

**АНАЛИЗ СПЕКТРОВ И ПОТОКОВ
ОТ КРИОГЕННЫХ И ТЕПЛОВЫХ ЗАМЕДЛИТЕЛЕЙ
НЕЙТРОНОВ РЕАКТОРА ИБР-2
ПО РЕЗУЛЬТАТАМ МОДЕЛИРОВАНИЯ
И ЭКСПЕРИМЕНТОВ НА УСТАНОВКЕ
МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЯНИЯ ЮМО**

*А. И. Куклин^{а, б, 1}, А. Д. Рогов^а, Ю. Е. Горшкова^а, П. К. Утробин^б,
Ю. С. Ковалев^а, А. В. Рогачев^{а, в}, О. И. Иваньков^{а, 2}, С. А. Кутузов^а,
Д. В. Соловьев^{а, 2}, В. И. Горделий^{а, б, д, е}*

^а Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

^б Московский физико-технический институт, Долгопрудный, Россия

^в Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына МГУ
им. М. В. Ломоносова, Москва

^д Киевский национальный университет им. Т. Шевченко, Киев

^е Институт структурной биологии, Гренобль, Франция

^ф Институт структурной биологии, Юлих, Германия

Представлены результаты экспериментов и моделирования спектров нейтронов от криогенных и тепловых замедлителей реактора ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна). Измерения проведены на малоугловом спектрометре ЮМО (4-й канал ИБР-2).

Измерения спектров нейтронов от двух типов метановых замедлителей реализованы в штатной конфигурации установки. Сравниваются спектры при различных условиях работы замедлителей. Получены численные значения отношений спектров с холодным и гребенчатым замедлителями. С помощью метода Монте-Карло рассчитаны спектры для криогенного метанового и теплового гребенчатого замедлителей. Проведен расчет отношений потоков для метанового и гребенчатого замедлителей. Рассчитаны потери нейтронов на воздушных зазорах в процессе движения нейтронного пучка к образцу.

Сравниваются кривые рассеяния от белка апоферритина при измерениях с использованием метанового и гребенчатого замедлителей. Обсуждаются перспективы использования холодного замедлителя для малоуглового спектрометра без зеркального нейтронновода. Показано преимущество использования гребенчатого замедлителя нейтронов на спектрометре ЮМО.

Results of experimental and computer modelling investigations of neutron spectra and fluxes obtained with cold and thermal moderators at the IBR-2 reactor (JINR, Dubna) are presented. The studies are done for small-angle neutron scattering (SANS) spectrometer YuMO (beamline number 4 of the IBR-2).

¹E-mail: kuklin@nf.jinr.ru, valentin.gordeliy@ibs.fr

The measurements of neutron spectra for two methane cold moderators are done for the standard configuration of the SANS instrument. The data from both moderators under different conditions of their operation are compared. The ratio of experimentally determined neutron fluxes of cold and thermal moderators at different wavelength is shown. Monte Carlo simulations are done to determine spectra for cold methane and thermal moderators. The results of the calculations of the ratio of neutron fluxes of cold and thermal moderators at different wavelength are demonstrated. In addition, the absorption of neutrons in the air gaps on the way from the moderator to the investigated sample is presented.

SANS with the protein apoferritin was done in the case of cold methane as well as a thermal moderator and the data were compared. The perspectives for the use of the cold moderator for a SANS spectrometer at the IBR-2 are discussed. The advantages of the YuMO spectrometer with the thermal moderator with respect to the tested cold moderator are shown.

PACS: 28.41.Pa; 28.20.Gd; 28.20.Cz

ВВЕДЕНИЕ

Для экспериментов на малых углах принципиально важно продвинуться в область малых векторов рассеяния нейтронов 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 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 дифференциальная 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 [2–7].

Для спектрометров, работающих с одной длиной волны, выбор между водяным и холодным замедлителями достаточно очевиден. Как правило, работают с длинами волн 4 Å и выше, следовательно, при смещении максимума в спектре в эту область существенно (до 10 раз и более) во столько же раз увеличивается и поток. Для спектрометров, в которых используется времяпролетная методика, применение холодного замедлителя не столь очевидно. Действительно, если в спектрометре (как в случае установки ЮМО) не используются нейтронотводы или бендер, то плотность потока в рабочем диапазоне длин волн от криогенного замедлителя может оказаться меньше, чем для замедлителя, работающего при комнатной температуре. В том случае, когда в спектрометре имеется нейтронотвод, выигрыш по потоку от криогенного замедлителя зависит от функции пропускания нейтронотвода и его общей длины.

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 два раза.

Выбор замедлителя происходит по нескольким параметрам. Реально в мире используются вещества — водород (или дейтерий) (20 замедлителей), 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]. Из таблицы следует, что большинство ведущих нейтронных исследовательских центров имеют водородные (дейтериевые) криогенные замедлители. Недостаток водорода как взрывоопасного именно для реактора ИБР-2 (стационарные реакторы менее (в 40 раз) чувствительны к изменениям геометрии) отмечают авторы статьи [10]. На реакторе ИБР-2, на 4-м, 5-м и 6-м каналах длительное время использовался тепловой замедлитель с легкой водой, гребенчатый по форме. 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

Таблица 1. Холодные замедлители для некоторых нейтронных источников

Лаборатория, реактор	Тип холодного замедлителя	Температура, К	Примечание
Гаршинг, FRM II [2]	Дейтериевый +5 % водорода	25	Дейтерий с добавкой водорода в диапазоне давлений 150 кПа
GKSS, FRG-1 [3]	Водородный	25	Давление > 13 бар
ISIS, ускоритель [4]	Водородный и жидкий метановый	26	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
SNS, Ок-Риджская национальная лаборатория [7]	Водный предзамедлитель, водородный предзамедлитель	25	Композитный

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 этой работы 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 три раза, авторы утверждают, что при наличии рабочей криогенной системы поток холодных нейтронов оказался чуть выше, чем у теплого режима (300 К). Объяснение этому авторы видели в увеличении количества конструктивного материала и удалении от активной зоны.

В работе [12] была детально рассмотрена оптимизация для гребенчатого теплового замедлителя на импульсных нейтронных источниках. Авторы рассматривали как интенсивность, так и ширину импульса для гребенчатого замедлителя и определили оптимальные соотношения ширины и глубины гребня. Ширина импульса существенно зависит от величины гребня. Так, при максимальной длине гребня 8 см происходит удвоение полуширины импульса. Кроме того, они делают вывод, что подобные гребенчатые замедлители могут эффективно использоваться в экспериментах, где разрешение не так чувствительно к ширине импульса.

Конструктивные особенности, режимы и специфика работы, а также некоторые результаты испытаний метановых замедлителей на реакторе ИБР-2 представлены в работах [9, 10, 13, 14]. Результаты исследований на 5-м, 6-м каналах ИБР-2 изложены также в [15].

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 выгоды использования 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 три спектрометра: 4-й, 5-й и 6-й каналы ИБР-2.

В отличие от дифрактометров 5-го и 6-го каналов в малоугловом спектрометре ЮМО (рис. 1) не используется зеркальный нейтронный провод и имеется прямая видимость поверхности замедлителя с позиции образца, поэтому полученные результаты не нуждаются в корректировке на функцию пропускания нейтронного провода. Угол между плоскостью гребенчатого замедлителя и осью пучка составляет 72° . 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 — на расстоянии 17,7 м.

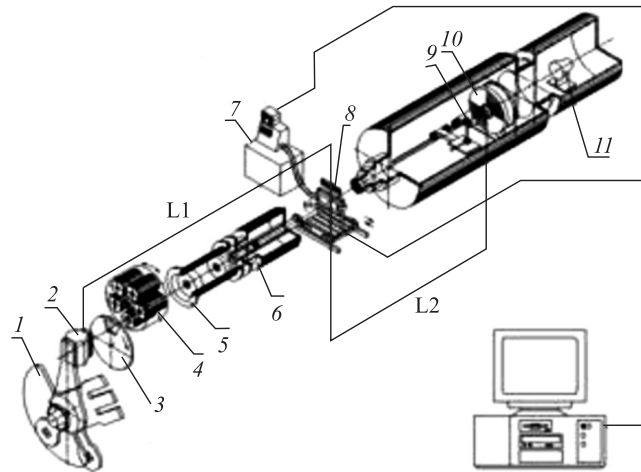


Рис. 1. Вид спектрометра ЮМО на 4-м канале ИБР-2 в процессе измерений: 1 — отражатель; 2 — зона с холодным замедлителем; 3 — прерыватель; 4 — первый коллиматор; 5 — вакуумная труба; 6 — второй коллиматор; 7 — жидкостный термостат; 8 — столик с образцами; 9 — ванадиевый стандарт; 10 — кольцевой детектор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

ИЗМЕРЕНИЯ С МЕТАНОВЫМ ЗАМЕДЛИТЕЛЕМ I

Измерения на 4-м канале ИБР-2 с первым криогенным метановым замедлителем [9, 13] 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 [16]). При измерении рассеяния без образца определяли фоновую составляющую на детекторе рассеяния. Детектор прямого пучка при этих условиях измерял эффективный спектр нейтронов. В качестве образцов служили ванадий (как в позиции образца, так и перед детектором рассеяния уже в качестве стандарта) и пластик с сажой, имеющий чрезвычайно высокое сечение рассеяния, особенно при больших длинах волн при измерениях эффективного спектра нейтронов, регистрируемого кольцевым детектором рассеяния.

Проверка показала, что отношения спектров, получаемые от разных детекторов и указанных выше образцов, дают самосогласованный результат. Поэтому ниже, как правило, не уточняем, какой образец использовался при получении спектров.

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

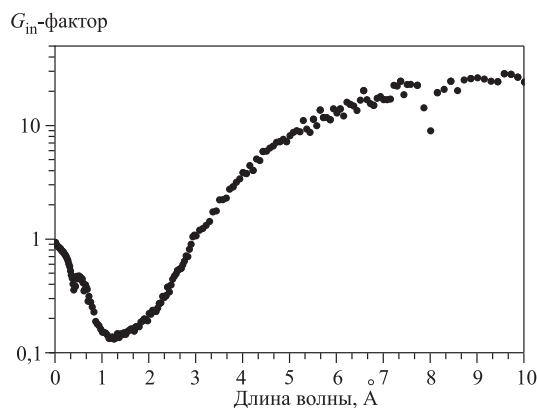


Рис. 2. Фактор выигрыша КЗ, полученный с помощью рассеяния от образца и зарегистрированный кольцевым детектором нейтронов с учетом фона

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 (см. рис. 1). Угол между нормалью к поверхности замедлителя и осью пучка составляет, как и для измерений 1994 г., 18° . В измерениях были задействованы три типа детектора — 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]. Представленные 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» спектра бериллиевыми частями замедлителя.

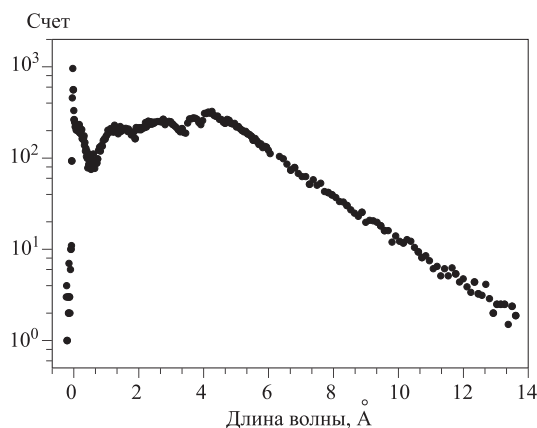


Рис. 3. Эффективный спектр нейтронов от криогенного замедлителя при $T = 32\text{ K}$

На рис. 4 представлен 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 сделаны эксперименты и получены спектры от гребенчатого замедлителя (ГЗ). 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

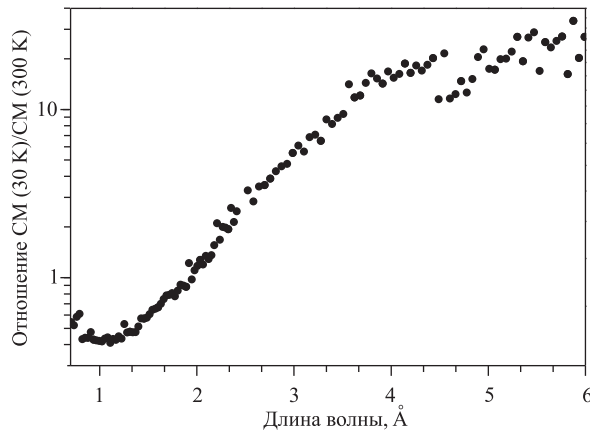


Рис. 4. Отношение спектров криогенного замедлителя с метаном при $T = 30$ К и без метана при 300 К (предзамедлитель)

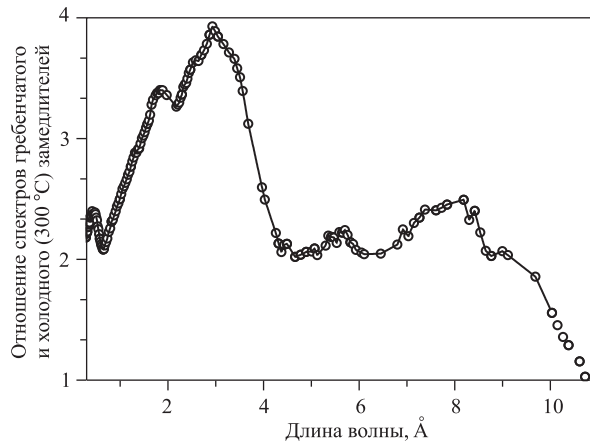


Рис. 5. Отношение спектра водяного гребенчатого замедлителя к спектру холодного замедлителя без метана (фактор выигрыша гребенки)

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 эффективней плоского КЗ без метана в два раза.

На рис. 6, 7 приведены факторы выигрыша по спектру длин волн до 10 Å при работе реактора с холодным замедлителем при температурах $T = 29–30$ К 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

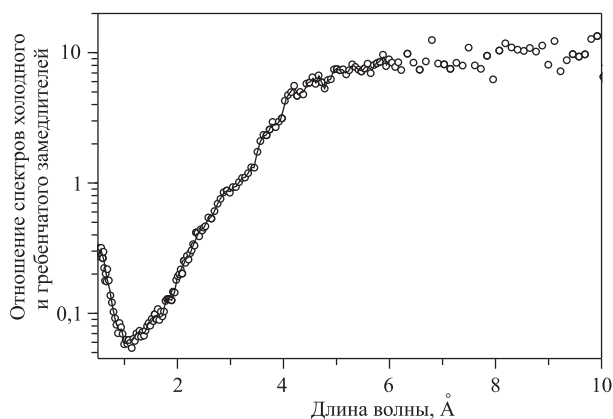


Рис. 6. Фактор выигрыша от криогенного замедлителя при $T = 29–30$ К по отношению к гребенчатому замедлителю

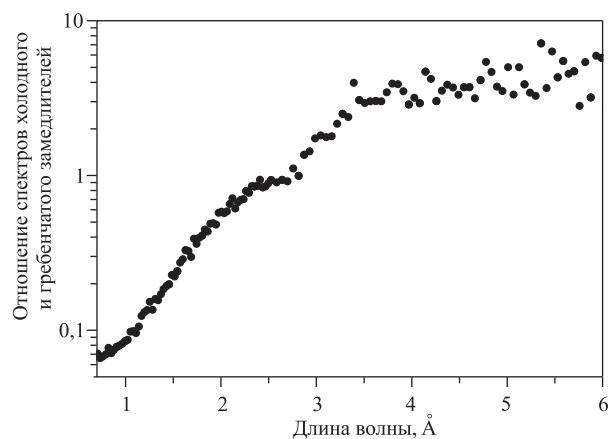


Рис. 7. Фактор выигрыша криогенного замедлителя при $T = 66$ К по отношению к гребенчатому замедлителю

холодного замедлителя повысить до $T = 66$ К, то отношение значений дифференциальных плотностей потоков при длине волны около 1 \AA становится 0,1, а для холодных нейтронов (свыше 4 \AA) это отношение больше чем 5.

В январе 2000 г. были проведены измерения с камерой деления по определению абсолютных значений потоков на 4-м канале [1]. Исходя из данных, представленных на рис. 7, и данных указанной выше работы можно получить дифференциальную плотность потока 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 \AA . При длине волны больше 6 \AA 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 \AA , 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 плотности потоков для ГЗ и КЗ в позиции образца 4-го канала ИБР-2, полученные из анализа спектров рис. 8.

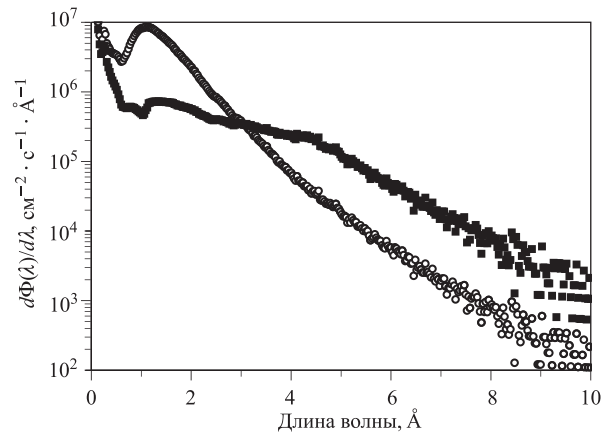


Рис. 8. Дифференциальные плотности потоков криогенного (■) и гребенчатого (○) замедлителей в абсолютных единицах

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

Диапазон длин волн, \AA	Для криогенного замедлителя, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Для гребенчатого замедлителя, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
0,5–10	2,0	9,3
2–10	1,0	1,2
3–10	0,6	0,2

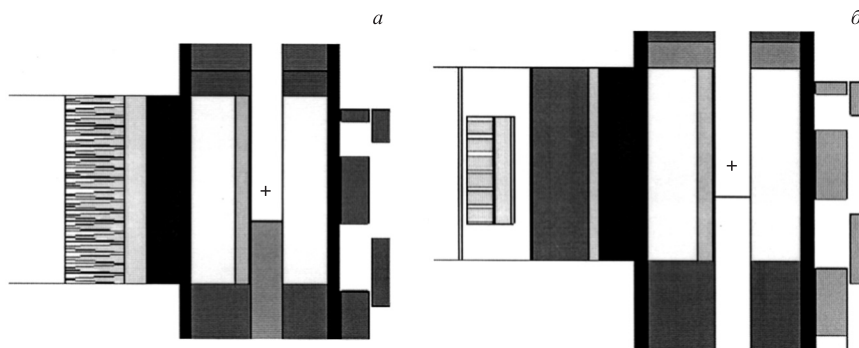


Рис. 9. Схема гребенчатого (а) и метанового (б) замедлителей, использованных для расчетов методом Монте-Карло

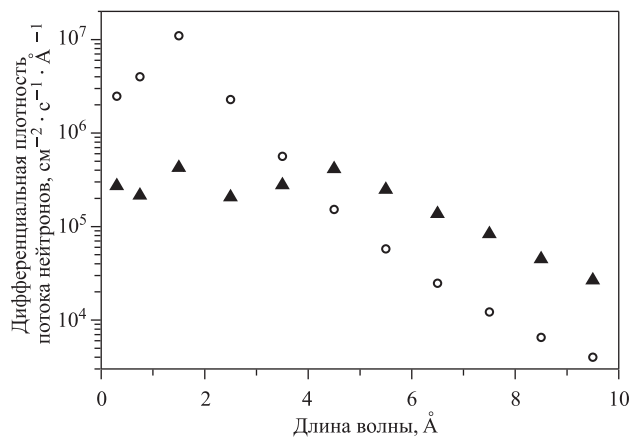


Рис. 10. Расчетные дифференциальные плотности потока нейтронов, полученные с использованием метода Монте-Карло для гребенчатого и криогенного замедлителя ($T = 30$ К). Кружками обозначены дифференциальные плотности потока для гребенчатого замедлителя, а треугольниками — для криогенного замедлителя в соответствии со схемами рис. 9, а и б. Результаты приведены для мощности реактора 1,5 МВт, размер первого коллиматора 60 мм, второго 14 мм

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.

Расчеты проводились при расположении основных частей спектрометра согласно схеме, приведенной в работе [1]. На рис. 10 приведены зависимости дифференциальных плотностей потока нейтронов, полученных с использованием метода Монте-Карло для гребенчатого и криогенного замедлителей, схемы которых представлены на рис. 9, а и б соответственно.

В диапазоне длин волн нейтронов от 0,5 до 10 Å криогенный замедлитель дает меньший поток нейтронов, 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 вывод 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 четыре 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 интенсивности рассеяния от образца к фоновой интенсивности рассеяния нейтронов. И наоборот, на пучках, где есть нейтронотводы, выигрыш по потоку составляет около 2 раз [15]. Это связано с особенностью функции 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 ($R_h = 100\%$).

Методом Монте-Карло мы оценили влияние пропускания влажного и сухого воздуха на плотности потоков и приводим в табл. 3 расчетные значения плотностей потоков в нескольких диапазонах длин волн нейтронов в случае устранения 5,5-м воздушного промежутка. Качественно картина по соотношению плотностей потоков от КЗ и ГЗ не

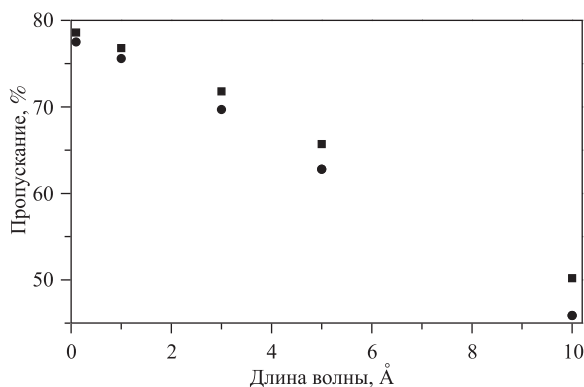


Рис. 11. Коэффициент пропускания 550 см воздуха как функция длины волны при прохождении нейтронов через влажный воздух ($R_h = 100\%$, $t = 20^\circ\text{C}$, $P = 1$ атм) (●), сухой воздух ($R_h = 0\%$, $t = 20^\circ\text{C}$, $P = 1$ атм) (■)

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	Для криогенного замедлителя, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Для гребенчатого замедлителя, $10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$
0,5–10	2,84	12,6
2–10	1,54	1,92
3–10	0,96	0,37

Таблица 4. Отношение расчетных значений плотностей потоков в случае устранения влажного воздуха (табл. 3) к экспериментальным значениям плотностей 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

Таблица 5. Плотности потоков нейтронов в позиции образца на 4-м канале ИБР-2 при устранении воздушного зазора в 3 и 5 м ($10^6 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$)

Диапазон длин волн, Å	КЗ	КЗ	КЗ	ГЗ	ГЗ	ГЗ
	(экспериментальные данные табл. 2)	(если устранить 3 м воздуха)	(если устранить 5 м воздуха)	(экспериментальные данные табл. 2)	(если устранить 3 м воздуха)	(если устранить 5 м воздуха)
0,5–10	2	2,5	2,8	9,3	11	12,6
2–10	1,0	1,3	1,5	1,2	1,5	1,7
3–10	0,6	0,8	0,92	0,2	0,27	0,34

изменилась: ГЗ дает увеличение плотности потока в 1,35 раза, а КЗ — в 1,42 раза (табл. 4). В диапазоне длин волн нейтронов от 0,5 до 10 Å криогенный замедлитель дает плотность потока меньшую, чем гребенчатый, примерно в 4,44 раза.

Для диапазона длин волн нейтронов от 2 до 10 Å эти плотности потоков становятся сравнимыми, а в диапазоне длин волн нейтронов от 3 до 10 Å плотность потока от КЗ больше плотности 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 плотности потоков. Верхние значения факторов выигрыша в случае устранения всего воздушного зазора со 100 %-й влажностью воздуха представлены в табл. 4.

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

Величины факторов выигрыша по плотности потока (42 % по общей плотности потока для гребенчатого замедлителя в диапазоне от 2 до 10 Å и 50 % по общей плотности потока для криогенного замедлителя в этом же диапазоне длин волн нейтронов) в случае устранения 5 м воздуха требуют серьезного отношения к этой проблеме. Конечно, введение дополнительных окон (алюминиевых, ванадиевых или кварцевых) уменьшит эти факторы выигрыша. Уменьшение фактора выигрыша даст и введение реального значения влажности.

ОПТИМИЗАЦИЯ ХОЛОДНОГО ЗАМЕДЛИТЕЛЯ

Приведенные выше спектры и расчеты потоков демонстрируют существенный проигрыш холодного замедлителя.

Остается открытым вопрос об оптимизации самого холодного замедлителя. Проигрыш холодного замедлителя по потоку по сравнению даже с предзамедлителем заставляет обратиться к мировому опыту по решению аналогичных задач. Так, в табл. 6 приведены плотности потоков нейтронов реактора FRM (Германия, Мюнхен) для теплового и холодного замедлителей [17, 18]. Холодный замедлитель для этого реактора был реализован на основе жидкого дейтерия при температуре 25 К. Общий проигрыш по потоку для холодного замедлителя по отношению к теплому замедлителю составляет 40 %. Выигрыш для диапазона длин волн от 2 до 9,5 Å 2, а от 3 до 9,5 Å выигрыш холодного замедлителя уже больше 5.

Таблица 6. Плотности потоков нейтронов для реактора FRM для теплового и холодного замедлителей [17,18]

Диапазон длин волн, Å	Теплая мода, $10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Холодная мода, $10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$	Отношение значения плотности потока нейтронов в холодной моде к значению плотности 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

Остается открытым вопрос о возможности создания холодного замедлителя с мезитиленом на импульсном реакторе ИБР-2М с параметрами не хуже, чем у изготовленного дейтериевого замедлителя для реактора FRM-2. Надеемся, что после модернизации реактора обновленный ИБР-2М будет иметь замедлитель с мезитиленом, а оптимизация параметров и геометрических размеров позволит получить существенно меньшие проигрыши в плотности потоков, чем для описанных здесь метановых замедлителей [19].

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ АПОФЕРРИТИНА

Представленные выше спектры, потоки и плотности потоков демонстрируют проигрыш этих параметров для холодных замедлителей для рабочего диапазона длин волн нейтронов спектрометра ЮМО. Однако целью использования криогенного замедлителя является не только увеличение потоков, но и расширение диапазона переданных импульсов и, следовательно, диапазона размеров измеряемых объектов. Сдвиг спектра в сторону больших длин волн позволяет также улучшить разрешение по вектору рассеяния 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 образца — белка апоферритина, имеющего известную структуру [20]. 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 и конфигурации разрешение спектрометра с КЗ лучше. Однако выбранный нами образец имеет высокое сечение рассеяния (4 см^{-1}), да и 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 плотности потока (как и 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 по фоновым условиям существует на синхротронных малоугловых установках, где чаще используют не газовый детектор, а ССД-камеру, обладающую высоким темновым током. Высокий

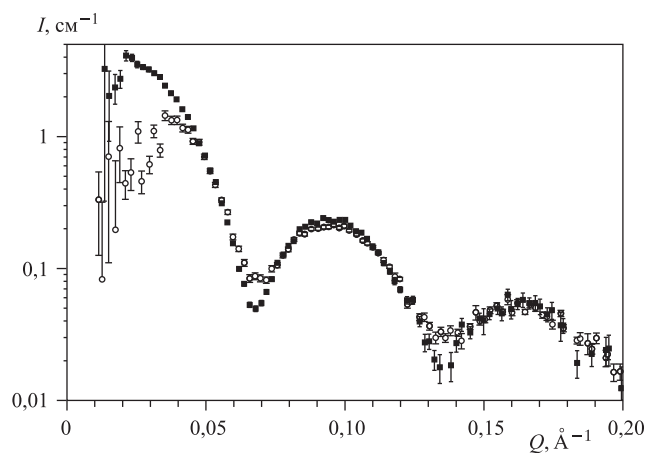


Рис. 12. Расширение диапазона переданных импульсов за счет холодного замедлителя для второй позиции детектора (3,73 м). Образец — апоферритин 25 мг/мл, NaCl 0,075M в D2O, буфер D20+NaCl(0,075M). \circ — экспериментальные точки при измерениях с КЗ без метана (предзамедлитель); \blacksquare — экспериментальные точки при измерениях с КЗ

уровень фона компенсируется относительной гладкостью кривой рассеяния для фоновой составляющей и, главное, исключительно высоким потоком.

Как отмечено выше, выбранный образец имеет высокое сечение рассеяния, а статистический разброс экспериментальных точек при сечении рассеяния ниже $0,1 \text{ см}^{-1}$ в случае проведения измерения с холодным замедлителем свидетельствует о существенном сокращении доступного для измерений диапазона по сечению рассеяния и, следовательно, диапазона по вектору рассеяния q . Большинство решаемых задач на спектрометре ЮМО связано как раз с возможностью проведения быстрых измерений при малых (менее 1 см^{-1} до нескольких единиц 10^{-3} см^{-1}) значениях сечения рассеяния в широком диапазоне векторов рассеяния.

Из-за ограничений диапазона по сечению рассеяния даже двухдетекторная схема проведения измерений не улучшает данную ситуацию [20, 21].

ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Задача создания холодного замедлителя для малоуглового спектрометра МУРН (ЮМО) была поставлена практически со дня его основания. Это было связано с наличием мирового опыта работы малоугловых установок на стационарных реакторах. Однако специфические черты реактора ИБР-2 и особенно малоуглового спектрометра уже тогда заставляли задуматься о принципиальной возможности получения выигрыша по потоку от криогенного замедлителя во всем используемом диапазоне длин волн нейтронов [8, 22].

За прошедшее время на ИБР-2 было испытано два метановых замедлителя [9, 10, 14, 15]. Как уже было отмечено, из-за отсутствия нейтронновода 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 поток нейтронов в позиции образца для нейтронов от $0,7$ до 7 \AA уменьшается более чем в 4,6 раза по сравнению с гребенчатым замедлителем. Отметим, что на стационарном реакторе FRM-2 поток уменьшается менее чем в 1,7 раза.

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.

Большие потери в области теплового максимума (свыше 10 раз для максимума и больше 4 раз для рабочего диапазона длин волн) при одинаковой мощности реактора (следовательно, фоновая компонента остается без изменений) не могут быть скомпенсированы выигрышем при больших длинах волн для спектрометра, имеющего прямую видимость замедлителя и использующего времяпролетную методику. Этот вывод был подтвержден и попытками получения экспериментальных данных не только от образцов, описанных выше, но и 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, как при проведении измерений, — $1,5 \text{ МВт}$. Такое ухуд-

шение 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 и возможно при использовании нейтронновода 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 может и возможно будет достигнуть малых q . Это связано прежде всего с использованием в качестве рассеивателя ванадиевого стандарта как в однодетекторном [23], так и в двухдетекторном варианте работы спектрометра [20, 21]. Однако проведенные нами исследования не выявили подходящей для этой цели замены используемому сейчас ванадиевому стандарту. Но 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, что потребует не уменьшения, а, наоборот, увеличения потока нейтронов на образце.

Устранение большого пролетного расстояния (свыше 5,5 м) на воздухе хотя и дает существенное увеличение потока именно для холодных длин волн (см. 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 использования криогенного замедлителя. Другую установку, органически использующую открытое окно канала, можно совместить со спектрометром ЮМО без существенных модификаций, если использовать нейтронноводы. Это, конечно, приведет к потерям на отражение в коротковолновой части нейтронного пучка

в нейтроноводах. Вторая установка будет 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 вместо гребенчатого не только не дало новых научных результатов на спектрометре ЮМО, но даже и стандартные измерения стали крайне затруднены. К этому добавляются недостатки метанового замедлителя, связанные с его специфическим временным циклом работы, который приводит к замедлению темпа набора статистики и увеличению времени измерений для компенсации потери интегральной интенсивности более чем втрое. Эксперименты, выполняемые ранее за короткие времена измерений, стали вообще невозможны. Есть веские основания отказаться от использования испытанного замедлителя на существующем спектрометре ЮМО в будущем. Здесь мы обсудили один из главных аргументов: общая статистика кривой интенсивности рассеяния определяет величину ошибок, а значит, и возможность различения моделей наноструктур. Чем меньше ошибки измерения, тем чувствительнее нейтронный эксперимент к деталям наноструктуры. Высокие требования к эксперименту по малоугловому рассеянию включают в себя необходимость оценки абсолютных параметров структур. Поэтому требование высокой интегральной интенсивности есть решающее условие в успешности экспериментов на спектрометре ЮМО. Проигрыш по потоку для КЗ не компенсируется понижением фона (фон пропорционален мощности реактора), что и приводит к худшему соотношению сигнал/шум. Поэтому холодный замедлитель для спектрометра ЮМО должен быть по крайней мере комбинированным (скажем, 75 % — теплая мода типа ГЗ и 25 % — холодная мода). Необходимо также решить проблемы большого воздушного зазора малоуглового спектрометра. Сделанные нами выводы о холодном замедлителе касаются прежде всего импульсного реактора. На других импульсных источниках, возможно, есть преимущество при использовании криогенного замедлителя, но при использовании КЗ для спектрометров, использующих прямую видимость замедлителя (установки без нейтроновода), должны быть не такие большие проигрыши по плотности потоков и обеспечена стабильность работы такого замедлителя. Допускаем, что форма гребенчатого замедлителя не совсем оптимальна, но полученные результаты при испытаниях и подтвержденные более чем двадцатилетней практикой использования ГЗ доказывают его высокую эффективность. Мы оставили за рамками статьи проблему ширины импульса. Этот вопрос требует дополнительного рассмотрения.

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

Авторы благодарны Е. П. Шабалину за обсуждение отдельных результатов статьи и критические замечания, сотрудникам группы малоуглового рассеяния за помощь при испытаниях холодного замедлителя, а также Р. И. Мухамедзянову и Р. Г. Ефремову за большую помощь при работе над статьей, А. И. Куклину и В. И. Горделию за поддержку работы ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» (государственные контракты № 02.740.11.0299, № 02.740.11.5010 и № П974) и 7-ю рамочную программу, грант № 211800 (Seventh Framework Programme [FP7/2007-2013] under grant agreement № 211800). А. Д. Рогов благодарит полномочного представителя Румынии за поддержку этой работы, грант № 328 за 2009 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Куклин А. И. и др. Измерение и расчет методом Монте-Карло спектра пучка нейтронов. Параметры пучка малоугловой установки ЮМО на 4-м канале реактора ИБР-2. Препринт ОИЯИ Е13-2002-249. Дубна, 2002. 17 с.
2. http://www.igorr.com/home/liblocal/docs/Proceeding/Meeting%208/ts2_gobrecht.pdf
3. Knorr W., Krull W. The Cold Neutron Source of GKSS: The Possibility of Natural Convection of the Gaseous Hydrogen Moderator // *Atw. Intern. Zeitschrift Kernenergie*. 1998. V. 43, No. 2. P. 99–101.
4. <http://www.isis.stfc.ac.uk/about-isis/target-station-2/moderator8302.html>
5. <http://www.ncnr.nist.gov/coldgains>
6. Ageron P. Cold Neutron Sources at ILL // *Nucl. Instr. Meth. A*. 1989. V. 284. P. 197–199.
7. Iverson E. B. et al. The Spallation Neutron Source High Power Target Station Moderator Performance: Calculations and Studies // *J. Neutron Res.* 2003. V. 11(1–2). P. 83–91.
8. Гундорин Н. А., Назаров В. М. Эффективный замедлитель для импульсных источников нейтронов. Препринт ОИЯИ Р3-80-721. Дубна, 1980.
9. Belyakov A. A. et al. Solid Methane Moderator at the IBR-2: Test Operating at 2 MW // *Advanced Pulsed Neutron Sources: Physics of/ at Advanced Pulsed Neutron Sources*, Dubna, June 14–17, 1994. P. 217.
10. Шабалин Е. Холодный замедлитель нейтронов // *ЭЧАЯ*. 2005. Т. 36, № 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. Kiyonagi Y. Optimization of Grooved Thermal Moderator for Pulsed Neutron Source, and Its Characteristics // *J. Nucl. Sci. Technol.* 1984. V. 21. P. 735–743.
13. Belyakov A. A. et al. Solid Methane Cold Moderator at the IBR-2 Reactor // *J. Neutron Res.* 1996. V. 3, No. 3. P. 209–221.
14. Peryolyshev Yu. N., Tulaev A. B. Experimental Study of Neutronic Performance of the IBR-2 Reactor Solid Methane Moderator // *Advanced Pulsed Neutron Sources: Physics of/ at Advanced Pulsed Neutron Sources*, Dubna, June 14–16, 1994. P. 252.
15. Балагуров А. М. и др. Дифракционные исследования на реакторе ИБР-2 с использованием холодного источника нейтронов. Препринт ОИЯИ Р3-2000-220. Дубна, 2000. 18 с.
16. Ананьев Б. Н. и др. Кольцевой многокритичный детектор медленных нейтронов с гелием-3. Сообщ. ОИЯИ 3-11502. Дубна, 1978.
17. Gaubatz W., Gobrecht K. The FRM-II Cold Neutron Source // *Physica. B*. 2000. V. 276–278. P. 104–105.
18. <http://www.frm2.tum.de/technik/advanced-neutron-instrumentation/index.html>
19. Куликов С. А. и др. Измерение спектров холодных нейтронов на макете криогенного замедлителя реактора ИБР-2М // *Письма в ЭЧАЯ*. 2010. Т. 7, № 1(157). С. 95–100.
20. Kuklin A. I., Islamov A. Kh., Gordeliy V. I. Two-Detector System for Small-Angle Neutron Scattering Instrument // *Neutron News*. 2005. V. 16, No. 3. P. 16–18.
21. Куклин А. И. и др. Оптимизация двухдетекторной системы малоуглового нейтронного спектрометра ЮМО для исследования нанообъектов // *Поверхность*. 2006. № 6. С. 74–83.
22. Останевич Ю. М. Частное сообщение.
23. Ostanovich Yu. M. Time-of-Flight Small-Angle Scattering Spectrometers on Pulsed Neutron Sources // *Makromol. Chem. Macromol. Symp.* 1998. V. 15. P. 91–103.