

# ADS 有窗靶散裂产物对质子管真空影响分析

赵子甲, 陈红丽

(中国科学技术大学核科学技术学院, 安徽合肥 230027)

**摘要:**为了给 ADS 的次临界堆芯提供持续的中子源,一般通过加速器将强度为几个毫安的质子加速到能量为数百 MeV 至几个 GeV 来轰击重金属靶.在为堆芯提供中子源的同时,也会产生散裂产物,其中包括大量的易挥发核素与轻核素.对无窗靶,易挥发核素可以直接通过窗口进入质子管,即使对于有窗靶,轻核素依然可以通过渗透进入质子管.这里分析了轻核素对有窗靶质子管真空度的影响.以软件模拟获得散裂靶中轻核素的产量,计算其渗透速度,再结合流导进行计算,即可得出质子管内的压强.最后将结合部分 PDS-XADS 靶的设计与估计数值给出结果.

**关键词:** ADS; 真空管; 氢渗透

**中图分类号:** TL503      **文献标识码:** A      doi:10.3969/j.issn.0253-2778.2014.12.009

**引用格式:** Zhao Zijia, Chen Hongli. Influence of the spallation production to the proton tube of ADS[J]. Journal of University of Science and Technology of China, 2014, 44(12):1014-1018.

赵子甲, 陈红丽. ADS 有窗靶散裂产物对质子管真空影响分析[J]. 中国科学技术大学学报, 2014, 44(12):1014-1018.

## Influence of the spallation production to the proton tube of ADS

ZHAO Zijia, CHEN Hongli

(School of Nuclear Science and Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230027, China)

**Abstract:** A spallation target and a proton accelerator were needed for an accelerator driven sub-critical system (ADS) to provide continual neutron sources for the blanket. For the windowed target, light nuclides easily permeate the interface of the proton tube and target. The influence of light spallation productions on the vacuum of the proton tube was analysed. First software was used to simulate the spallation production yields, then, in combined the permeation and flow conductance calculation, pressure in the proton tube was obtained. At last, parameters of PDS-XADS were partly used to give a numerical result to get a visual impression.

**Key words:** ADS; proton tube; hydrogen permeation

### 0 引言

近年来压水堆中的长寿命放射性核素越来越受

人关注,自从 20 世纪 90 年代加速器驱动次临界系统(accelerator driven sub-critical system, ADS)被提出以来<sup>[1]</sup>,由于其堆芯的中子能谱硬(几百 KeV

收稿日期:2014-03-13;修回日期:2014-05-25

基金项目:中国科学院战略先导专项(XDA03040000)资助.

作者简介:赵子甲,男,1984 年生,博士.研究方向:ADS 散裂靶中子学及安全性能分析. E-mail:sszdzl1@mail.ustc.edu.cn

通讯作者:陈红丽,博士/教授. E-mail:hlchen1@ustc.edu.cn

到几 MeV), 适合进行长寿命放射性核素的嬗变而受到关注, 其工作原理是以加速器产生的高强度中能带电粒子流(一般流强为一到几个毫安, 能量为几百 MeV 到几个 GeV 的质子流)轰击重金属靶(本文采用常见的液态铅铋靶<sup>[2-4]</sup>, 铅 45%, 铋 55%), 以向外的次临界堆芯提供持续的散裂中子源. 同时散裂靶中也会产生大量的散裂产物. 对于无窗靶, 散裂产物中的易挥发核素可以直接通过开放的窗口进入加速器真空管而降低其真空度, 这个问题已经在文献[5]中被研究. 对于有窗靶而言, 虽然在真空管与散裂靶之间有物理间隔, 但是难以防止散裂产物中的轻核素(如氢的同位素)通过渗透作用进入真空管内. 本文将对这种效应进行研究, 给出渗透的速度、气体压强和平衡时间等主要参数与各个设计参量之

间的关系, 并结合已公开的 PDS-XADS 的一种设计给出直观数值上的结果. 从结果可以看到, 对能量较高流强较大的质子源, 氢的渗透对真空管的影响较为明显, 简单的靶窗并不能保证加速器管道所需要的高真空.

## 1 轻核素的来源

为获得散裂产物的数据, 我们使用由 CERN 和 INFN 联合开发的蒙特卡洛软件 FLUKA<sup>[6]</sup>, 其可以模拟多种粒子在很宽的能量范围内与物质的反应过程. 图 1 是以流强为 1 mA, 能量分别为 0.5, 1, 1.5, 2, 2.5, 3 GeV 的质子轰击半径为 40 cm, 高度为 100 cm 的铅铋靶每秒产生的散裂产物随原子序数分布情况的模拟结果, 从中可以看到散裂产物以原子序

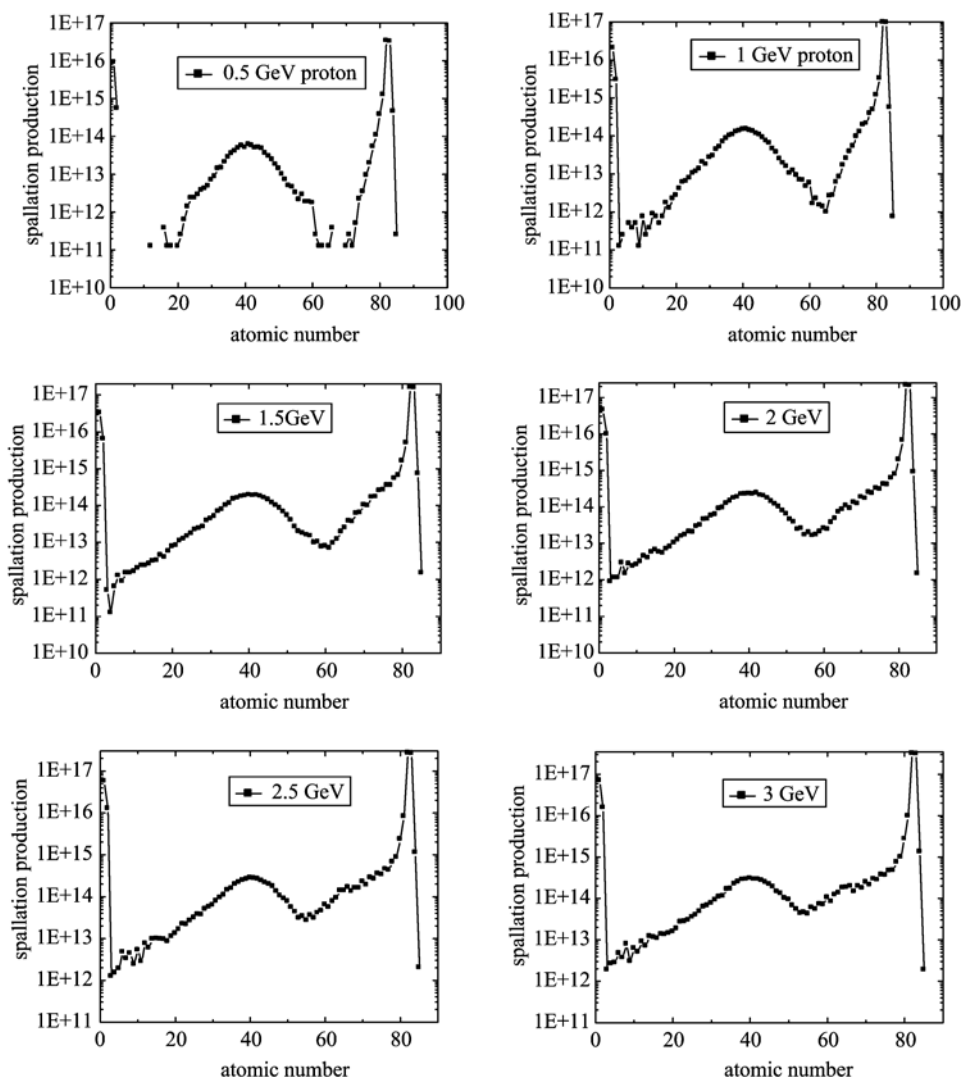


图 1 质子轰击铅铋靶散裂产物原子序数分布图

Fig. 1 Spallation productions produced by proton of 1 mA

数在氢附近的轻核素与在铅铋附近的重核素较多,中等原子序数的核素较少,产量最多的轻核素为氢与氦的同位素,两者的产量比其他轻核素多了约 4~5 个数量级,而氦作为一种惰性气体元素,化学活性很小,产生之后难以与结构材料相互作用而渗透,相反,氢作为一种化学活性很高的元素,可与多种物质相互作用,几乎能溶于所有的固体材料中,且由于氢同位素的原子半径比包括氦在内的其他元素小得多,因而易于在所溶解的材料中发生流动,表现为较强的渗透性<sup>[7]</sup>.综合以上因素考虑,在产生与渗透过程中,氢的同位素占有主导地位,因此本文将主要考虑氢同位素的产生与渗透情况.

当散裂靶的材料确定后,氢同位素的产量只与质子能量、流强和散裂靶的几何有关系.其中质子流强与氢同位素产量应当是线性关系,而质子能量与散裂靶几何的对产量的影响见图 2,从中可以看到,对 1 mA 强度的质子而言,当入射能量从 0.5 上升到 3 GeV 时,氢同位素的产量大约在  $1 \times 10^{16} \sim 7 \times 10^{16}$  之间,产量与质子能量基本上符合正比例关系.而相反,散裂靶的几何,主要是半径这一参量,对氢同位素的产生影响却并不明显,从图 2 可以看到,当散裂靶的半径从 40 cm 减小到 20 cm,体积减小了 3/4 时,氢同位素的产量下降最多不超过 12%.因此

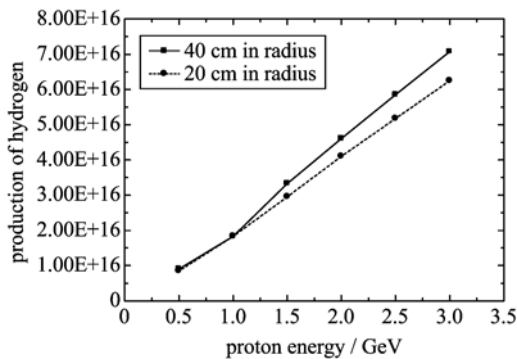


图 2 1 mA 质子流轰击 20, 40 cm 半径铅铋靶每秒氢的同位素产量

Fig. 2 Hydrogen isotopes produced by LBE target of 20 and 40 cm in radius bombed by proton of 1 mA

可见质子能量与流强在氢同位素的产生过程中是占有主导作用的影响因素.氢的 3 种同位素随入射质子能量的分布在氢元素产量中占的比例见表 1,可见氘所占比例随质子能量升高而有所上升,但总体上来看不大于 10%,在质子能量较低时甚至小于 1%.

## 2 轻核素的渗透

氢在铅铋中可以形成氢分子  $H_2$  或者与铅铋反应生成氢化铅 ( $PbH_4$ ) 与氢化铋 ( $BiH_3$ ),但是氢化铅与氢化铋不稳定,常温下即会分解为 Pb 或 Bi 与  $H_2$ ,因此可以认为铅铋中的氢化学形式为  $H_2$  或者氢单质,它们通过结构材料向真空的渗透分为 4 步<sup>[8]</sup>:吸附/解吸、结构钢表面与体之间交换氢原子、在固体晶格内扩散、离解/复合,其中前两个过程进行很快,因此渗透主要由后两个过程决定.另外,不锈钢表面一般会自然形成致密的氧化膜<sup>[7]</sup>,其中的  $Cr_2O_3$  能够显著阻挡氢的渗透,但是在高温条件下,  $Cr_2O_3$  并不稳定,易于与氢发生还原反应,且散裂靶中的冷却剂铅铋容易腐蚀氧化层而使其失去阻挡渗透的作用.因此在计算中暂不考虑表面氧化膜对氢渗透的影响.

氢在固体晶格内的扩散遵守菲克定律<sup>[7]</sup>:

$$J = -D(\nabla C_H),$$

$$\frac{\partial C_H}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla C_H).$$

式中,  $C_H$  为固溶氢浓度,  $J$  为扩散通量,  $D$  为扩散系数,  $D = D_0 \exp[-Q_0/(RT)]$ ,其中,  $D_0$  为扩散常数,  $Q_0$  为扩散激活能.各种常用材料的参数可以从文献<sup>[7]</sup>中查到,一般来说对氢的 3 种同位素有

$$D_H : D_D : D_T = 1 : \frac{1}{\sqrt{2}} : \frac{1}{\sqrt{3}}.$$

特别地,对 316L 钢有

$$D_H = 4.79 \times 10^{-7} \exp\left[\frac{-51.59}{RT}\right] m^2/s,$$

$$D_T = 2.28 \times 10^{-10} \exp\left[\frac{-15124}{RT}\right] m^2/s.$$

表 1 3 种氢同位素产量的比例

Tab. 1 Proportion of Hydrogen isotopes produced

	质子能量/GeV					
	0.5	1	1.5	2	2.5	3
氘比例	0.992 296	0.969 861	0.944 882	0.917 861	0.916 079	0.904 977
氚比例	0.004 355	0.017 771	0.032 996	0.042 342	0.051 356	0.059 090
氢比例	0.003 349	0.012 369	0.022 122	0.039 796	0.032 565	0.035 933

而对离解/复合过程有

$$J = -n \frac{d\theta}{dt} = k_d n^2 \theta - k_a P(1 - \theta)^2.$$

式中,  $n$  为固体表面的原子面密度,  $\theta$  为氢原子在固体表面的覆盖程度,  $k_d$  为解吸的速率常数,  $k_a$  为吸附速率常数,  $P$  为环境氢气压强, 而根据文献[7], 在氢浓度不太低的情况下, 氢在 316L 钢的基体内扩散遵守菲克定律, 即氢在 316L 钢晶格内的扩散速度对渗透过程起决定作用. 不锈钢内层的氢浓度  $C_H$  与氢气压强  $P$  之间满足 Siverts 关系:  $C_H = S \sqrt{P}$ , 其中,  $S$  是溶解度, 且

$$S_H = 8.14 \times 10^2 \exp\left[\frac{-12.47}{RT}\right] \text{mol/m}^3 \cdot \text{MPa}^{1/2},$$

$$S_T = 1.44 \times 10^5 \exp\left[\frac{-45028}{RT}\right] \text{mol/m}^3 \cdot \text{MPa}^{1/2}.$$

### 3 质子管的流导

氢进入质子管后, 会污染管内的真空, 而加速器管道中一般需要保持高真空 ( $1 \times 10^{-5}$  Pa 以下) 以避免出现等离子体雪崩效应, 虽然有真空泵保持真空, 但是在堆顶盖以下的长达数米的部分由于放射性强且结构较多(如换料结构、覆盖气体室、冷却剂等), 难以布置真空泵, 因此在离真空泵入口较远的地方, 如靶窗附近, 压强除受真空泵抽速的影响之外, 还受管道流导的影响.

$$P_{eq} = \frac{Q}{S_{eff}},$$

$$S_{eff} = \left[ \frac{1}{S_b} + \frac{1}{C} \right]^{-1}.$$

式中,  $P_{eq}$  为平衡压强,  $Q$  为氢气的渗透速度,  $S_{eff}$  为等效的气体抽速,  $C$  为等效的管道的流导,  $S_b$  为真空泵的抽速, 在靶窗附近有  $S_b \gg C$ , 因此有  $S_{eff} \approx C$ , 对常见的圆柱形质子管道而言, 在稀薄气体分子流

状态下有  $C = 1.2 \sqrt{\frac{T}{\mu}} \frac{D^3}{L}$ , 其中,  $T$  为气体热力学温度,  $\mu$  为气体的摩尔质量,  $D$  为管道直径,  $L$  为管道长度.

### 4 有窗靶分析

综合以上关系, 则可以对氢元素的产生、渗透、传导过程进行计算分析. 由于在 1 GeV 附近 (ADS 常用的质子能量), 氘气的产量小于总产量的 5%, 且氘气的扩散系数又小于氘的扩散系数, 为了简化计算, 则忽略氘的影响. 又由于整个系统的连续运行时间一般为数月至数年, 而铅铋在回路中的循环时间为数分钟至数十分钟, 即在一个循环周期内产生的氢相对于其在系统内的积累量而言很小, 可以认为氢在回路中是均匀分布的. 则有微分方程:

$$\frac{dC_1(t)}{dt} = \frac{-Q}{V} + \frac{n \times I}{V},$$

其中,  $C_1$  为铅铋中的氢浓度,  $Q$  为氢单位时间对质子管的渗透量,  $V$  为铅铋体积,  $I/\text{mA}$  为质子流强,  $n$  为每秒每毫安质子流强散裂产生的氢的物质的量. 而且有  $Q = J \times S$ ,  $S$  为铅铋与质子管壁的接触面积,  $J$  即扩散通量,  $J = -D_H \times \nabla C_2$ ,  $C_2$  为质子管壁中的氢浓度, 使用圆柱坐标, 则有  $J = -D_H \times \frac{C_3 - C_1}{h}$ , 其中  $h$  为质子管壁的厚度,  $C_3$  为质子管内壁的氢浓度, 且  $C_3 = S_H \sqrt{P}$ ,  $P$  即质子管内氢气压强, 且  $P = \frac{Q'}{C}$ ,  $C$  为质子管的流导, 再根据流量的定义, 有  $Q'$  与  $Q$  的关系式  $Q' = Q \times RT/2$  (2 来自氢气是双原子分子). 将这些关系整理一下, 则有

$$Q = D_H S \frac{C_1 - S_H \sqrt{QRT/(2C)}}{h}.$$

由上式可解出

$$Q = \frac{S_H^2 RT/C + 4C_1 h/(D_H S) - 2 \frac{S_H \sqrt{RT}}{\sqrt{2C}} \sqrt{\frac{S_H^2 RT + 4C_1 h/(D_H S)}{2C}}}{4h^2/(D_H^2 S^2)},$$

代入关于  $C_1(t)$  的微分方程, 理论上可解出  $C_1(t)$ , 但是此方程较为复杂, 需要将其进行简化.

先来考虑系统达到平衡的条件: 平衡时  $C_1, P$  与  $J$  都应达到稳定且为最大值, 不会继续提高, 此时铅铋每秒散裂产生氢的量应等于每秒渗透进入质子管的量, 即  $Q = n \times I$ , 这样可以给出  $P$  和  $J$  的平

衡值  $P = nITR/(2C)$  和  $J = Q/S = nI/S$ , 则有

$$C_3 = S_H \sqrt{nITR/(2C)},$$

$$C_1 = S_H \sqrt{nITR/(2C)} + nh/(SD_H).$$

为给出一个数值上的结果, 对所需参数给出大致估计: 质子管插入堆顶盖以下不适合布置真空泵的部

分估计为 5 m 长,其中底部约 20 cm 左右的高度位于堆芯内,与铅铋直接接触,则接触面积为 0.22 m<sup>2</sup>,流道内铅铋的总量估计约为 100 L,铅铋的温度约为 400 °C,而根据图 2 的结果,氢同位素的产量对散裂靶的几何并不敏感,因此无需做特别的假设.质子源的参数参考 PDS-XADS<sup>[4]</sup>,质子流强为 6 mA,能量为 600 MeV,质子管壁厚约为 3 mm,半径为 10 cm.则可以得到  $P, C_1$  的最大值分别为 0.008 64 Pa 与 0.078 8 mol/m<sup>3</sup>.再将  $C_1$  的最大值代入  $Q$  的表达式,此时依然有开方项中  $\frac{S_H^2}{2C}RT > 4C_1 h/D_H S$ ,相差约 5 倍,为了简化计算而得到  $P, C_1$  随时间变化的关系,则认为可近似把  $Q$  表达式的开方项在  $C_1 = 0$  附近展开为泰勒级数并取零阶项、一阶项与二阶项(零阶、一阶项为零),则可以把  $Q$  简化为

$$Q = \frac{4CC_1^2}{RTS_H^2}$$

代入关于  $C_1(t)$  的微分方程,则简化为一个简单的一阶微分方程:

$$\frac{dC_1(t)}{dt} = -\frac{4CC_1^2}{RTS_H^2V} + \frac{nI}{V}$$

再加上初始条件  $C_1(t=0) = 0$ ,有

$$C_1(t) = \frac{\sqrt{nIRT}S_H \operatorname{Tanh}\left(\frac{2\sqrt{nIC}t}{\sqrt{RT}S_HV}\right)}{2\sqrt{C}}$$

$p =$

$$\frac{(-D_HSS_HTR + \sqrt{D_HS(4C_1ChTR + D_HSS_H^2T^2R^2)})^2}{4C^2h^2}$$

两者随时间的变化取决于  $C_1(t)$  中的  $\operatorname{Tanh}\left(\frac{2\sqrt{nIC}t}{\sqrt{RT}S_HV}\right)$  渐进项,如果以  $C_1(t)$  达到平衡值 95% 的时间为平衡时间,则为

$$T = \frac{0.91589VS_H\sqrt{TR}}{\sqrt{CnI}}$$

代入数据约为 25 h.

## 5 结论

为了研究氢元素对质子管真空的影响,我们首先通过使用软件 FLUKA 模拟获得了质子与铅铋散裂反应的产物,并分析了其中的氢元素产量与质子能量、流强与靶几何的关系,然后根据氢在铅铋中的物理化学性质,再结合氢在不锈钢中的渗透速率及氢气在质子管中的传导情况,建立了描述氢浓度

及氢气压强的方程,根据物理过程的平衡条件给出浓度与压强的最大值,最后通过合理的简化给出两者对时间的依赖关系.与无窗靶相比<sup>[5]</sup>,尽管铅铋蒸汽与部分易挥发核素如钋、碲等无需考虑,但在本文选取的例子中仅渗透的氢气压强已然超过限值  $1 \times 10^{-5}$  Pa,因此对 ADS 的设计而言,尤其是高功率的 ADS 选用了更高能量或流强的质子时,如何保持有窗靶质子管内的真空环境是一件值得关注的问题.本工作对氢渗透对质子管真空的影响给出了趋势和数值上的结果,指出目前有窗靶设计上的不足之处,下一步的工作我们将考虑类似 MEGAPIE 双层有窗靶的设计<sup>[9]</sup>是否能够更好地解决氢同位素渗透的问题.

## 参考文献 (References)

- [1] Rubbia C, Rubio J A, Buono S, et al. Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier[R]. Geneva: CERN, 1995: CERN/AT/95-44 (ET).
- [2] Fokau A, Zhang Y, Ishida S, et al. A source efficient ADS for minor actinides burning[J]. Annals of Nuclear Energy, 2010, 37(4): 540-545.
- [3] Maes D. Design of the small-scale experimental ADS: MYRRHA[C]//Design of the small-scale experimental ADS: MYRRHA, Brussel, 1999.
- [4] Sordo F, Abánades A, Lafuente A, et al. Material selection for spallation neutron source windows: Application to PDS-XADS and XT-ADS prototypes [J]. Nuclear Engineering and Design, 2009, 239(11): 2 573-2 580.
- [5] Michelato P, Cavaliere E, Pagani C, et al. Vacuum interface analysis of a windowless spallation target for accelerator-driven systems [J]. Nuclear Science and Engineering, 2007, 157(1): 95-109.
- [6] Ferrari A, Sala P R, Fasso A, et al. FLUKA: A multi-particle transport code [R]. Geneva: CERN, 2005, CERN-2005-10.
- [7] 山常起,吕延晓. 氦及防氦渗透材料[M]. 北京:原子能出版社,2005.
- [8] 王佩璇,宋家树. 材料中的氦及氦渗透[M]. 北京:国防工业出版社,2002.
- [9] Michel-Sendis F, Chabod S, Letourneau A, et al. Neutronic performance of the MEGAPIE spallation target under high power proton beam [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials and Atoms, 2010, 268(13): 2 257-2 271.