

PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

REFROIDISSEMENT DES NEUTRONS ET SOURCES DE NEUTRONS FROIDS

par

B. JACROT

Rapport CEA n° **2169**

1962

CENTRE D'ETUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

CEA 2169 - JACROT B.

**REFROIDISSEMENT DES NEUTRONS ET SOURCES DE NEUTRONS FROIDS
(1962)**

Sommaire. — Des sources intenses de neutrons froids sont utiles pour l'étude des solides par diffusion inélastique des neutrons. On présente une revue d'ensemble :

- a) des considérations théoriques faites par divers auteurs sur les processus de thermalisation à très basse température ;
 - b) des expériences faites dans de nombreux laboratoires pour comparer les divers modérateurs possibles ;
 - c) des sources de neutrons froids effectivement réalisées dans des piles à ce jour, et des résultats obtenus avec ces sources.
-

CEA 2169 - JACROT B.

NEUTRON COOLING AND COLD-NEUTRON SOURCES (1962)

Summary. — Intense cold-neutron sources are useful in studying solids by the inelastic scattering of neutrons. The paper presents a general survey covering the following aspects :

- a) theoretical considerations put forward by various authors regarding thermalization processes at very low temperatures ;
- b) the experiments that have been carried out in numerous laboratories with a view to comparing the different moderators that can be used ;
- c) the cold neutron sources that have actually been produced in reactors up to the present time, and the results obtained with them.

REFROIDISSEMENT DES NEUTRONS ET SOURCES DE NEUTRONS FROIDS

B. JACROT

SERVICE DE PHYSIQUE DU SOLIDE ET DE RÉSONANCE MAGNÉTIQUE
CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES DE SACLAY

FRANCE

Abstract — Résumé — Аннотация — Resumen

Neutron cooling and cold-neutron sources. Intense cold-neutron sources are useful in studying solids by the inelastic scattering of neutrons. The paper presents a general survey covering the following aspects: (a) theoretical considerations put forward by various authors regarding thermalization processes at very low temperatures; (b) the experiments that have been carried out in numerous laboratories with a view to comparing the different moderators that can be used; (c) the cold neutron sources that have actually been produced in reactors up to the present time, and the results obtained with them.

Refroidissement des neutrons et sources de neutrons froids. Des sources intenses de neutrons froids sont utiles pour l'étude des solides par diffusion inélastique des neutrons. On présente une revue d'ensemble: a) des considérations théoriques faites par divers auteurs sur les processus de thermalisation à très basse température; b) des expériences faites dans de nombreux laboratoires pour comparer les divers modérateurs possibles; c) des sources de neutrons froids effectivement réalisées dans des piles à ce jour, et des résultats obtenus avec ces sources.

Охлаждение нейтронов и источники холодных нейтронов. Источники большой интенсивности холодных нейтронов используются для изучения твердых тел путем неупругого рассеяния нейтронов. В данной работе дается общий обзор: a) теоретических соображений, сделанных различными авторами над процессами термализации при очень низкой температуре; b) опытов, проведенных во многих лабораториях для сравнения различных возможных замедлителей; c) источников холодных нейтронов, успешно полученных в реакторах к настоящему времени, и результатов, полученных с помощью этих источников.

Enfriamiento de neutrones y fuentes de neutrones fríos. Las fuentes intensas de neutrones fríos resultan útiles para el estudio de los sólidos por dispersión elástica de neutrones. El autor presenta una reseña general de la cuestión: a) consideraciones teóricas formuladas por diversos autores acerca de los procesos de termalización a muy bajas temperaturas; b) experimentos efectuados en numerosos laboratorios con miras a comparar los diversos moderadores posibles; c) fuentes de neutrones fríos efectivamente realizadas en reactores hasta la fecha y resultados obtenidos mediante dichas fuentes.

Introduction

L'étude des solides par diffusion inélastique des neutrons est un sujet dont l'importance est devenue grande. Pour ce genre de recherches, les neutrons de grande longueur d'onde ($\lambda > 4 \text{ \AA}$) sont d'un intérêt tout spécial, et ceci pour plusieurs raisons. D'abord, si la longueur d'onde des neutrons est assez grande, la diffusion élastique de Bragg n'existe plus et la diffusion inélastique apparaît ainsi plus clairement. De plus, si l'énergie des neutrons est très faible par rapport aux énergies des transitions qu'ils peuvent induire dans un solide, ces énergies

sont plus faciles à mesurer avec précision. Enfin, pour certaines expériences où l'on s'intéresse aux effets liés aux petits vecteurs de diffusion, des neutrons de grande longueur d'onde sont indispensables.

Ces neutrons de très basse énergie, ou neutrons froids, sont très peu nombreux dans un faisceau de neutrons sortant d'un canal de pile dont la répartition en énergie est celle d'une distribution de Maxwell à une température de 300 à 400° K. Ces neutrons froids seraient beaucoup plus nombreux si le modérateur de la pile était à une température de quelques dizaines de degrés absolus. Il n'existe pas à l'heure actuelle de pile ayant un modérateur à très basse température, et la construction d'une pile utilisant l'hydrogène liquide comme ralentisseur semble pratiquement impossible dans l'état actuel de la technique. Mais, comme l'a suggéré le premier EGELSTAFF [1], il est possible d'introduire localement dans la pile un élément ralentisseur à très basse température et de produire un faisceau de neutrons froids. De tels faisceaux ont déjà été produits à Harwell [2] et à Saclay [3].

Une des difficultés de ces réalisations est la faible place dont on dispose dans le réacteur pour introduire l'élément froid. Il est donc important d'utiliser l'élément le plus efficace possible. Pour déterminer les conditions optimales, on peut commencer par chercher à comprendre les processus de thermalisation à basse température. D'autre part, diverses expériences ont été effectuées dans de nombreux laboratoires pour comparer le pouvoir ralentisseur de diverses substances froides.

Principes du refroidissement des neutrons

Le problème posé est le suivant: comment des neutrons dont les énergies sont initialement en équilibre thermique à une température T_0 de l'ordre de 300° K peuvent-ils atteindre un autre équilibre à une température $T_1 \ll T_0$? Ce problème est voisin de celui de la thermalisation des neutrons dans un modérateur de pile. Une revue d'ensemble de ce problème a été faite par NELKIN [4]. D'une façon générale, on peut distinguer trois catégories de modérateurs.

a) MODÉRATEURS GAZEUX

Deux processus interviennent. D'abord, un processus de mise en équilibre thermique de deux fluides gazeux, initialement à des températures différentes. Ce sont les chocs élastiques entre les neutrons et les molécules de gaz qui assurent cet équilibre. Le processus sera d'autant plus rapide que les sections efficaces de diffusion des atomes libres constituant le gaz seront grandes et que leurs masses seront faibles. Mais un autre processus intervient: les diffusions inélastiques avec désexcitation des niveaux internes de la molécule (essentiellement niveaux de rotation pour les énergies considérées ici).

b) MODÉRATEURS SOLIDES

La diffusion élastique des neutrons (diffusion de Bragg et diffusion incohérente) se fait sans changement de l'énergie du neutron; le diffuseur est alors l'ensemble du cristal, et le recul est pratiquement nul. Seule la diffusion inélastique avec échange de phonons (acoustiques et optiques), ou éventuellement de magnons, permet au spectre des neutrons de se mettre en équilibre thermique avec le modé-

rateur. Dans le cas de la thermalisation des neutrons dans une pile, quand le neutron a une énergie grande par rapport à la température de Debye du modérateur, les fréquences associées au neutron sont grandes par rapport aux fréquences de vibration, et c'est une assez bonne approximation que de considérer le diffuseur comme un gaz. Dans le problème du ralentissement à partir de 300°K , ceci n'est plus vrai, et il faut traiter le problème des échanges de phonon.

c) CAS DU MODÉRATEUR LIQUIDE

C'est le cas le plus complexe, car trois effets jouent un rôle :

Les mouvements de diffusion des molécules à l'intérieur du liquide. Cet effet dépend de la liberté laissée à ces mouvements par les liaisons intermoléculaires.

Les énergies internes de la molécule. Pour le cas des basses températures, il s'agit des niveaux de rotation. Dans un liquide, ces rotations sont plus ou moins libres, ce qui rend difficile le calcul de cet effet. Dans l'eau, c'est le niveau de rotation de $6 \cdot 10^{-2} \text{ eV}$ qui jouera un rôle. Dans l'hydrogène liquide, le niveau est celui de $0,015 \text{ eV}$ de la transition para-orthohydrogène. L'existence éventuelle [5] de niveaux de très basse énergie dans l'eau est d'une importance certaine pour la thermalisation par cette substance [6].

Les mouvements d'ensemble du liquide, dans lequel existent des phonons très amortis. Dans un liquide, la molécule effectue un grand nombre de vibrations en une position donnée avant de se déplacer; il en résulte qu'au début du processus de refroidissement, quand le neutron a une fréquence associée encore grande, ce sont ces phonons amortis qui joueront un rôle prédominant, et il n'y aura pas grande différence entre un liquide et un solide pour le refroidissement.

Pour conclure ces considérations à priori, on peut dire que :

1° Un bon modérateur en petit volume doit avoir des atomes ayant une grande section efficace de diffusion de l'atome libre, car toutes les sections efficaces de diffusion sont liées à celle-ci. Ceci rend les noyaux d'hydrogène utiles dans un modérateur.

2° Il n'y a pas grande dépendance du pouvoir modérateur vis-à-vis de l'état physique du diffuseur. De fait, seules les expériences permettent de comparer sérieusement deux substances. Un facteur important est la section de capture du milieu. La capture, étant proportionnelle à la longueur d'onde, appauvrit le spectre en neutrons froids. A ce point de vue, l'hydrogène est un noyau de médiocre qualité.

Comparaisons expérimentales des divers refroidisseurs de neutrons

Les premières expériences ont été faites à Harwell [2] en utilisant une source radium-béryllium dans la paraffine. Le pouvoir refroidissant est mesuré en déterminant la transmission des neutrons sortant du modérateur à travers des feuilles d'or. On peut ainsi définir une température des neutrons. Comme les auteurs le font remarquer, cette température n'a pas grand sens en soi; il faudrait, pour qu'elle en eût un, que le spectre fût vraiment maxwellien, ce qui n'est certainement pas le cas. Mais cette température permet, faute de mieux, de comparer diverses substances.

De telles mesures ont été reprises en Belgique par VAN DINGENEN et HAUTECLER [7]. Elles sont plus systématiques que celles de Harwell, et com-

plétées par une mesure de l'intensité des neutrons transmis à travers du béryllium ($\lambda > 4 \text{ \AA}$). Cette dernière mesure donne l'intensité des neutrons froids fournis par le modérateur. On peut ainsi déterminer un gain moyen en neutrons froids.

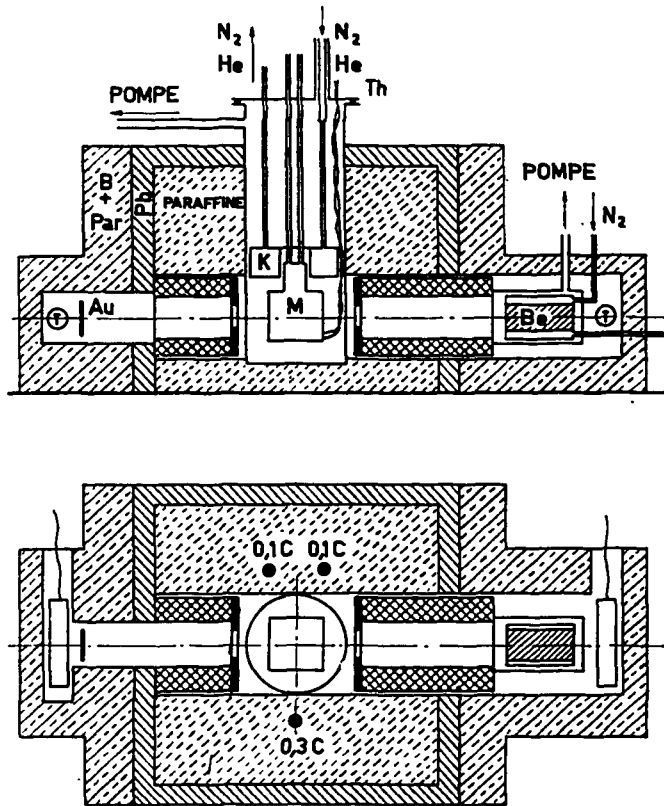


Fig. 1

Schéma de l'appareillage utilisé par Van Dingenen pour comparer divers modérateurs.

La figure 1 montre le schéma du dispositif expérimental utilisé par ces auteurs. Le tableau I, extrait de leur communication, donne ces gains expérimentaux pour différents diamètres et températures du modérateur; ils sont relatifs à une température des neutrons arrivant dans le modérateur estimée à 500°K .

Par ailleurs, ces mêmes auteurs ont calculé, dans le cas du graphite et du méthane, un gain théorique, en considérant simplement la diffusion élastique par des atomes libres. L'accord est meilleur que ce que l'on pourrait attendre à partir d'un modèle aussi simple.

Des mesures ont été également effectuées en Pologne par O'CONNOR [8] et ses collaborateurs, qui ont utilisé comme source de neutrons la colonne thermique du réacteur de Varsovie.

McREYNOLDS [9], au laboratoire de la General Atomic à San Diego, a utilisé comme source un accélérateur linéaire pulsé, et a étudié les spectres sortant de l'eau, de l'hydrogène liquide et d'autres matériaux hydrogénés. Le travail est fait pour diverses températures jusqu'à 4°K et pour des diamètres de modérateurs allant jusqu'à 15 cm. Les conclusions connues au moment où est rédigé cet article de revue sont les suivantes:

a) En aucun cas on n'obtient de thermalisation jusqu'à la température de l'hydrogène liquide.

TABLEAU I
GAINS EN INTENSITÉ DES NEUTRONS FROIDS [7]

Modérateurs	Diamètre: 5 cm		Diamètre: 20 cm	
	100° K	20° K	100° K	20° K
Eau	5,8	17	2,35	4
Eau lourde		5		20
Méthane	5,5	15	4	7,5
Paraffine	4,5	10	1,86	3
Butane	4,5	9,5	2,5	4,2
Hydrogène liquide	4,5	10	4,5	10
Deutérium liquide	—	4	—	16
Béryllium	—	2,2	—	11
Graphite	1,04	1,4	4,6	10

b) A partir d'une certaine température, il ne sert plus à grand-chose de refroidir davantage le modérateur.

c) L'eau et l'hydrogène ont sensiblement la même efficacité. Ce point confirme l'idée a priori qu'un liquide et un solide ont des pouvoirs thermalisants comparables.

Les deux premiers points contredisent un résultat obtenu par BORST [10] à l'aide d'une expérience à détecteur d'indium, sans doute trop qualitative.

Les mesures de McReynolds, quand elles seront complètes, doivent être de la plus grande utilité pour comprendre les processus de thermalisation à basse température et pour choisir le modérateur à mettre dans une pile, compte tenu de la place dont on dispose et de la longueur d'onde des neutrons à laquelle on s'intéresse.

De l'ensemble des essais hors pile on peut déjà tirer certaines conclusions:

1° Il apparaît très difficile, voire impossible, d'obtenir une vraie thermalisation à la température de l'hydrogène liquide.

2° La capture limite les dimensions à utiliser dans le cas d'un modérateur hydrogéné. Des dimensions linéaires de 5 à 10 cm semblent optima.

Expériences faites en pile

Deux sources de neutrons froids ont fonctionné jusqu'à présent. La première a été réalisée à Harwell [2], dans le réacteur à bas flux BEPO. Un dispositif est en cours d'installation, dans ce laboratoire, dans la pile à haut flux DIDO [11]. La deuxième fonctionne à Saclay dans la pile à haut flux EL3 [3].

INSTALLATION DANS BEPO

Elle a fonctionné dès 1957. L'hydrogène liquide a été choisi comme modérateur à la suite des essais faits hors pile, comme étant le plus simple à mettre en œuvre des matériaux ayant donné de bons résultats (hydrogène, hydrogène deutérié, méthane). Le modérateur est un volume de 7,5 cm de diamètre et 6,25 cm de long (volume 275 cm³), placé dans le cœur de BEPO (pile à graphite). L'hydrogène du modérateur est sous une pression de 5 atm et refroidi vers 20° K par une circulation d'hydrogène liquide. Ce dispositif évite les ébullitions.

INSTALLATION DANS EL-3

Elle a fonctionné pour la première fois dans les premiers mois de 1959. Arrêtée à la suite d'un défaut d'étanchéité de l'enceinte à vide, elle a été modifiée dans sa partie en pile [12], mais son principe reste inchangé. Cette nouvelle version fonctionne depuis juillet 1960. Contrairement au dispositif de BEPO décrit plus haut, un seul circuit d'hydrogène est utilisé. La boîte du modérateur (voir fig. 2) est simplement alimentée en hydrogène liquide, et le gaz vaporisé est reliquéfié

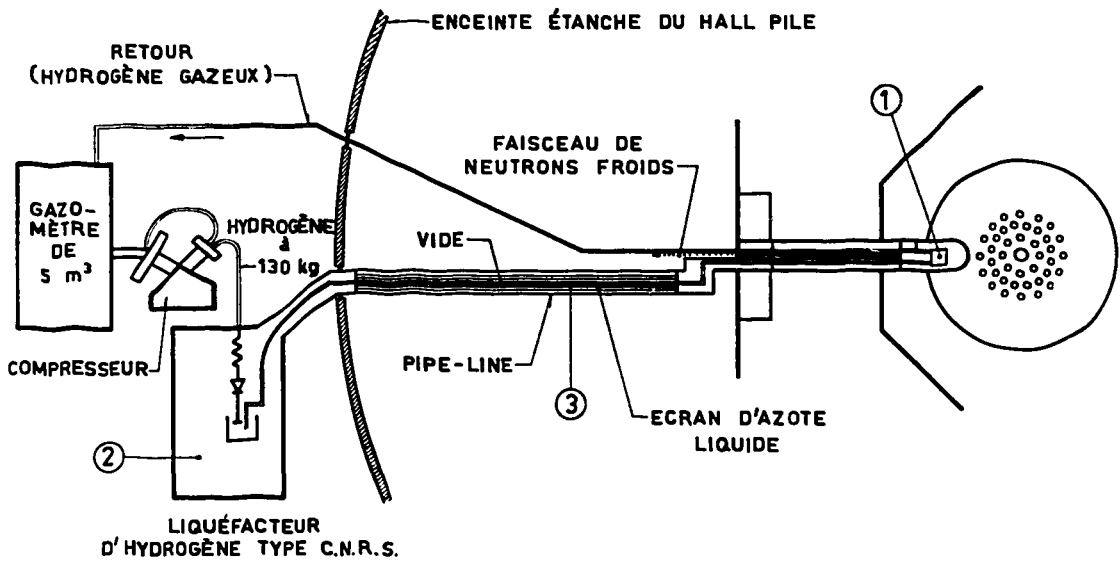


Fig. 2

Schéma de la source froide de EL-3 avec son alimentation.

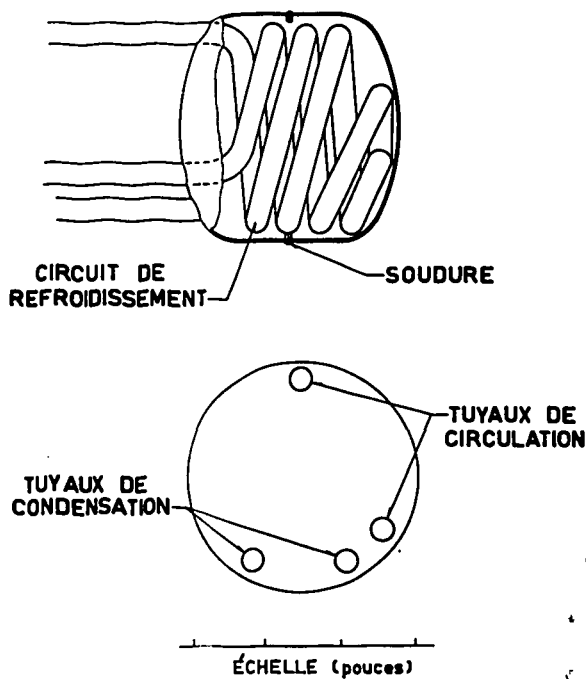


Fig. 3

Modérateur utilisé à DIDO. On voit le double circuit d'hydrogène.

et renvoyé dans le modérateur à travers une canalisation avec écran d'azote liquide. L'isolement dans la partie interne à la pile est réalisé uniquement par le vide. Ce montage est très similaire à celui réalisé dans un frigidaire domestique. La source en cours de montage à la pile DIDO de Harwell utilise au contraire un double circuit d'hydrogène (fig. 3), avec condensation d'un fluide refroidi par la circulation d'un mélange d'hydrogène liquide et gazeux à 20° K. Le montage a l'intérêt d'une grande souplesse de fonctionnement.

Problèmes posés par une source froide dans une pile à haut flux

Ces problèmes sont communs aux diverses installations.

a) CHOIX DU MODÉRATEUR

A Harwell et à Saclay, on a choisi l'hydrogène ou des mélanges hydrogène-deutérium. L'utilisation d'un matériau plus complexe, type méthane, donnerait, d'après les expériences hors pile, sensiblement les mêmes résultats et poserait des problèmes délicats de destruction par le rayonnement. Un liquide qui circule reste peu de temps exposé au rayonnement et ne pose pas ce problème. Par ailleurs, si la pile n'a pas été conçue pour contenir une source de neutrons froids, on dispose en général d'un espace libre assez faible qui limite le diamètre du modérateur à une dizaine de centimètres. Ceci impose l'utilisation d'une substance hydrogénée.

b) ÉCHAUFFEMENT PAR LE RAYONNEMENT

Le modérateur, qui doit être placé aussi près que possible du cœur de la pile pour donner une source intense de neutrons froids, est exposé à un flux intense de neutrons rapides et de gamma. Il en résulte un dégagement d'énergie dans le modérateur. Dans le cas de EL-3 fonctionnant à 17,5 MW, la consommation d'hydrogène liquide due à cet effet est légèrement inférieure à 3 l/h. Cette consommation est relative à un volume de 0,5 l de modérateur contenu dans une boîte d'aluminium AG 5 de 0,5 mm d'épaisseur placée dans un flux de $3 \cdot 10^{13}$ n/cm² s. En 1959, la consommation était encore plus grande, à cause d'une barre d'uranium trop voisine de la boîte, qui doublait cet échauffement sans augmenter le flux de neutrons thermiques. Il convient de noter que, sous cet aspect, une pile comme EL-3 est très favorable car elle est particulièrement pauvre en neutrons rapides.

c) SÉCURITÉ

Nous ne développerons point cet aspect ici. Disons simplement que la sécurité impose de placer le modérateur à l'intérieur d'une enceinte à paroi épaisse (≈ 10 mm), qui chauffe elle-même très fortement et qu'il faut donc refroidir. Ceci réduit le diamètre du modérateur (voir fig. 5).

Résultats obtenus à Harwell et Saclay

a) SOURCE FROIDE DE BEPO

Elle est alimentée en hydrogène pur d'une teneur non indiquée en orthohydrogène. Le spectre émis est mesuré à l'aide d'un spectromètre à temps de vol, et le gain mesuré par comparaison avec l'intensité des neutrons émis par un bloc

de graphite ($T_0 = 400^\circ \text{K}$) mis à la place du modérateur froid (il faut faire cela car le modérateur est dans un canal qui traverse la pile de part en part). Le spectre observé (fig. 4) n'est absolument pas un spectre maxwellien à 20°K ;

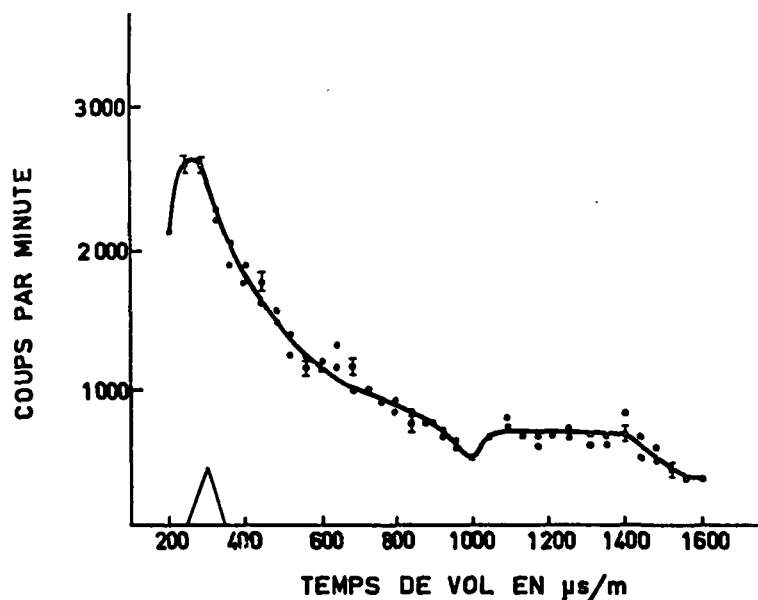


Fig. 4

Spectre des neutrons sortant de la source froide de BEPO.

il reste en particulier une importante composante de neutrons de 400°K . Cependant, l'intensité des neutrons froids est considérablement accrue par l'hydrogène liquide. Des valeurs caractéristiques du gain sont données dans le tableau II (le gain théorique est celui que l'on aurait si le spectre maxwellien se déplaçait de 400°K à 25°K , en négligeant tout effet de capture).

TABLEAU II

GAINS EN INTENSITÉ DE NEUTRONS FROIDS — BEPO

Longueur d'onde du neutron (Å)	Gain mesuré	Gain théorique
5	7	60
7,5	20	135
10	25	180

b) SOURCE FROIDE DE EL-3

Les résultats obtenus avec cette source ont été présentés [13] au Colloque sur la diffusion inélastique des neutrons dans les liquides et les solides.

Cette source a été essayée avec de l'hydrogène pur, du deutérium pur, et divers mélanges d'hydrogène et de deutérium. Elle fonctionne en pratique avec un mélange de $2/3$ d'hydrogène et $1/3$ de deutérium.

Le modérateur est un cylindre de 106 mm de diamètre, fermé par des calottes bombées. L'épaisseur moyenne est de 60 mm et l'épaisseur maximum de

74 mm (fig. 5). Les figures 6 et 7 donnent les gains obtenus avec divers mélanges hydrogène-deutérium à plusieurs longueurs d'onde. A titre de comparaison, on a reporté sur la figure 6 les résultats obtenus à Harwell. Il convient de dire que les gains pratiques sont de 17% plus faibles que ceux indiqués, car la surface

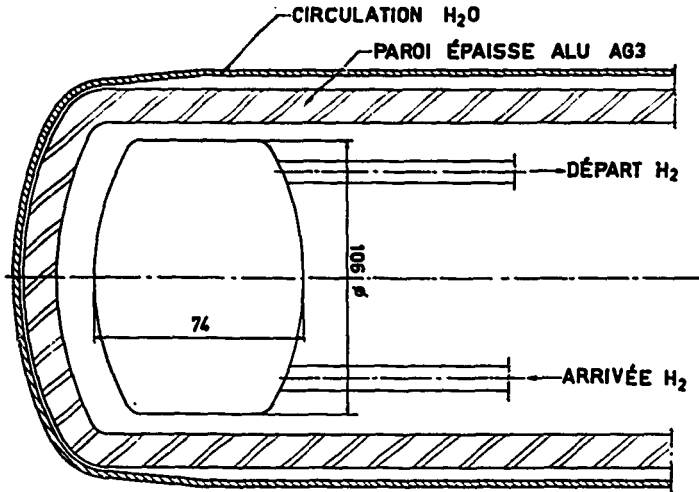


Fig. 5

Modérateur de EL-3. On voit la place perdue par la nécessité d'avoir une enceinte épaisse refroidie.

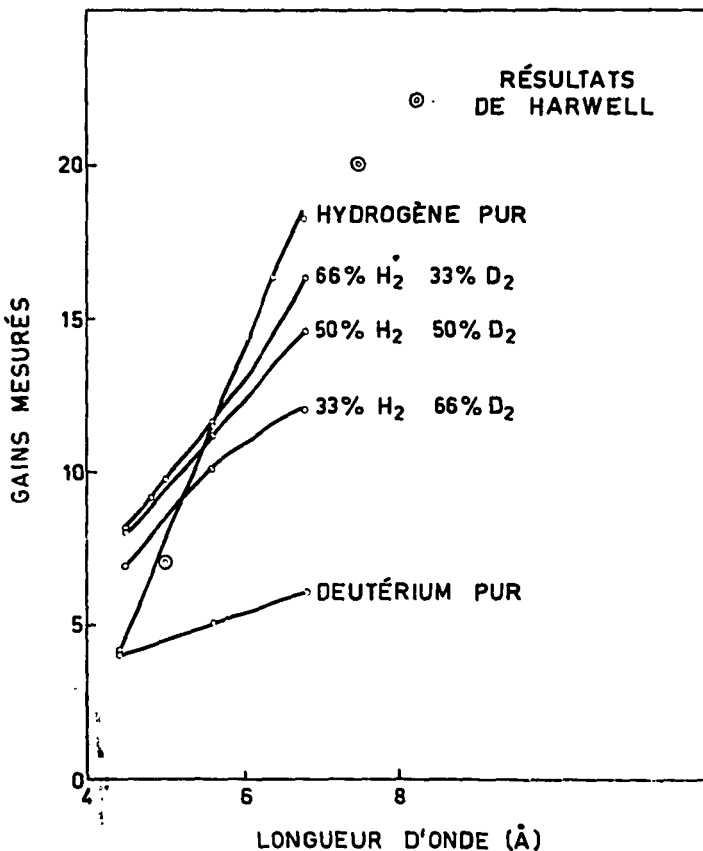


Fig. 6

Gains obtenus pour divers mélanges hydrogène-deutérium.

de la source froide est plus petite que la source de neutrons chauds vue par l'échantillon à travers le collimateur.

L'hydrogène pur utilisé contient environ 50% d'orthohydrogène, le seul catalyseur de transformation (charbon actif) étant à la température de l'azote liquide.

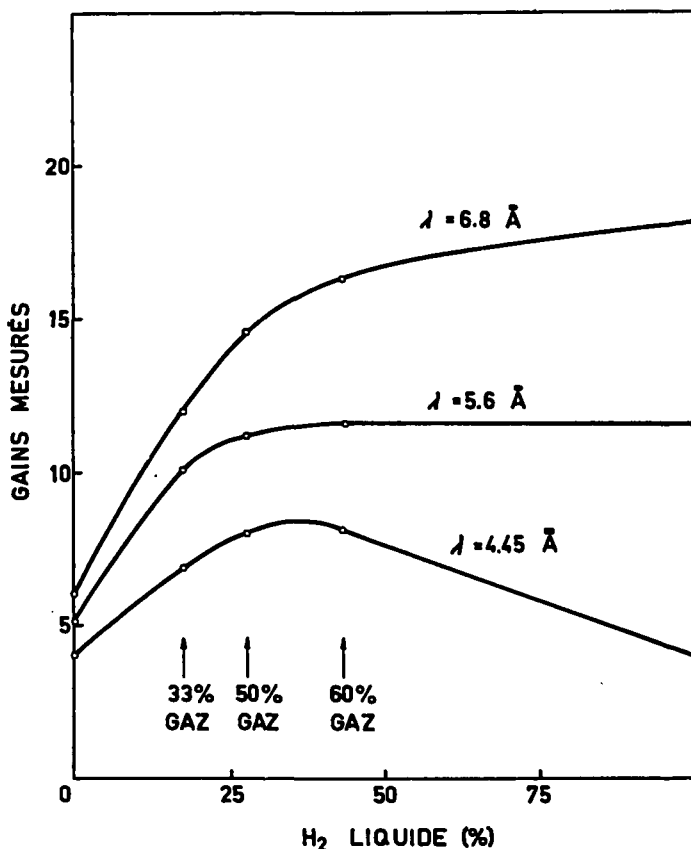


Fig. 7

Gains obtenus pour divers mélanges hydrogène-deutérium. On a reporté sur cette figure les résultats de la figure 6 en fonction de la concentration calculée en hydrogène liquide dans le modérateur.

Dans les mélanges hydrogène-deutérium, la concentration en hydrogène dans la phase liquide dans le modérateur est plus faible que le pourcentage de gaz introduit dans l'installation. La figure 7 indique la correspondance calculée en supposant deux distillations: l'une dans le liquéfacteur, l'autre dans le modérateur. Avec le mélange utilisé pour le fonctionnement continu (2/3 hydrogène), aucune évolution du gain à 4,45 Å n'a été observée en fonction du temps.

DISCUSSION DES RÉSULTATS

Il est aisé d'évaluer le gain $G(\lambda)$ que l'on obtient pour la longueur d'onde λ , quand un spectre maxwellien à la température T_0 se déplace à la température T_1 , le flux total étant conservé:

$$G(\lambda) = \left(\frac{T_0}{T_1}\right)^2 \exp \left[\frac{970}{\lambda^2} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T_1} \right) \right]$$

où λ est exprimé en angstrœms et les températures en degrés absolus. On voit que le gain varie pratiquement comme le carré de la température initiale. Ceci complique les comparaisons entre les mesures: pour les mesures hors pile belges, $T_0 = 500^\circ \text{K}$ — dans l'expérience de BEPO, $T_0 = 400^\circ \text{K}$ — à EL-3, $T_0 \simeq 300^\circ \text{K}$.

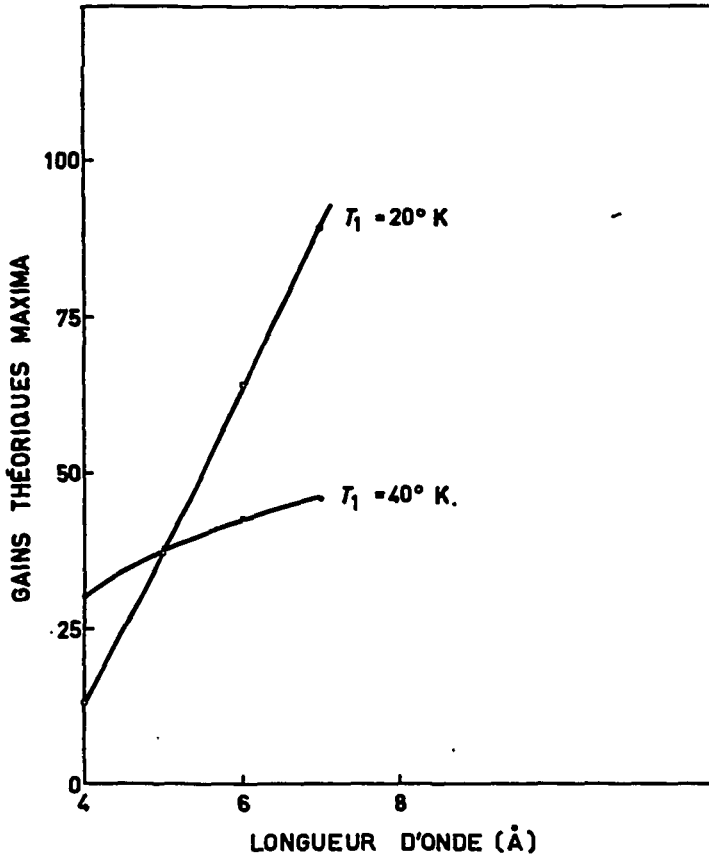


Fig. 8

Gains théoriques pour une température initiale T_0 des neutrons ($T_0 = 300^\circ \text{K}$).

La figure 8 donne ces gains maxima pour $T_0 = 300^\circ \text{K}$ et deux valeurs de T_1 . On voit que les résultats expérimentaux sont considérablement en dessous. Il y a, trois raisons pour cela:

a) Le modérateur d'hydrogène, n'étant pas en plein cœur de la pile, n'est pas baigné par un flux isotrope de neutrons thermiques. Il en résulte une diminution du gain, difficile à évaluer précisément, mais qui doit être de l'ordre de 30% dans le cas de EL-3.

b) La capture, qui ne joue évidemment pas dans le cas du deutérium pur, est dans tous les cas difficile à évaluer puisque l'on ne connaît pas l'histoire du neutron au cours de son ralentissement. On peut l'évaluer grossièrement à partir de la longueur de diffusion dans l'hydrogène liquide. Cette longueur elle-même n'a pas été mesurée, mais elle peut être déduite à partir de celle mesurée dans l'eau pour un spectre maxwellien à température ordinaire (2,85 cm). On trouve une valeur comprise entre 7 cm et 3,5 cm suivant que les neutrons sont à la température ordinaire ou à 20°K . On peut en déduire que, pour les volumes de modérateur utilisés, la perte par capture est d'environ 50% des neutrons.

c) Le défaut de thermalisation est, nous l'avons vu, général, mais il est sans aucun doute plus important quand on utilise le deutérium liquide, qui a une section efficace plus faible que l'orthohydrogène.

L'effet de la capture apparaît nettement sur la figure 7; à 4,45 Å, on augmente le gain en diluant l'hydrogène liquide avec du deutérium. Comme la température correspondant à 4,45 Å est encore assez élevée (50° K), le défaut de thermalisation est moins sensible. De fait le gain théorique de 25 et le gain optimum obtenu de 8.1 ne sont que dans un rapport 3. Par contre, à 6,7 Å (température de 22° K), le défaut de modération est évident puisque le gain maximum est obtenu avec l'hydrogène pur, malgré une capture sans doute plus forte pour les neutrons de grande longueur d'onde. Le gain obtenu est cinq fois plus faible que le gain théorique.

Signalons que la dilution par le deutérium a un effet complexe. Elle réduit la capture, mais elle change aussi le processus de ralentissement, puisqu'elle change les pourcentages d'orthohydrogène par formation de molécules HD.

Conclusions

Les expériences hors pile, ainsi que les montages de Harwell et Saclay, prouvent qu'il est possible d'augmenter de façon importante le flux des neutrons froids sortant d'un canal de pile. Cependant, les gains obtenus par les divers expérimentateurs sont sensiblement plus faibles que les gains calculés. La capture et la mauvaise thermalisation en sont responsables.

Il reste à faire un grand nombre d'essais. Il faudrait en particulier:

1. Etudier les spectres fournis par l'hydrogène liquide en fonction de la teneur en orthohydrogène pour diverses dimensions de modérateur.
2. Etudier des modérateurs fonctionnant à la température de l'azote liquide, qui donneraient peut-être de meilleurs résultats dans la région de 4 à 5 Å, la plus importante expérimentalement.

De tels essais auraient intérêt à être faits dans des piles à bas flux, où l'on ne serait gêné ni par l'échauffement par le rayonnement, ni par l'activation du matériel ayant été en pile.

RÉFÉRENCES

- [1] EGELSTAFF, P. A., LONDON, H. et WEBB, F. J., Conférence de physique des basses températures, Paris (1955).
- [2] BUTTERWORTH, I., EGELSTAFF, P. A., LONDON, H. and WEBB, F. J., *Phil. Mag.* 2 (1957) 917.
- [3] JACROT, B., LACAZE, A. et WEIL, L., 10^e Congrès international du froid, Copenhague (1959).
- [4] NELKIN, M. S. "Slow-neutron inelastic scattering and neutron thermalization". *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 3.
- [5] HUGUES, D. J., PALEVSKY, H., KLEY, W. and TUNKELO, E., *Phys. Rev.* 119 (1960) 872.
- [6] BORST, L. B., *Phys. Rev. Lett.* 4 (1960) 131.
- [7] HAUTECLER, S. et VAN DINGENEN, W., "Etude systématique de sources de neutrons froids", *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 453.
- [8] O'CONNOR, D., MALISZEWSKI, E. et BEDELEK, W. "The production of cold neutrons by inelastic scattering in hydrogen-containing substances," *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 447.

- [9] McREYNOLDS, A. W., et WHITTEMORE, W. L., "Inelastic scattering of neutrons from very cold materials", *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 421 et communication privée.
- [10] BORST, L. B., "Neutron moderation to low temperatures," *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 437.
- [11] WEBB, F. J., Harwell Report, AERE NP/R 2547 (1958).
- [12] CRIBIER, D., JACROT, B., LACAZE, A., ROUBEAU, P. et WEIL, L.. *A paraître.*
- [13] CRIBIER, D., JACROT, B., LACAZE, A. et ROUBEAU, P., "Expériences de thermalisation de neutrons lents par de l'hydrogène liquide", *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) 411.

DISCUSSION

P. A. Egelstaff (United Kingdom): I should like to offer two comments on the points made by the speaker regarding the design of the moderator. The first is that it is not really quite true to say that the number of hydrogen atoms is the only matter of importance in getting a good result. We actually made a comparison of methane with methyl alcohol to test this particular point, because methane has a strong rotational level which is missing in methyl alcohol. The effect of adding this extra radical to the methane group was to suppress the rotational level that appears in methane. Moreover, for the same number of hydrogen atoms there is noticeably less moderation in methyl alcohol than in methane, and there must be other similar examples. However, I will support the speaker's statement as generally true.

The second factor, which is very important to the designer, is related to the limitation in hole size. We have used a 10-cm-diameter hole, as was done in the Saclay work. The limitation in hole-size means that the surface scattering from the moderator is a feature of dominant importance and for this reason it is important to get very good moderation from scattering on a surface. As shown in the recent work reported by Mr. McReynolds, liquid hydrogen is an extremely powerful moderator, whereas water, in comparison, is a very poor moderator from the point of view of surface scattering. I think that this point might well be the subject of further investigations, because the design of the moderator is controlled by the fact that one is dealing with a very small hole, which results in the dominance of surface scattering.

A. W. McReynolds (United States of America): I should like to add a few comments which mostly re-emphasize some of the points that Mr. Jacrot has made. The first is that with the cold moderators, at least at the present stage, one is seeking largely a quantitative rather than a qualitative change, i.e. enhancement of the low-energy part of the spectrum. It would be desirable in some of the cold-neutron solid-state experiments to get a spectrum which was completely moderated and did not require additional filtering; but so far it appears that one does not get moderation to temperatures low enough for it to be useful in this way. Additional filters or choppers must be used for cold-neutron scattering experiments.

A second point which I think should be considered by those using reactors of lower flux (or at least not of the very highest flux) is whether a cold-neutron source is worth while for them. I think there are some compensating features in the low-flux reactors which make the cold sources actually desirable. You will note that the high-flux reactors, as Mr. Egelstaff has just pointed out, are generally subject to the limitation of a very small hole-size and therefore to

limitations on their design. If one is concerned mainly with increasing the cold-neutron flux by means of a cold moderator, one will find that a lower-flux reactor frequently has a more flexible shield, and if one can, for example, increase the size of the hole by a factor of three and thereby widen the emergent beam, one already has an order of magnitude and a flux which can be used. I think that this is a very useful point, particularly for those who are still designing and installing reactors, namely, that if the research holes are properly designed for use with cold facilities, there can be very large gains just from the geometry of the hole; which will put the reactor on a basis somewhat equal to that of the high-flux reactors.

A third comment, and one which emphasizes a point made by Mr. Jacrot, is that for many of the solid-state problems, the neutrons required are in the range from 0.002—0.005 eV—that is, roughly speaking, from 4—6 Å, and in this region water-moderators at liquid-hydrogen temperature are competitive with liquid hydrogen and probably in some cases easier to use. In fact, there is a considerable advantage to be derived from a liquid-nitrogen temperature-moderator. Thus, for those laboratories which do not wish to have too elaborate an installation, a useful purpose is still served by even liquid-nitrogen temperature-moderators and water.

I should like to make one further point, concerning the ultimate cold spectrum that could be attained in the most elaborate type of reactor. The coldest reasonable temperature would be that of liquid helium; and then the question arises whether neutrons can be brought into thermal equilibrium at liquid-helium temperature. That problem does not appear to have been completely resolved. At the Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons, Mr. Borst reported findings in which he appeared to get large numbers of neutrons at temperatures approaching that of liquid helium. Our own results* gave data for H₂O at 21° K and points for H₂O at 4° K liquid-helium temperature. They seem to show that, at least with H₂O, one cannot get much below the spectrum shown, for which the average energy is roughly equivalent to a 40°—50° K Maxwellian distribution, so that this represents about the ultimate low-neutron temperature with water.

There is one further matter which we have tried to consider: solid hydrogen at liquid-helium temperatures of 4°. There again we found that when one went from the liquid to the solid, the spectrum deteriorated from the point of view of a cold-neutron moderator—i.e. the solid hydrogen was less effective than the liquid, presumably because of less effective moderation in the more tightly bound solid lattice. However, the best moderator found in our case was liquid hydrogen at its freezing point, which was of the order of 10—11° K. This was somewhat better than liquid hydrogen at its boiling point. At the moment we do not know how to improve on the 10—11° K liquid H₂ as the ultimate cold spectrum.

N. Sirota (Byelorussian Soviet Socialist Republic): Mr. Jacrot dwelt in great detail on the production of cold neutrons by cooling with liquid hydrogen. It seems to me that it would be more interesting now to compare from various points of view, including the economic one, the possibility of obtaining cold neutrons by cooling with liquid nitrogen (as Mr. McReynolds told us), with

* McREYNOLDS, A. W. and WHITTEMORE, W. L.. "Inelastic Scattering of neutrons from very cold materials", *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna (1961) p. 421, Fig. 9.

liquid hydrogen, and with liquid helium. Cooling with liquid helium might well prove in certain circumstances the safest and most economical method.

B. Jacrot: My main objection to substances other than hydrogen is the fact that there would be radiation damage, thus making for a very dangerous situation.

N. Sirota: I think, nevertheless, that the chief coolant will be circulating helium; therefore, the question of safety will be of less importance; and in any case from the economic point of view also I think it would be valuable to make some calculations. Possibly the helium cycle would not in that case be more expensive, and it would offer various possibilities. It would be interesting to look into those considerations in greater detail. In using various other reactors for research into solid-state physics under various conditions, it would be sufficient to be content with nitrogen temperatures.

B. Jacrot: I think I agree with you on these various points, and that it would in fact be a good thing to place the cell at the temperature either of liquid helium or of liquid nitrogen. But it would be easier to do that in a double-circuit installation like the one at Harwell; they could certainly do it there.

N. Sirota: I do not quite understand Mr. Jacrot's idea about the necessity of using only a liquid moderator. Perhaps, as Mr. McReynolds implied, more attention should be paid to the possibility of using solid moderators at low temperatures; in particular, the greatest effect of hydrogen occurs in the solid state at the moment of hardening.

B. Jacrot: The value of a liquid is essentially that it does not remain in the reactor but circulates and is therefore not destroyed by the radiation.

N. Sirota: I am interested in the question of whether in your hydrogen cycle there is not a loss of hydrogen by diffusion through the walls of the loop—whether hydrogen does not pass by diffusion directly into the reactor core through the walls of the pipes and tank as soon as it enters.

B. Jacrot: I do not think so; for if there had been such a loss, the insulating vacuum in the lower part of the pile would have deteriorated. In fact, however, this vacuum has always been extremely good, and we have never observed any deterioration in it due to the presence of liquid hydrogen inside the installation. In some of our operations, in particular, we stopped pumping for 24 hours on end. There was no more pumping at all inside the pile; and it seems to me that if there had been any diffusion of hydrogen through the liquid-hydrogen container, the operation could not have continued.

A. Salmon (United Kingdom): Mr. Jacrot has been speaking mainly about liquid-hydrogen facilities with graphite- and heavy-water-moderated reactors, and he has emphasized the difficulties of radiation heating. If one turns to light-water-moderated-reactors, gamma-ray heating, per megawatt, might go up by a factor of ten, and the fast-neutron flux by a factor of six, compared with the DIDO type. This would suggest that the operating costs of these facilities with light-water-moderated reactors would be very large. It happens that many 1—5 MW light-water-moderated reactors are being introduced in research operations throughout the world at the present time. Would Mr. Jacrot advise the users of such reactors to stay well away from the liquid-hydrogen facilities,

wherever possible, and to concentrate instead on liquid-nitrogen facilities if they have to go into this field?

B. Jacrot: I agree with you perfectly on that point. I think that in a swimming-pool reactor the radiation heating would be much greater than that now experienced. But a mixture of hydrogen and deuterium might result in a reduction of radiation heating, because there is less fast-neutron heating in deuterium than in hydrogen, and possibly there might be some gain. In any event, I do believe that the temperature of liquid nitrogen can be used in connection with a swimming-pool reactor.

P. A. Egelstaff: There is no real objection to using a two-stage moderator or, for example, a bismuth shield, to eliminate the gamma-rays before they get to the moderator. In a sense, Mr. Jacrot is already employing a two-stage shield in that he removes some of his fuel elements in the neighbourhood of the moderator and thereby includes a certain thickness of heavy water between his moderator and his fuel. This arrangement constitutes, in fact, a two-stage moderator.

B. Jacrot: I do not quite agree with you about the use of a bismuth filter. I have two objections: the first is the very important fact that it is the fast neutrons which are the most effective factor in the radiation heating; the second is that, if you put in some kind of filter, you have to put the cold neutrons through at a considerable distance from the reactor core and you will not have an isotropic flux round it. I therefore do not think that this would be a very efficient arrangement.

P. A. Egelstaff: I have always felt concern over our lack of knowledge about the influence of the surroundings on the performance of the moderator. In our early experiments we used paraffin wax round the moderator. In other words, the initial thermalization was done in wax, and the moderation was then done in liquid hydrogen and methane and various other materials. In the BEPO reactor we had graphite round the moderator. This did not seem to make too much difference with our experience of paraffin wax round it. But in fact there may be an important difference here, because the neutrons are continually interchanging energy between the cold moderator itself and the surroundings. As far as I know, no one has yet done a series of experiments in which a moderator, say, liquid hydrogen at a given temperature and of a given composition, is kept fixed while one merely varies the surroundings, providing all the types of surroundings that might be encountered inside reactors. I would suggest this as an important experiment to anyone interested.

FIN