]. Исходя из данных, представленных на рис. 7, и данных указанной выше работы можно получить поток на 4-м канале в позиции образца (рис. 8).

Сформулируем основной результат по испытанию детектора (выбран наилучший результат — выигрышный для КЗ) по всем экспериментальным данным: криогенный замедлитель ($T = 30$ К) дает выигрыш в интенсивности

нейтронов при длине волны больше 3 Å. При длине волны больше 6 Å выигрыш составляет около 10. Вместе с тем криогенный замедлитель без метана (предзамедлитель) при $T = 300$ К существенно проигрывает гребенчатому замедлителю. Максимальный проигрыш (значение около 4) при длине волны 3 Å, а средний проигрыш примерно 2,5 во всем полезном интервале. Эти величины являются верхним значением оценки выигрыша гребенчатого замедлителя по отношению к плоскому замедлителю ввиду того, что оптимизация замедлителя проводится для всего КЗ, а не только для плоской его части. В табл. 2 приведены потоки для ГЗ и КЗ в позиции образца 4-го канала ИБР-2, полученные из анализа спектров рис. 8.

Таблица 2. Потоки нейтронов в позиции образца на 4-м канале ИБР-2 (из экспериментальных данных)

Диапазон длин волн, Å	Плотность потока нейтронов в позиции образца 4-го канала для криогенного замедлителя, $\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$	Плотность потока нейтронов в позиции образца 4-го канала для гребенчатого замедлителя, $\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
0,5–10	$2,0\cdot 10^6$	$9,3\cdot 10^6$
2–10	$1,0\cdot 10^6$	$1,2\cdot 10^6$
3–10	$0,6\cdot 10^6$	$0,2\cdot 10^6$

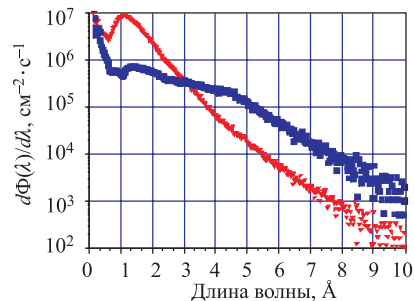


Рис. 8. Плотности потоков криогенного и гребенчатого замедлителей

Методом Монте-Карло были рассчитаны спектры в позиции образца для 4-го канала. Схемы замедлителей, использованные при расчетах спектров гребенчатого и метанового замедлителей, приведены на рис. 9, а и б соответственно. Схематически изображен центр зоны (отмечен крестиком), в правой части рисунков — отражатели, а в левой части рисунков — замедлители, центральная часть рисунков — зона реактора.

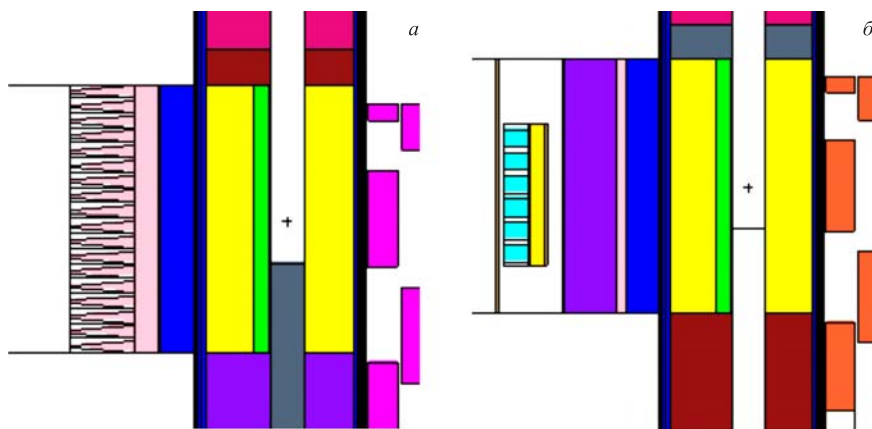


Рис. 9. Схема гребенчатого (а) и метанового (б) замедлителей, использованных для расчетов методом Монте-Карло

Расчеты проводились при расположении основных частей спектрометра согласно схеме, приведенной в работе [1]. На рис. 10 показаны спектры, полученные с использованием метода Монте-Карло для гребенчатого и криогенного замедлителей рис. 9, а и б соответственно.

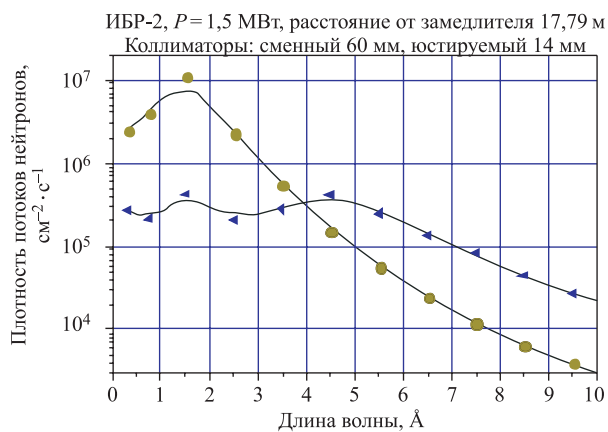


Рис. 10. Расчетные спектры, полученные с использованием метода Монте-Карло для гребенчатого и криогенного замедлителей ($T = 30$ К). Кружками обозначены спектры для криогенного замедлителя, а треугольниками — для гребенчатого замедлителя в соответствии со схемами рис. 9, а и б

В диапазоне длин волн нейтронов от 0,5 до 10 Å криогенный замедлитель дает меньший поток, чем гребенчатый, примерно в 4,6 раза. Для диапазона длин волн нейтронов от 2 до 10 Å эти потоки становятся сравнимыми, а в диапазоне длин волн нейтронов от 3 до 10 Å поток от КЗ больше потока от ГЗ в три раза. Последний результат подтверждается результатами, полученными для этих же замедлителей на пучках, где есть нейтронотводы.

Таким образом, и моделирование с использованием метода Монте-Карло, и анализ реальных спектров показывают, что применение холодного замедлителя на пучке без нейтронотвода приводит к уменьшению потока на образце более чем в 4 раза (при используемом сейчас диапазоне длин волн нейтронов) по сравнению с водяным гребенчатым замедлителем. Известно, что величина фона зависит только от мощности реактора. В силу конструктивных особенностей и сложности КЗ ухудшается и соотношение образец/фон в интенсивности рассеяния. И наоборот, на пучках, где есть нейтронотводы, выигрыш по потоку составляет около 2 раз [13]. Это связано с функцией пропускания нейтронотвода для коротких длин волн.

ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ВОЗДУХА НА СПЕКТРЫ И СООТНОШЕНИЕ СПЕКТРОВ ГРЕБЕНЧАТОГО И ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЕЙ

Существенная часть пути нейтронов (5,5 м) от замедлителя до образца на малоугловом спектрометре проходит по воздуху. На рис. 11 показано пропускание этой пролетной части для сухого ($R_h = 0\%$) и влажного воздуха ($R_h = 100\%$).

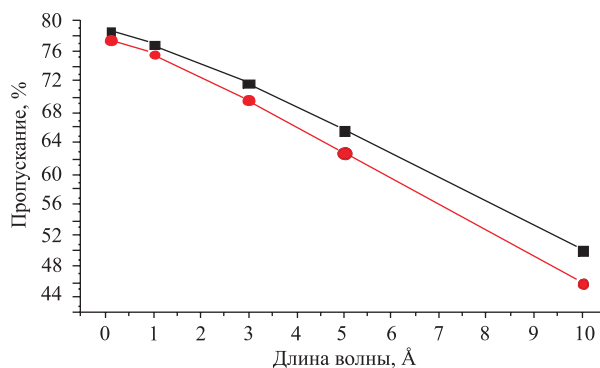


Рис. 11. Зависимость пропускания от длины волны при прохождении нейтронов через 550 см воздуха: кружки — влажный воздух ($R_h = 100\%$, $t = 20\text{ }^\circ\text{C}$, $P = 1\text{ атм}$); квадраты — сухой воздух ($R_h = 0\%$, $t = 20\text{ }^\circ\text{C}$, $P = 1\text{ атм}$)

Мы оценили влияние пропускания влажного и сухого воздуха на потоки и приводим в табл. 3 расчетные значения потоков в нескольких диапазонах длин волн нейтронов в случае устранения 5,5-м воздушного промежутка.

Таблица 3. Расчетные значения плотностей потоков для гребенчатого/холодного замедлителей в случае полного устранения воздушного зазора для 4-го канала (устранение 100 % влажного воздуха)

Диапазон длин волн, Å	Плотность потока нейтронов на месте образца 4-го канала для криогенного замедлителя в случае устранения влажного воздуха, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Плотность потока нейтронов на месте образца 4-го канала для гребенчатого замедлителя в случае устранения влажного воздуха, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
0,5–10	2,84	12,6
2–10	1,54	1,92
3–10	0,96	0,37

Качественно картина по соотношению спектров от КЗ и ГЗ не изменилась: для ГЗ увеличение потока составило 1,35 раза, а для КЗ — 1,42 раза (табл. 4). В диапазоне длин волн нейтронов от 0,5 до 10 Å криогенный замедлитель дает поток, меньший чем гребенчатый примерно в 4,44 раза.

Для диапазона длин волн нейтронов от 2 до 10 Å эти потоки становятся сравнимыми, а в диапазоне длин волн нейтронов от 3 до 10 Å поток от КЗ больше потока от ГЗ в 2,6 раза. Таким образом, фактор ослабления нейтронного пучка не меняет отношения факторов проигрыша описываемых криогенных замедлителей. С другой стороны, наблюдается существенное увеличение потоков. Верхние значения факторов выигрыша в случае устранения всего воздушного зазора со 100 %-й влажностью воздуха представлены в табл. 4.

Таблица 4. Отношение расчетных значений потоков при условии устранения влажного воздуха (табл. 3) к экспериментальным значениям потоков (табл. 2) для криогенного и гребенчатого замедлителей

Диапазон длин волн, Å	Криогенный замедлитель	Гребенчатый замедлитель
0,5–10	1,42	1,35
2–10	1,54	1,6
3–10	1,6	1,85

Удаление всего воздушного зазора (5,5 м) крайне затруднительно из-за существенной длины пролета нейтронов на воздухе под шибером и за стеной, разделяющей кольцевой коридор и реакторное помещение. В табл. 5

приведены потоки нейтронов в позиции образца на 4-м канале ИБР-2 при устранении воздушного зазора в 5 и 3 м.

Величины факторов выигрыша по потоку (35 % по общему потоку для гребчатого замедлителя в диапазоне от 2 до 10 Å и 60 % в диапазоне от 2 до 10 Å при условии устранения воздуха) требуют отдельного рассмотрения. Введение дополнительных окон (алюминиевых, или ванадиевых, или кварцевых) уменьшит эти факторы выигрыша. Уменьшение фактора выигрыша даст и введение реального значения влажности.

Таблица 5. Плотности потоков нейтронов в позиции образца на 4-м канале ИБР-2 при устранении воздушного зазора в 3 и 5 м

Диапазон длин волн, Å	Плотность потока нейтронов в позиции образца от КЗ (экспериментальные данные табл. 2), $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Плотность потока нейтронов в позиции образца от КЗ (если устранить 3 м воздуха), $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Плотность потока нейтронов в позиции образца от КЗ (если устранить 5 м воздуха), $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
0,5–10	2	2,5	2,8
2–10	1,0	1,3	1,5
3–10	0,6	0,8	0,92
0,5–10	9,3	11	13
2–10	1,2	1,5	1,7
3–10	0,2	0,27	0,34

Остается открытым вопрос об оптимизации самого холодного замедлителя. В табл. 6 приведены потоки нейтронов реактора FRM для теплового и холодного замедлителей [16, 17]. Холодный замедлитель для этого реактора был реализован на основе жидкого дейтерия при температуре 25 К.

Таблица 6. Потоки нейтронов для реактора FRM для теплового и холодного замедлителей [16, 17]

Диапазон длин волн, Å	Значение потока нейтронов реактора FRM от замедлителя в теплой моде, $10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Значение потока нейтронов реактора FRM от замедлителя в холодной $10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Отношение значения потока нейтронов в холодной моде к значению потока нейтронов в теплой моде
0,5–9,5	6,21	3,77	0,6
2–9,5	1,17	2,29	2,0
3–9,5	0,32	1,7	5,3

Общий проигрыш холодного замедлителя составляет 40 %. Выигрыш для диапазона длин волн от 2 до 9,5 составляет 2, а от 3 до 9,5 Å выигрыш холодного замедлителя уже больше 5.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ АПОФЕРРИТИНА И ЛИПИДА

Представленные выше спектры, потоки и плотности потоков показывают соотношения между разными типами замедлителей. Однако целью использования криогенного замедлителя является расширение диапазона переданных импульсов и, следовательно, диапазона размеров измеряемых объектов. Сдвиг спектра в сторону больших длин волн позволяет также улучшить разрешение по вектору рассеяния \mathbf{q} за счет улучшения углового разрешения и увеличить статистическую достоверность кривых рассеяния. На рис. 12 представлены результаты сравнения двух спектров, полученных от одного и того же

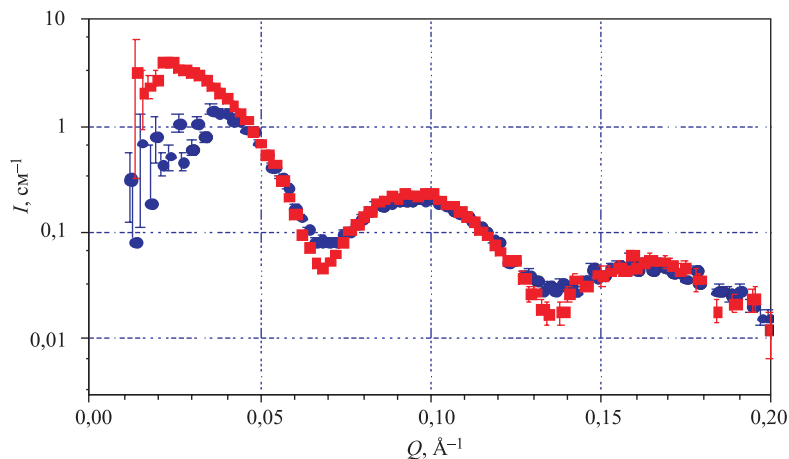


Рис. 12. Расширение диапазона переданных импульсов за счет холодного замедлителя для второй позиции детектора (3,73 м). Образец — апоферритин 25 мг/мл, NaCl 0,075 моль в D20, буфер D20+NaCl (0,075 моль): кружки — экспериментальные точки при измерениях с КЗ без метана (предзамедлитель); квадраты — экспериментальные точки при измерениях с КЗ

образца — белка апоферритина, имеющего известную структуру [18]. Характерный излом кривой рассеяния является указанием на границу использования длины волны. Для кривой рассеяния, полученной в теплой моде, он составляет $0,046 \text{ \AA}^{-1}$, а для кривой рассеяния, полученной на установке ЮМО с криогенным замедлителем, — $0,02 \text{ \AA}^{-1}$. В области около $0,07 \text{ \AA}^{-1}$ характерный провал на кривой рассеяния глубже для случая КЗ. Это свидетельствует

о том, что при выбранных условиях разрешение спектрометра с КЗ лучше. Однако выбранный нами образец имеет высокое сечение рассеяния, а время измерения практически не лимитировалось. В режиме работы реактора с гребенчатым замедлителем кривая рассеяния, представленная на рис. 12, может быть получена в позиции на расстоянии 5,28 м от образца за существенно меньшее время. Проигрыш по потоку для КЗ не компенсируется понижением фона, что и приводит к худшему соотношению сигнал/шум. Прямая геометрия установки ЮМО создает высокую составляющую фона, но такой фон можно считать «хорошим» благодаря большой статистике. Аналогичная ситуация существует на синхротронных малоугловых установках, где чаще используют не газовый детектор, а ССД-камеру, обладающую высоким темновым током. Высокий уровень фона компенсируется относительной гладкостью кривой рассеяния для фоновой составляющей и, главное, исключительно высоким потоком.

На рис. 13 демонстрируется расширение диапазона по вектору рассеяния q до $0,004 \text{ \AA}^{-1}$. Однако выбранный образец имеет высокое сечение рассеяния (свыше 100 см^{-1}), а статистический разброс экспериментальных точек при сечении рассеяния ниже 1 см^{-1} свидетельствует о существенном сокращении доступного для измерений диапазона по сечению рассеяния и, следовательно, диапазона по вектору рассеяния q . Большинство решаемых задач на спектро-

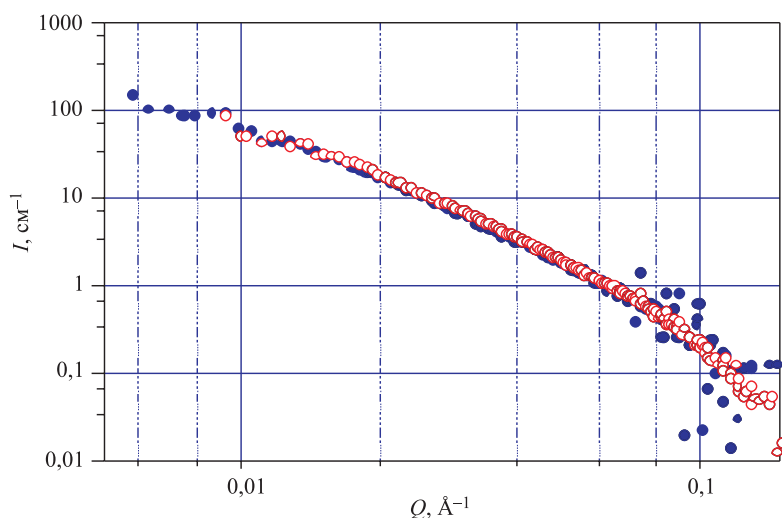


Рис. 13. Расширение диапазона переданных импульсов за счет холодного замедлителя для DOPC-везикул 1 wt% в D_2O . Расстояние образец–детектор 10,55 м, коллиматор 60/14. ● — криогенный замедлитель; ○ — гребенчатый замедлитель

метре ЮМО связано как раз с возможностью проведения быстрых измерений при малых (от менее 1 см^{-1} до нескольких единиц 10^{-3} см^{-1}) значениях сечения рассеяния в широком диапазоне векторов рассеяния. Так, для данного образца принципиально продвижение хотя бы до $0,2 \text{ \AA}^{-1}$, поскольку в этом случае мы могли бы контролировать мультислойность липида. Из-за ограничений диапазона по сечению рассеяния даже двухдетекторная схема проведения измерений не улучшает данную ситуацию.

ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Задача создания холодного замедлителя для малоуглового спектрометра ЮМО была поставлена практически со дня его основания. За прошедшее время на ИБР-2 было испытано два метановых замедлителя. Как уже было отмечено, из-за отсутствия нейтронвода полученные результаты имеют большое значение не только для спектрометра ЮМО, но и в целом для проекта холодного замедлителя.

Использование таких замедлителей приводит к увеличению потока до 10 раз для нейтронов с длиной волны свыше 5 \AA . С другой стороны, результаты испытаний замедлителя показали, что интегральная интенсивность в позиции образца для нейтронов от $0,7$ до 7 \AA уменьшается более чем в 4 раза по сравнению с гребенчатым замедлителем.

Особенностью полной обработки малоугловых данных современными методами является использование всего диапазона кривой рассеяния. Это приводит к тому, что критерий χ -квадрат определяется всей кривой рассеяния. Следовательно, использование холодного замедлителя ухудшает возможность подбора параметров при поиске модели рассеяния. Для ряда специфических задач (изучения микрорассеивателей больших размеров, определения только радиуса инерции или интенсивности в нуле) использование спектра от холодного замедлителя может, предположительно, и дать выигрыш. Но, подчеркиваем, это ряд частных специфических задач, которые еще должны быть найдены и сформулированы.

Большие потери в области теплового максимума (свыше 10 раз для максимума и больше 4 раз для рабочего диапазона длин волн) при одинаковой мощности реактора (фоновая компонента остается без изменений) не могут быть скомпенсированы выигрышем при больших длинах волн для спектрометра, имеющего прямую видимость замедлителя и использующего время-пролетную методику. Этот вывод был подтвержден попытками получения экспериментальных данных не только от образцов, описанных выше, но и от других образцов.

Значение коэффициента потерь в диапазоне от $0,5$ до 4 \AA эффективно означает уменьшение мощности реактора до сотен киловатт, а фон остается

неизменным, т. е. соответствует мощности реактора 1,5 МВт. Такое ухудшение соотношения сигнал/фон становится критическим для существующей геометрии спектрометра ЮМО. Данный вывод подтверждается и тем, что ситуация с измерениями образцов в штатном малоугловом режиме существенно улучшалась при работе лишь водяного предзамедлителя без метана. Это стало возможным именно за счет улучшения соотношения сигнал/фон.

Ситуация на стационарных источниках нейтронов принципиально другая при установке холодных замедлителей. Как правило, в этом случае работают с одной длиной волны в диапазоне от 4 до 8 Å и выше. В этом случае, наоборот, происходит увеличение потока до 10 раз, что кардинально улучшает ситуацию.

Применение холодного замедлителя на малоугловом спектрометре реактора ИБР-2 может быть возможно при использовании нейтроновода и/или уменьшения фона. В этом случае можно компенсировать общее падение полезной интенсивности. Требование снижения фона для КЗ означает максимальное упрощение конструкции — практически должен быть тонкостенный сосуд с метаном (мезитиленом). Следующее требование к холодному замедлителю для спектрометра ЮМО — КЗ должен быть комбинационный, т. е. сочетать одновременно как теплую моду, так и холодную. Теплая часть замедлителя должна быть выполнена в виде гребенчатого замедлителя, а холодная часть должна находиться сверху замедлителя, чтобы компенсировать падение длинноволновых нейтронов в процессе движения к образцу и детектору. Следующим выводом является то, что необходима адаптация (или модернизация) установки ЮМО к спектру нейтронов с холодным замедлителем. В этом случае можно будет достигнуть малых q . Это связано прежде всего с использованием в качестве рассеивателя ванадиевого стандарта как в однодетекторном [15], так и в двухдетекторном варианте работы спектрометра [18, 19]. Но проведенные нами исследования не выявили подходящей для этой цели замены используемому сейчас ванадиевому стандарту.

Однако и адаптация может лишь частично скомпенсировать потери при установке холодного замедлителя. Фактически мы можем лишиться спектрометра для решения широкого спектра задач: от материаловедения до биологии, потеряв возможность проводить исследования при малых сечениях рассеяния. Исчезнет и второе преимущество спектрометра — скорость накопления экспериментальных данных. Небольшой выигрыш в разрешении спектрометра при использовании холодного замедлителя, указанный в статье, уже скомпенсирован использованием нового позиционно-чувствительного детектора с высоким разрешением. Разрешение на настоящий момент будет лимитироваться коллимацией установки. Устранение большого пролетного расстояния (свыше 5,5 м) на воздухе хотя и дает существенное увеличение потока именно для холодных длин волн (рис. 11, табл. 3), но реально устранить воздушный зазор можно лишь в кольцевом коридоре (около 2 м).

Другим предложением развития установки ЮМО могла бы стать принципиальная разработка проекта по совмещению на нейтронном канале спектрометра двух аналогичных установок. Одна из установок должна содержать в себе все достоинства спектрометра ЮМО и не предполагать использование криогенного замедлителя. Другую установку, органически использующую открытое окно канала, можно совместить со спектрометром ЮМО без существенных модификаций, если использовать нейтроноводы. Это, конечно, приведет к потерям на отражение в коротковолновой части нейтронного пучка в нейтроноводах. Полагаем, что вторая установка ниже по классу, чем ЮМО, по спектру решаемых задач и разрешению прежде всего за счет потерь интенсивности нейтронов с гребенчатым замедлителем, но в случае установки холодного замедлителя будет работать эффективнее.

Практическое использование холодного замедлителя в том виде как он есть вместо гребенчатого не дало новых научно значимых преимуществ спектрометру ЮМО, а некоторый выигрыш при малых Q компенсировался потерями на больших Q . Как уже упоминалось, качественные данные при больших векторах рассеяния крайне важны для надежного определения формы исследуемых объектов.

Необходимо подчеркнуть, что возможность восстановления формы объектов является, пожалуй, главным достижением в методике малоуглового рассеяния последних лет. И терять такую возможность никак нельзя. Если к этому добавить, что недостатки метанового замедлителя, связанные и с его специфическим временным циклом работы, и с замедлением темпа набора экспериментальных данных, и, соответственно, с увеличением времени измерений для компенсации потери интегральной интенсивности более чем втрое, то становится ясным, что детальное обсуждение замедлителя для ЮМО, которое проводится в настоящей работе, необходимо для выработки оптимальной конструкции замедлителя.

Суммируем основные выводы настоящей работы, а также их аргументацию. Несмотря на то, что преимущества МУРН на пучках нейтронов от холодных замедлителей прежде всего на стационарных реакторах являются общеизвестными, необходимо помнить, что специфика времяпролетной методики измерений (используется весь спектр доступных нейтронов) на импульсных источниках нейтронов, специфика конкретного используемого замедлителя нейтронов, а также спектр решаемых научных задач на малоугловой установке определяют ее эффективность. Эксперименты показали, что выполняемые ранее за короткие времена малоугловые измерения требуют существенно большего времени накопления при использовании тестируемых холодных замедлителей. Одна из главных причин — статистические ошибки всей определяемой функции рассеяния, а не только ее малоугловой части, определяют точность и надежность восстановления структуры исследуемого объекта. Эти эксперименты еще раз подтвердили, что требование высокой

интегральной интенсивности есть одно из решающих условий успешности экспериментов на спектрометре ЮМО. Поэтому холодный замедлитель должен быть по крайней мере комбинированным (скажем, 70 % — теплая мода типа ГЗ и 30 % — холодная мода) для спектрометра ЮМО. Необходимо обеспечить стабильность работы такого замедлителя. Конечно, в этом случае потребуются адаптация спектрометра к новым условиям. Необходимо будет также устранить большой воздушный зазор малоуглового спектрометра и решить ряд других проблем.

Допускаем, что форма гребенчатого замедлителя не совсем оптимальна, но результаты, полученные при испытаниях и подтвержденные более чем двадцатилетней практикой использования ГЗ, доказывают его высокую эффективность.

Таким образом, мы указываем на возможные пути решения проблемы холодного замедлителя для малоуглового направления на ИБР-2М в целом.

Авторы благодарны Е. П. Шабалину и Л. П. Черненко за обсуждение отдельных результатов статьи, сотрудникам группы малоуглового рассеяния за помощь и терпение при испытаниях холодного замедлителя, руководству отдела и Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка за внимание к настоящей работе. Также признательны Р. И. Мухамедзянову и Р. Г. Ефремову за помощь при работе над статьей. Авторы благодарят полномочного представителя Румынии за поддержку этой работы грантами полномочного представителя Правительства Румынии.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Kuklin A. I. et al.* JINR Preprint E13-2002-249. Dubna, 2003.
2. http://www.hmi.de/grossgeraete/forschungsreaktor/aufbau_en.html
3. *Knop W., Krull W.* The Cold Neutron Source of GKSS // *Atw. Intern. Zeitschrift für Kernenergie.* 1998. V. 43, No. 2. P. 99–101.
4. <http://ts-2.isis.rl.ac.uk/target/moderators.htm>
5. <http://www.ncnr.nist.gov/coldgains>
6. http://www.ill.fr/pages/science/User/neutron_source.html
7. http://www.accel.de/pages/cold_neutron_source.html
8. *Гундорин Н. А., Назаров В. М.* Эффективный замедлитель для импульсных источников нейтронов. Препринт ОИЯИ РЗ-80-721. Дубна, 1980.
9. *Belyakov A. A. et al.* Solid methane cold moderator at the IBR-2 reactor // *J. Neut. Res.* 1996. V. 3. P. 209–221.

10. *Шабалин Е.* Холодный замедлитель нейтронов // ЭЧАЯ. 2005. Т. 36, вып. 6. С. 1425–1442.
11. *Thiyagarayan P. et al.* The time-of-flight small-angle neutron diffractometer (SAD) at IPNS, Argonne National Laboratory // J. Appl. Cryst. 1997. V. 30. P. 280–293.
12. *Shabalin E. P. et al.* Solid methane cold moderator at the IBR-2 reactor: test operation at 2 MW // Proc. of PANS-II, the Second International Meeting on Pulsed Advanced Neutron Sources, Dubna, 14–17 June 1994. JINR, Dubna, D3-95-169. 1995.
13. *Балагуров А. М. и др.* Препринт ОИЯИ РЗ-2000-220. Дубна, 2000. 18 с.
14. *Ананьев Б. Н. и др.* Кольцевой многонитевой детектор медленных нейтронов с гелием-3. Сообщение ОИЯИ 3-11502. Дубна, 1978.
15. *Ostanevich Y. M.* Time-of-flight small-angle scattering spectrometers on pulsed neutron sources // Makromol. Chem. Macromol. Symp. 1988. V. 15. P. 91–103.
16. *Gaubatz W., Gobrecht K.* The FRM-II cold neutron source // Physica B. 2000. V. 276–278. P. 104–105.
17. <http://www.frm2.tum.de/technik/advanced-neutron-instrumentation/index.html>
18. *Kuklin A. I., Islamov A. Kh., Gordeliy V. I.* // Neutron News. 2005. V. 16, No. 3. P. 16–18.
19. *Куклин А. И. и др.* Оптимизация двухдетекторной системы малоуглового нейтронного спектрометра ЮМО для исследования нанообъектов // Поверхность. 2006. № 6. С. 74–83.

Получено 30 июля 2009 г.

Редактор *Е. В. Сабеева*

Подписано в печать 29.09.2009.

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

Усл. печ. л. 1,37. Уч.-изд. л. 1,7. Тираж 310 экз. Заказ № 56722.

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

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/