

用于车载加速器中子源的边缘冷却靶结构研究

李晓博¹, 胡耀程¹, 范晶晶¹, 李竞伦¹, 乔朝蓬¹, 谢宇鹏¹,

马宝龙¹, 吕永盛¹, 刘蕴韬², 李玮², 王盛¹

(1. 西安交通大学核科学与技术学院, 710049, 西安;

2. 中国原子能科学研究院核技术综合研究所, 102413, 北京)

摘要: 为解决车载加速器中子源锂靶出射中子衰减的问题,提出了冷却水在侧面流动的边緣冷却靶结构,研究其辐照损伤、冷却效果和出射中子品质等性能。在靶结构中引入由钒制成的中间层,从氢原子扩散和辐照损伤的角度分析了质子对靶结构材料的影响;基于有限元软件 COMSOL Multiphysics,建立了不同质子束流轰击下的共轭传热模型来预测锂靶温度,并通过实验进行了验证;采用蒙特卡罗方法比较了靶结构的前冲方向中子产额,并对边緣冷却靶结构的感生放射性进行了评估。结果表明:钒中间层的引入可以有效促进氢原子的扩散和容纳过程,减轻氢脆对铜基板的影响;对于功率为 250 W、半径大于 0.75 cm 的高斯分布质子束斑,边緣冷却靶结构的最高温度可以控制在 140 °C 以下,冷却模拟结果相比于实验结果更为保守;边緣冷却靶结构在前冲方向的中子产额损失更小,具有 10% 左右的优势。边緣冷却靶结构在保证高效冷却的基础上,提高了前冲方向的中子产额,在车载加速器中子源上具有长寿且可靠运行的潜力,可为靶结构的相关研究提供参考。

关键词: 锂靶;车载加速器中子源;中子衰减;边緣冷却靶结构

中图分类号: O571.53 **文献标志码:** A

DOI: 10.7652/xjtubxb202306018 **文章编号:** 0253-987X(2023)06-0160-12

Edge-Cooling Target Structure for Transportable Accelerator-Driven Neutron Source

LI Xiaobo¹, HU Yaocheng¹, FAN Jingjing¹, LI Jinglun¹, QIAO Zhaopeng¹, XIE Yupeng¹,

MA Baolong¹, LÜ Yongsheng¹, LIU Yuntao², LI Wei², WANG Sheng¹

(1. School of Nuclear Science and Technology, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China;

2. Comprehensive Research Department of Nuclear Technology, China Institute Atom Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: To solve the problem of emitted neutron attenuation of lithium target of the transportable accelerator-driven neutron source (TANS), the edge-cooling target structure in which the cooling water circulates through a channel along the side of substrate, was proposed, and its performance was studied such as irradiation damage, cooling effect, and quality of emitted neutron. Vanadium interlayer was introduced in the target structure, and proton effect on target structural materials was tentatively analyzed from perspectives of hydrogen diffusion and irradiation damage. Based on the software using finite element method, COMSOL Multiphysics, conjugate heat transfer models under proton beams with different

收稿日期: 2023-01-15。 作者简介: 李晓博(1992—),男,博士生;王盛(通信作者),男,教授,博士生导师。 基金项目: 广东省基础与应用基础研究基金资助项目(2020B1515120035);中国核工业集团有限公司领创科研项目;日本理化学研究所 International Program Associate (IPA)项目。

网络出版时间: 2023-02-28

网络出版地址: <https://kns.cnki.net/kcms/detail//61.1069.T.20230227.1610.004.html>

distributions were built for the evaluation of lithium target temperature. The accuracy of simulation result was verified by cooling experiment. The neutron yields of target structures in forward direction were compared according to calculation using the Monte Carlo method. And the induced radioactivity of edge-cooling target structure was evaluated. The results showed that the vanadium interlayer could effectively promote the process of hydrogen diffusion and absorption, and reduce the influence of hydrogen embrittlement on copper substrate. The maximum temperature of lithium target under 250 W proton beam in Gaussian distribution with a radius greater than 0.75 cm was predicted to be below 140 °C for edge-cooling target structure, and simulation results were more conservative than the experimental results. The edge-cooling target structure had a less reduction on neutron yield in forward direction, and the advantage was about 10%. On the basis of efficient cooling, the edge-cooling target structure can increase the neutron yield in forward direction, and has the ability of long life and reliable operation on TANS. Meanwhile, this study can provide reference for the related research of target structure.

Keywords: lithium target; transportable accelerator-driven neutron source; neutron attenuation; edge-cooling target structure

道路、桥梁、大坝等基础设施主要由钢筋混凝土构成,它们在社会生产和居民生活中起着重要的作用。随着时间的推移,钢筋混凝土结构因腐蚀内部会出现裂缝、空洞,大部分基础设施都会面临老化和失效等问题。考虑到这些基础设施的数量和规模,以及检测和维护的必要性,对于这些室外建筑的无损检测需求日益旺盛^[1]。

中子是组成原子核的基本粒子之一,不带电、具有磁矩、穿透性强,能分辨轻元素、同位素和近邻元素,被认为非常适用于无损检测^[2-4]。鉴于中子的这些特性,近十年来中子无损检测技术得到了不断的发展^[5]。相关的研究工作,如水分转移^[6]、裂缝检测^[7]、内部成像^[8-9]、断层扫描^[10]和共振成像^[11]等,也证实了钢筋混凝土中子无损检测的可行性。世界各地小型加速器中子源的出现,例如 PKUNIFTY^[12]、CPHS^[13]、IUCF^[14]、HUNS^[15]、KUANS^[16]和 RANS^[1],可以为无损检测提供合适的中子束流。但是,现有的小型加速器中子源因为体积和质量的限制,仍然无法移动到户外实现对钢筋混凝土结构的现场无损检测。因此,在其基础上进一步小型化的车载加速器中子源(transportable accelerator-driven neutron source, TANS)是可行的解决方案。

从中子产生效率、设备的活化问题、伴随 γ 射线的产生以及加速器的适用性等角度出发,通过较低能量的质子与轻核反应产生中子是 TANS 的最佳选择^[14,17-19]。考虑车载加速器的体积和功率、屏蔽结构的承受程度以及整套设备的质量,本文以质子能量 2.5 MeV、最大流强 100 μ A 为例,对靶结构的相关研究工作进行阐述说明。

冷却水对靶产生的中子有明显的慢化作用,同时为了构建冷却水通道而添加的额外靶结构对出射中子造成的衰减也比较突出,边缘冷却靶结构可以一定程度上减少这些问题造成的影响^[20]。该结构由固态锂靶、钒制成的中间层和采用边缘冷却结构的铜基板组成。锂靶采用薄靶方案,其厚度恰好使入射质子的能量从 2.5 MeV 降低到反应阈值 1.88 MeV。通过有限元软件进行了氢原子扩散模拟,并使用分子动力学程序进行了辐照损伤计算,两方面评估了入射质子对靶结构造成的负面影响。质子束流与靶结构材料之间的相互作用被详细分析以获得入射质子能量到热量的转化效率。之后,基于热力学模拟得到了靶结构在受质子轰击时锂靶的最高温度,并通过实验验证了具有边缘冷却结构的铜基板的冷却效果,证明了模拟的准确性。利用蒙特卡罗软件 PHITS^[21]对该靶结构前冲方向的中子产额和能谱进行了计算,证实了其对出射中子更小的衰减作用。此外,还对靶结构在受到质子辐照时及辐照后的感生放射性进行了评价。

1 靶材料的选择

当入射质子束流能量较低时,铍和锂是两种主要的靶材料。因为出色的热力学性质,铍作为靶材料被广泛应用在小型加速器中子源中,例如 CPHS^[13]、LENS^[14]和 RANS^[1],但是在 6 MeV 以下的能量区间,锂的中子产额明显更高,如图 1 所示^[22]。基于蒙特卡罗粒子输运计算软件 PHITS、质子截面数据库 ENDF70PROT^[23]和中子截面数据

库 JENDL-4.0,对 中子产额、角分布和能谱进行模拟。结果显示,在 2.5 MeV、100 μ A 质子束流轰击下,锂和铍在 4 π 方向的总中子产额分别为 7.82×10^{10} 中子/s 和 4.91×10^9 中子/s,锂比铍高出近 15 倍。图 2 展示了锂靶和铍靶在各出射角度的中子产额(其中 0 $^\circ$ 为质子入射方向)。可以看出,与铍靶相比,锂靶不仅在每个对应角度都有更高的中子产额,同时其前冲方向的中子占比更高,前冲性更强。前冲方向 40 $^\circ$ ($\theta=20^\circ$)张角内锥形区域出射的中子能谱如图 3 所示。可以看出,锂靶的平均能量较铍靶更高,对钢筋混凝土结构的穿透性更好。综上可知,锂比铍更适合作 TANS 的靶材料。

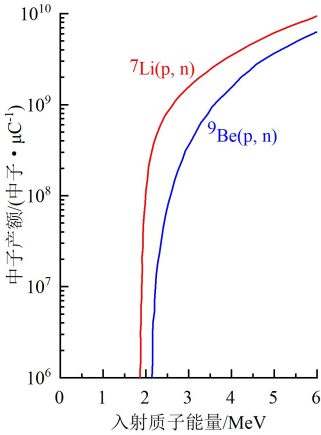


图 1 锂和铍的中子产额对比^[22]

Fig. 1 Neutron yield of lithium and beryllium

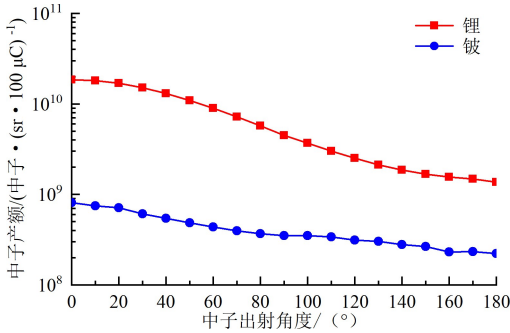


图 2 2.5 MeV 质子束流轰击下锂靶和铍靶不同出射角度对应的中子产额

Fig. 2 Differential neutron angular yield of lithium and beryllium target under 2.5 MeV proton beam

锂熔点较低(相关的热力学参数如表 1 所示),如果没有将质子束流沉积在锂靶中的热量及时传导

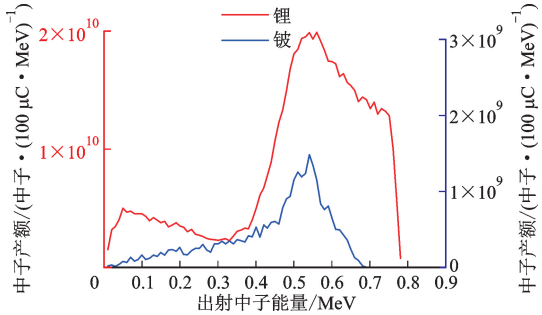


图 3 前冲方向 40 $^\circ$ 张角内锥形区域出射的中子能谱

Fig. 3 Spectra of generated neutron in forward solid angle with 40 $^\circ$ flare angle

出来,则锂靶极易熔毁。锂的化合物熔点更高,所以它们也被考虑过作为靶材料^[17]。锂与几种常见的锂的化合物的性质对比如表 2 所示。与纯锂相比,锂的化合物的熔点明显提高,这意味着同等情况下它们拥有更好的安全性。其中,氮化锂和氧化锂稳定性较好。但是,尽管锂的化合物有着更高的锂原子密度,它们对应的中子产额相较于纯锂却出现了明显的下降。这是由于其他元素的加入导致它们对质子的阻挡能力增强,产生中子的有效厚度变小造成的。

表 1 锂和铍的热力学特性

Table 1 Thermodynamic performance of beryllium and lithium				
材料	热导率/ (W·cm ⁻¹ ·K ⁻¹)	比热容/ (J·(g·K) ⁻¹)	熔点/ ℃	沸点/ ℃
铍	250.0	1.82	1 278.00	2 970
锂	84.7	3.60	180.54	1 342

使用液态锂靶可以避免固态锂靶熔化的问题。但是,液态锂靶的厚度并不容易实现精准控制。额外的加热装置和循环泵的引入会增加靶运行时所需的总功率,这加大了功率供给本就紧张的 TANS 的电力供应压力。锂蒸汽可能会降低设备的高压电气耐久性。同时,来自⁷Li(p,n)反应的放射性产物⁷Be 将遍布整个液态锂靶循环系统,这就需要更大的屏蔽覆盖面积,并且增加了辐射泄露的风险^[24-27],使用液态锂靶时也不易产生和维持较高的真空度^[28]。因此,如果能够实现高效的冷却,固态锂靶仍然是 TANS 的最佳选择。所以,本文选择锂作为 TANS 的靶材料,并以实现固态锂靶为目标展开具体讨论。

表 2 锂及其化合物的性质
Table 2 Properties of lithium and its compounds

性质	数值						
	Li	Li ₂ O	LiOH	Li ₃ N	LiH	Li ₂ CO ₃	Li ₂ C ₂
原子数	7	30	24	35	8	74	38
密度/(g·cm ⁻³)	0.534	2.013	1.46	1.3	0.82	2.11	1.65
原子密度/(原子数·cm ⁻³)	4.59×10 ²²	4.04×10 ²²	3.66×10 ²²	2.24×10 ²²	6.17×10 ²²	1.72×10 ²²	2.61×10 ²²
锂原子密度/(原子数·cm ⁻³)	4.59×10 ²²	8.08×10 ²²	3.66×10 ²²	6.72×10 ²²	6.17×10 ²²	3.44×10 ²²	5.22×10 ²²
熔点/℃	182	>1 700	471	845	689	618	>550
相对中子产额	1	0.49	0.28	0.6	0.7	0.2	0.37

2 靶结构

锂靶维持固态时其温度应控制在尽可能低的水平,铜由于其出色的导热性成为基板的首选材料^[29]。在传统的冷却方案中,冷却水一般直接从靶基板的背面流过,即背部冷却靶结构。在前冲方向中子的出射路径上,冷却水和额外的靶结构材料会造成中子慢化、数目衰减等影响^[30]。边缘冷却靶结构可以有效减少此类影响,在这种结构中,冷却水在位于靶基板侧面的通道中流动。为了抵抗靶两侧真空与大气之间的压力差,铜基板的中心区域厚度设置为 5 mm,在结构强度方面预留了较为充裕的空间。

在穿过锂靶之后,未参与反应的质子会入射到铜基板中。铜对氢较为敏感,这可能会引起铜基板出现氢脆乃至氢鼓泡,进而造成靶结构的冷却能力下降和靶材熔毁^[31]。由于钒容纳氢的能力较强^[32],同时中子活化性较低^[33],所以在锂靶和铜基板之间引入了一层由钒制成的、厚度较薄的中间层,用来阻止和容纳未反应的质子。边缘冷却靶结构的横截面和工作机理如图 4 所示。

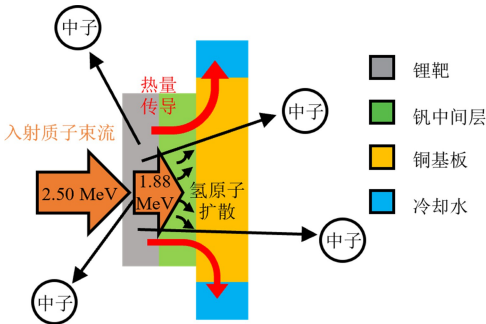


图 4 边缘冷却靶结构的横截面及工作机理
Fig. 4 Cross section and working mechanism of the edge-cooling target structure

2.1 锂靶的厚度

没有参与⁷Li(p, n)反应的质子由于与锂原子的相互作用而逐渐减速,最后停留在锂靶,质子的动能

主要以热量的形式沉积在锂靶内。在软件 Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM)^[34]中计算了不同入射能量质子在锂靶中的射程,结果如图 5 所示。可以看出,⁷Li(p, n)反应的阈能为 1.88 MeV,当入射质子能量为 2.5 MeV 时,产生中子的有效厚度为让质子能量从 2.5 MeV 减速到 1.88 MeV 的锂靶厚度,即 89.86 μm。

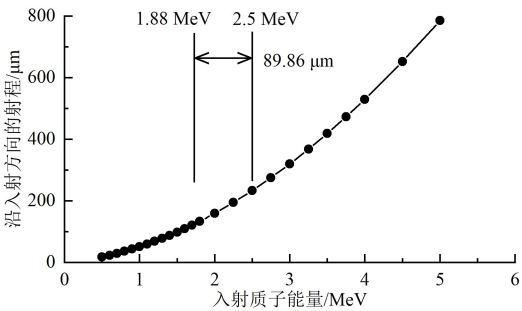


图 5 不同能量入射质子在锂靶中的射程
Fig. 5 Projected range of incident proton in lithium target

对于 2.5 MeV 的质子束,厚度超过 89.86 μm 的锂靶并不能产生更多的中子。相反的是,厚度增加会引起不必要的中子产额衰减、中子慢化和更多的 γ 射线。从图 6 所示的氢原子数占比分布来看,

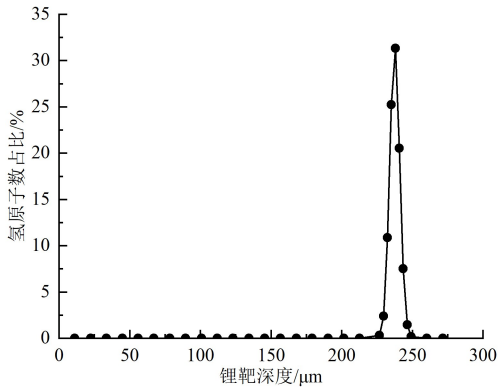


图 6 质子减速停止后在锂靶中的分布情况
Fig. 6 Hydrogen distribution in lithium target along the incident direction

氢原子主要沉积在锂靶中深度为 220~250 μm 的薄层中。图 7 为锂靶中质子沿入射方向的能量损失。可以看出,由于布拉格峰值效应,质子的绝大部分能量在射程末端释放,而局部过热的热量积累可能导致锂靶的熔化。基于以上考量,使用厚度为 89.86 μm 的薄锂靶是保证中子产额的同时避免上述问题的关键。

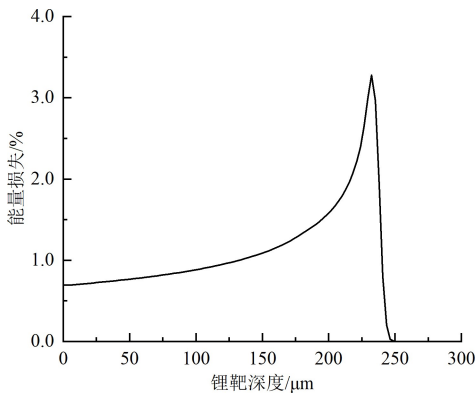


图 7 2.5 MeV 质子在锂靶中的能量损失

Fig. 7 Energy deposition of protons in lithium target along the incident direction

2.2 质子效应分析

从靶设计的角度来看,钒的厚度应该尽可能薄,以减少对出射中子的影响以及由于其较差的导热性而对热传导造成的阻碍。图 8 给出了厚度为 89.86 μm 的锂靶后面连着钒中间层的结构里的氢原子分布情况。SRIM 模拟的结果显示,质子穿过 89.86 μm 厚的锂后,在钒中的最大射程约为 25 μm 。考虑到为氢原子扩散和辐照损伤过程的预留量,选择厚度为 50、100、200 μm 的钒中间层进行后文分析。

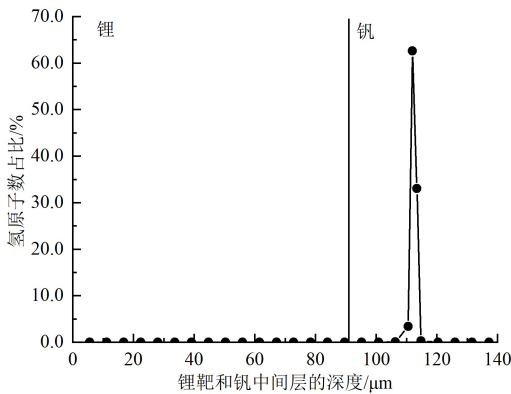


图 8 2.5 MeV 质子减速停止后在锂靶和钒中间层里的分布情况

Fig. 8 Hydrogen distribution in the lithium target followed with vanadium interlayer

2.2.1 氢原子扩散

参与 ${}^7\text{Li}(\text{p}, \text{n})$ 反应或停留在锂靶中的质子是极少的,绝大多数的质子最终会停留在钒中间层里。钒是一种储氢金属,可以容纳大量氢原子。相比之下,铜对氢较为敏感,在质子束的轰击下铜非常容易发生氢脆和鼓泡。在之前的相关研究中,提出了氢原子自由扩散的假设来计算整个靶结构中氢原子数占比的分布^[35]。沿着这种思路,通过有限元软件 COMSOL Multiphysics 中的稀物质传递模块,对氢原子在钒和铜中的自由扩散进行了模拟,模型如图 9 所示。其中,钒和铜的氢原子扩散系数分别设置为 $5 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ^[36]和 $2 \times 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ^[37]。当氢原子运动到铜基板与冷却水之间的接触面时,认为氢原子随着水的流动而被带出靶结构。当入射质子束流为 100 μA 时,达到平衡后,厚度为 50、100、200 μm 的钒层中的最大氢原子浓度分别为 264.59、132.42、66.29 $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ 。钒和铜的容氢极限分别为 350、140 $\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$ (根据物质的量比估算, $n(\text{H})/n(\text{V}) = 0.3\%$ ^[38], $n(\text{H})/n(\text{Cu}) = 0.1\%$)。随着钒中间层厚度的增加,最大氢原子浓度逐渐下降,因此钒的厚度最好大于 100 μm 。

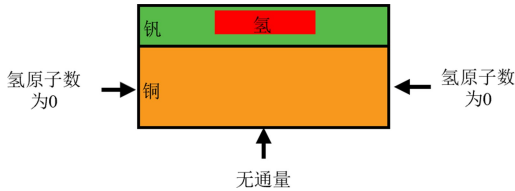


图 9 钒中间层和铜基板中氢原子扩散的模拟模型

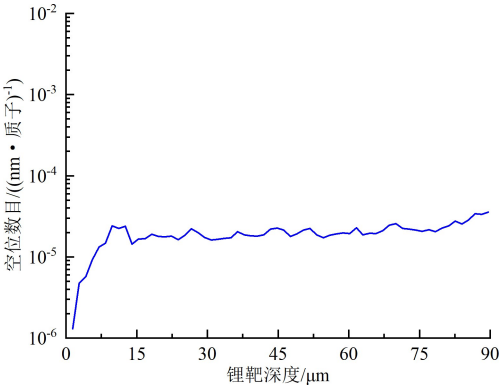
Fig. 9 Simulation model of hydrogen diffusion in vanadium interlayer and copper substrate

因为相关特征之间的差异,钒和铜之间存在着较高的势垒^[31],所以只有一小部分氢原子能够从钒中扩散到铜基板中,同时氢原子可以结合成氢气从钒表面逸出到真空中。实际上,钒能够容纳远远多于 0.3% 的氢原子^[39]。从氢原子扩散的角度来看,氢原子不会超过可容纳的极限值。钒和铜在实际中比在模拟中更安全。

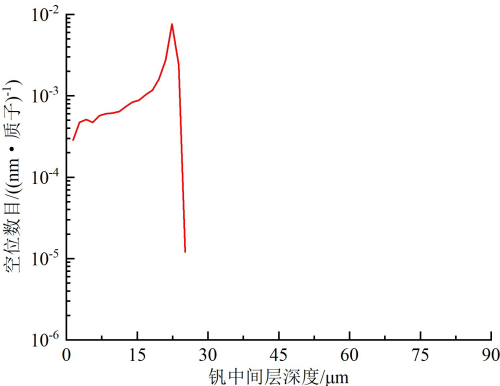
2.2.2 靶结构的辐照损伤

氢原子的扩散过程并不是靶结构在质子束流辐照下面临的唯一问题。在穿过锂靶之后,未反应的质子仍然具有 1.88 MeV 左右的能量。入射质子与钒原子之间会发生大量强烈的碰撞,在这个过程中,可以预见钒的晶格结构会被破坏,许多钒原子离开它们原本的位置,钒中间层里的辐照损伤因此产生^[40]。原子平均离位(displacement per atom, DPA)可以作为评估辐照损伤严重程度的标准^[41]。

对质子轰击过程通过 TRIM 软件进行了模拟,从而得到靶结构的辐照损伤,结果如图 10 所示。可以看出,DPA 的最大值 $7.64\times 10^{-3}(\text{nm}\cdot\text{质子})^{-1}$ 出现在钒中间层约 $23.5\text{ }\mu\text{m}$ 深度处。假设整个靶结构能承受的最大 DPA 为 20,考虑到离位钒原子 97% 的复位率,可以估计钒中间层的寿命约为 212.1 h。



(a) 锂靶中的 DPA



(b) 钒中间层中的 DPA

图 10 2.5 MeV 质子束轰击下锂靶和钒中间层的 DPA
Fig. 10 DPA of lithium target and vanadium interlayer under 2.5 MeV proton beam

对于氢原子扩散模拟和辐照损伤计算,两种方

法都是从单个角度来评价材料,还有许多其他因素会影响到质子辐照下材料的寿命,例如钒中的杂质^[42]、温度、压强^[32]等,在上面讨论的方法是能预估钒中间层工作寿命的可行方法,从而可以规划安排更换靶的合适时间。Asterlin 等^[31]进行的相关研究中的实验部分提到,钒在经历 1.2×10^{24} 质子 $\cdot\text{m}^{-2}$ 的束流辐照下仍然没有明显的起泡现象。该实验也支持了这样一种观点,即该靶结构能够在 $100\text{ }\mu\text{A}$ 质子束辐照下至少坚持 40 h 以上(对应半径为 0.5 cm 的均匀束斑)。钒中间层越厚,对质子辐照的耐受性就越好,但是同时也需要考虑整个靶结构的冷却效果。在接下来的热力学模拟部分,选择较为保守的 $200\text{ }\mu\text{m}$ 厚的钒中间层进行计算。

3 热力学模拟及实验验证

3.1 热量转化

从级联反应中获得足够能量的锂原子会脱离靶表面飞出,这种现象被称为溅射。溅射往往发生在靶材料的浅表面^[43],通过 TRIM 模拟了 2.5 MeV 质子对厚度为 100 nm 的锂的轰击过程。结果表明,一个质子发生溅射一个原子的概率为 0.000 025,每个溅射出原子携带的平均动能为 34.96 eV。对应到 $100\text{ }\mu\text{A}$ 的质子束流,溅射脱离靶表面的锂原子的损失率和带走的能量分别为 $4.39\times 10^{-13}\text{ cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $8.74\times 10^{-8}\text{ W}$ 。这与锂靶的体积和质子束流的功率相比非常小,几乎可以忽略不计^[44]。

在质子的输运过程中,核反应的发生也可能导致靶中沉积能量的波动。表 3 展示了质子和靶结构中所有材料可能发生的核反应^[45]。总体来说,这些反应会产生约 0.06 W 的额外热量。此外,每秒产生中子对应的动能约为 $4.08\times 10^{-3}\text{ J}$ 。这些因素的影响太小,不足以引起明显的变化。

表 3 质子与靶结构材料之间可能发生的核反应

Table 3 Possible nuclear reactions between protons and the target structural materials

反应	Q/keV	阈值/keV	反应次数	功率影响/W
$^6\text{Li}(\text{p},\gamma)^7\text{Be}$	5 606.85		2.85×10^3	2.56×10^{-9}
$^6\text{Li}(\text{p},\alpha)^3\text{He}$	4 019.72		4.18×10^9	2.69×10^{-3}
$^7\text{Li}(\text{p},\text{n})^7\text{Be}$	-1 644.24	1 879.13	2.84×10^{10}	-7.47×10^{-3}
$^7\text{Li}(\text{p},\gamma)^8\text{Be}$	17 254.41		4.73×10^6	1.31×10^{-5}
$^7\text{Li}(\text{p},\alpha)^4\text{He}$	17 346.24		2.37×10^{10}	6.58×10^{-2}
$^{51}\text{V}(\text{p},\text{n})^{51}\text{Cr}$	-1 534.95	1 565.05	4.39×10^9	-1.08×10^{-3}
$^{51}\text{V}(\text{p},\gamma)^{52}\text{Cr}$	10 503.37		3.61×10^7	6.07×10^{-5}

入射质子与靶原子之间的碰撞仍是能量沉积的主要方式,质子的能量通过电离作用传递给靶原子的核外电子或者以声子的形式传递给靶原子所在的晶格^[43]。通过 TRIM 软件中的“Detailed Calcula-

tion with full Damage Cascades”模式对质子能量的损失过程进行了模拟。从结果看,大约 99.9% 的入射质子能量通过离子和反冲核的电离作用损失,其余部分被离子或反冲原子以光子的形式带走。最终,这两部分能量以热的形式沉积在锂靶和钽中间层中。

基于上述分析可知,超过 99.99% 的质子能量转化为热量并沉积在靶结构中。因此,在之后的冷却模拟中,热源的功率被设定为 250 W,对应 2.5 MeV、100 μ A 的入射质子束流。

3.2 冷却模拟

质子束由离子源产生并被加速器加速后,轰击到靶表面的质子束斑的分布并不是均匀的,而是类高斯分布。这里将其按照高斯分布处理,质子束斑在靶表面的分布可以近似为二维高斯分布

表 4 不同束斑形状的参数
Table 4 Cases of different beam shapes

序号	入口水温/ $^{\circ}\text{C}$	束斑分布	σ/cm	束斑半径 /cm	峰值热流量密度/ $(\text{kW}\cdot\text{m}^{-2})$
例 1	20	均匀分布		0.50	3.17×10^3
例 2	20	高斯分布	0.250	0.75	$>5.01\times10^3$
例 3	20	高斯分布	0.167	0.50	$>1.12\times10^4$
例 4	15	均匀分布		0.50	3.17×10^3
例 5	15	高斯分布	0.250	0.75	$>5.01\times10^3$
例 6	15	高斯分布	0.167	0.50	$>1.12\times10^4$

图 11 展示了模拟中使用的靶结构和典型的温度分布结果。

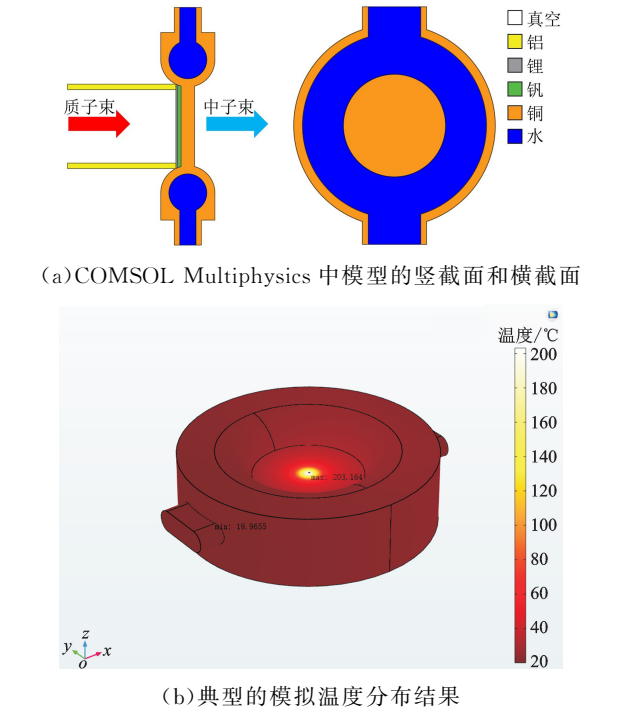


图 11 COMSOL Multiphysics 中构建的靶模型及典型计算结果
Fig. 11 Constructed model in COMSOL Multiphysics and typical result of calculation

$$f(r)=\frac{1}{2\pi\sigma^2}\exp\left(-\frac{r^2}{2\sigma^2}\right)$$

这是一个圆形的束斑,式中 r 是束斑上各点到束斑中心的距离, σ 是高斯分布的标准差。由于高斯分布没有明确的边界,所以设定囊括束斑功率 99% 的区域,即半径为 3 倍的 σ 内的圆形区域为束斑区域。冷却模拟基于 COMSOL Multiphysics 的共轭传热模块完成,冷却水的初始温度设定为 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 和 $15\text{ }^{\circ}\text{C}$ 。总功率为 250 W 的热通量以表 4 所示的不同束斑分布照射靶表面。相比于均匀分布,高斯分布使得热通量更加集中在中心区域,并且大幅提高了局部的功率密度,这对冷却来说是一个极大的挑战。冷却水在边缘冷却靶结构中流动时,雷诺数大于 4 000,所以使用湍流模型进行计算。

图 12 展示了不同冷却水流量下锂靶的最高温度。模拟结果表明,较高的入水流量和较低的入水温度有助于靶上最大温度的降低,但是影响最大的还是束斑的尺寸,束斑半径越大,靶的最大温度越低。对于高斯分布的质子束斑,当其半径大于 0.75 cm 时,边缘冷却靶结构的最高温度可以保持在 $140\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下,低于锂的熔点 ($180.5\text{ }^{\circ}\text{C}$)。

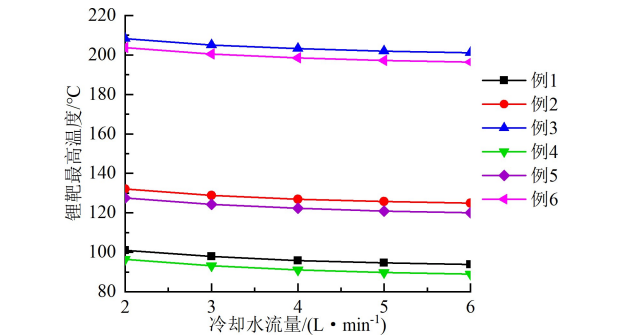


图 12 不同束斑分布下锂靶最高温度随流量的变化
Fig. 12 Maximal temperature of different beam distribution with flow rate

3.3 实验验证

为了验证冷却模拟结果的准确性,通过实验对图 13 所示的具有边缘冷却结构的铜基板进行了验证。一个等温方形热源被贴在了铜基板的前表面,其

温度分别设置在 40、50、60℃。4 个用于温度测量的热电偶贴在铜基板前后两侧,具体位置如图 14 所示(A 点位于铜基板背面的中心;两个 B 点处于对称位置,距热源 0.5 cm,取温度测量平均值作为最终结果;C 点位于冷却水出口侧距热源 1.5 cm 处)。冷却水温度为 20℃,流量分别设置为 6、10、14、18 L/min。

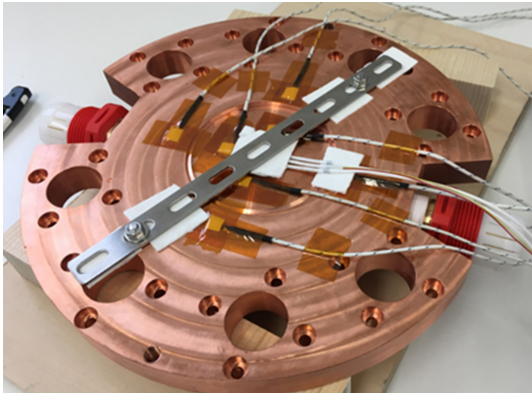
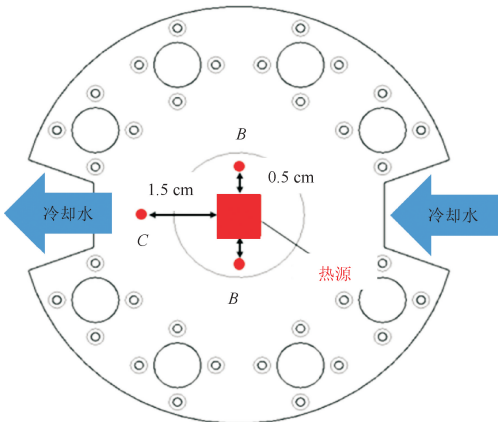
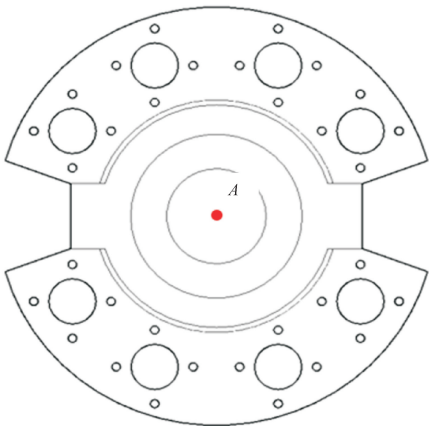


图 13 冷却实验中具有边缘冷却靶结构的铜基板
Fig. 13 Copper substrate with edge-cooling structure in cooling experiment



(a) 铜冷却基板正面热电偶的位置

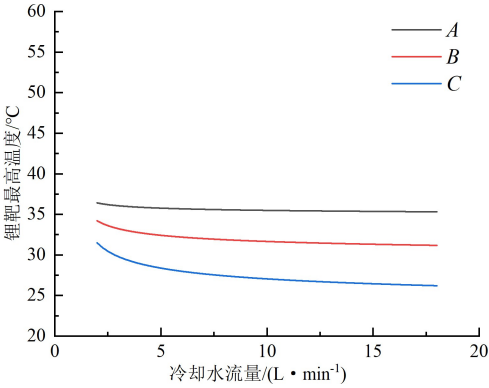


(b) 铜冷却基板背面热电偶的位置

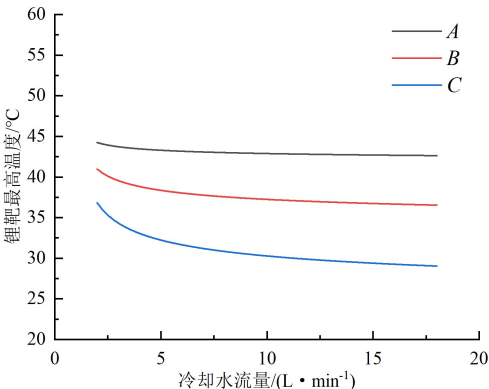
图 14 实验中测量温度的热电偶位置

Fig. 14 Thermocouple positions for temperature measurement in this experiment

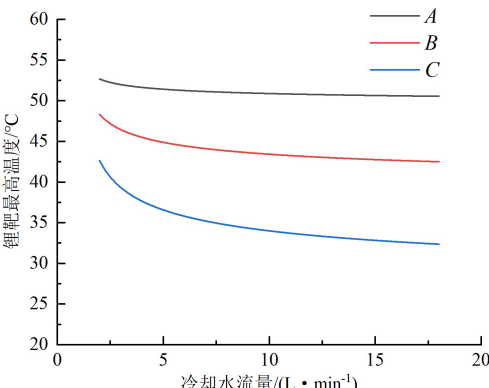
使用 COMSOL Multiphysics 进行相同初始条件下的模拟工作,基于流固耦合模块在靶结构表面添加了空气对流和对外热辐射的接口,以便与实验条件相符合,模拟结果如图 15 所示。



(a) 热源温度为 40℃ 时的拟合结果



(b) 热源温度为 50℃ 时的拟合结果



(c) 热源温度为 60℃ 时的拟合结果

图 15 基于 COMSOL Multiphysics 模拟的温度拟合结果
Fig. 15 Fitting result of temperature based on simulation via COMSOL Multiphysics

模拟结果与实验测量结果的对比如表 5 所示。可以发现,两者的整体趋势非常相似,且实验结果均低于对应的模拟结果 2.2~5.7℃。由此证明,上述靶结构的冷却模拟具有一定的意义和参考价值,且比实验结果更为保守。

表 5 模拟和实验结果温度对比

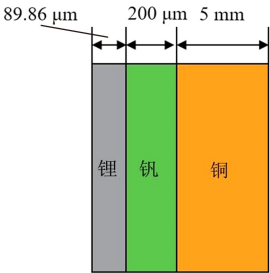
Table 5 Temperature at the measured points of simulation and experiment

热源温度/℃	流量/(L·min ⁻¹)	A 点温度/℃		B 点温度/℃		C 点温度/℃	
		模拟	实验	模拟	实验	模拟	实验
40	6	35.7	33.5	32.2	29.7	28.0	25.8
	10	35.5	33.0	31.7	29.1	27.0	25.1
	14	35.4	32.6	31.4	28.7	26.5	24.6
	18	35.3	32.5	31.2	28.6	26.2	24.4
50	6	43.2	40.4	38.0	34.8	31.6	28.5
	10	42.9	39.3	37.2	33.7	30.3	27.2
	14	42.7	38.5	36.8	33.1	29.5	26.5
	18	42.6	38.3	36.5	32.7	29.0	26.1
60	6	51.3	46.9	44.4	39.6	35.8	31.0
	10	50.9	45.7	43.4	38.3	34.0	29.6
	14	50.7	45.2	42.9	37.6	33.0	28.7
	18	50.5	44.8	42.5	37.1	32.4	28.2

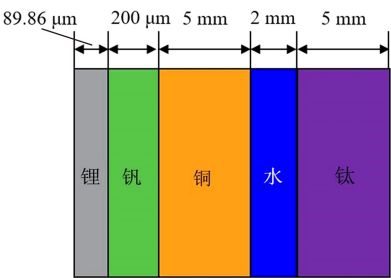
4 中子衰减和感生放射性

4.1 中子衰减

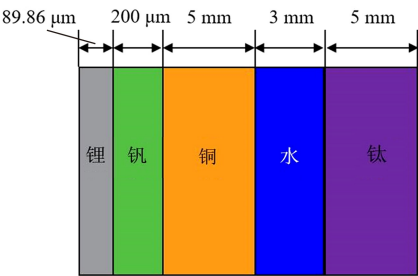
前冲方向的中子所占份额更多,并且是要应用到钢筋混凝土结构无损检测的部分,但是出射路径上铜和水的存在将不可避免地造成前冲方向中子的减速以及数目降低,边缘冷却靶结构可以一定程度上缓解这个问题。通过 PHITS 对不同靶结构前冲方向出射中子的能谱进行了模拟。图 16 为边缘冷却靶结构(组合 1)和背部冷却靶结构(组合 2~4)中心部分不同组合的示意图,图 17 为图 16 中靶结构不同组合对应的前冲方向张角为 40°的锥形区域内的中子能谱,表 6 是模拟结果的统计对比。可以看出,与组合 2~4 的背部冷却靶结构相对比,在全能量段的中子产额方面,边缘冷却靶结构(组合 1)至少有接近 9% 的优势。在能量相对较高的区间,如 400~780 keV 范围内,优势更为明显,扩大到超过 12%。这更加有利于钢筋混凝土的无损检测。



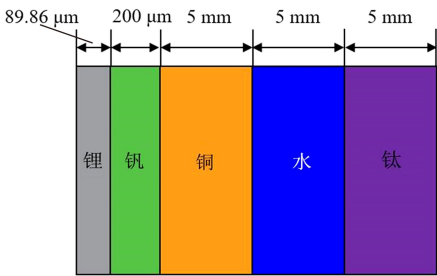
(a)组合 1,边缘冷却靶结构的中心部分



(b)组合 2,背部冷却靶结构的中心部分(水层厚度为 2 mm)



(c)组合 3,背部冷却靶结构的中心部分(水层厚度为 3 mm)



(d)组合 4,背部冷却靶结构的中心部分(水层厚度为 5 mm)

图 16 不同的靶结构组合

Fig. 16 Diagram of target structures

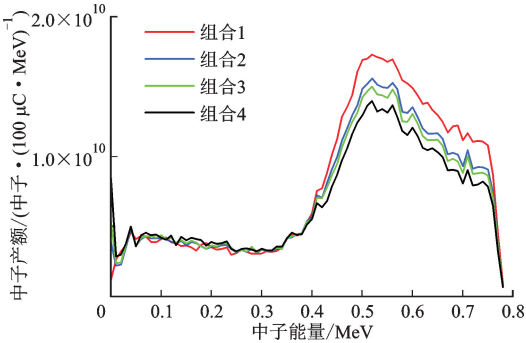


图 17 前冲方向张角为 40°的锥形区域内的中子能谱
Fig. 17 Spectra of generated neutron in forward solid angle with 40° flare angle

表 6 前冲方向张角为 40°的锥形区域内的出射中子统计
Table 6 Statistics of emitting neutron in forward direction

组合	中子产额/ (中子·100 μC ⁻¹)	相对 比例 %	400~780 keV 中子产额/ (中子·100 μC ⁻¹)	相对 比例 %
组合 1	6.31×10 ⁹	100.00	4.86×10 ⁹	100.00
组合 2	5.75×10 ⁹	91.13	4.27×10 ⁹	87.86
组合 3	5.63×10 ⁹	89.22	4.10×10 ⁹	84.36
组合 4	5.38×10 ⁹	85.26	3.78×10 ⁹	77.78

4.2 感生放射性

在质子束流辐照过程中,靶结构中会产生一系列反应产物。进行靶的更换或者对靶站设备实施保养维修时,靶结构的感生放射性可能会对工作人员或周围环境造成危害。因此,需要对靶结构在质子束流轰击过程中和停止辐照后的感生放射性情况进行了模拟和评价。对于图 11 中的边缘冷却结构,结合 PHITS 和 DCHAIN-SP^[46]评估了靶结构在质子辐射过程中引入的感生放射性。图 18 显示了用 100 μA 质子束流照射靶结构 100 h,然后放置 50 h,剂量率随时间的变化。在照射阶段,照射结束时总剂量率达到 64 μSv·m²·h⁻¹。在放置阶段,剂量率逐渐降低,50 h 后降至 36.6 μSv·m²·h⁻¹。⁷Li (p,n)反应产生的⁷Be 和⁶³Cu 通过中子俘获产生的⁶⁴Cu 是主要的反应产物,对周围剂量贡献最大。⁷Be 的半衰期较长,为 53.29 d,所以在照射和无照射的过程中,其衰变并不明显。⁶⁴Cu 的半衰期为 13.5 h,随着照射的进行,⁶⁴Cu 的升高趋势逐渐放缓,在 80 h 时基本达到放射性平衡,并在照射停止后迅速衰变。在照射阶段,80 h 之前⁶⁴Cu 贡献剂量率的主要部分,在这个过程中⁷Be 不断积累,并最终在

80 h 超过⁶⁴Cu。虽然实际使用时连续辐照的时间小于 100 h,但由于⁷Be 的半衰期较长,替换下来的靶应该密封在特定的屏蔽容器内。在放置一段时间剂量降下来之后,如果操作人员配备个人防护装备,并在短时间内完成靶替换,可以将操作剂量控制在非常低的水平。

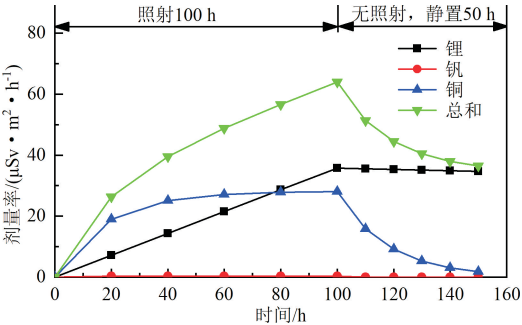


图 18 边缘冷却靶结构中使用的不同材料的剂量率
Fig. 18 Dose rate of different materials used in the edge-cooling target structure

5 结 论

- 本文对用于 TANS 的靶结构进行了研究和讨论,提出了边缘冷却靶结构,并得出以下结论。
- (1)与铍和锂的化合物等备选相比,纯金属锂具有明显的中子产额优势,且固态锂靶最适用于 TANS。
 - (2)氢原子扩散和辐照损伤的模拟和分析表明,钒中间层能够保护铜基板,并至少能够承受数十小时的质子束流辐照。
 - (3)基于有限元软件的冷却模拟结果表明,当 250 W 的质子束斑呈半径大于 0.75 cm 的高斯分布时,边缘冷却靶结构可以有效保持锂靶的固态。实验验证了模拟结果的可靠性,并且实际温度低于模拟温度。
 - (4)与传统的背部冷却靶结构相比,边缘冷却靶结构在前冲方向的中子产额优势明显,在全能量段的中子产额方面,边缘冷却靶结构至少有接近 9% 的优势,在 400~780 keV 范围则超过 12%,这更加有利于户外的钢筋混凝土结构的无损检测。通过感生放射性的计算,发现随着照射的进行,⁷Be 逐渐占据了剂量率贡献中的主体。给出了边缘冷却靶结构在照射和无照射阶段的剂量率,提供了靶更换过程中的屏蔽源项。
 - (5)边缘冷却靶结构具有可行性,适用于 TANS 并且具备长寿命安全可靠运行的能力。

参考文献:

- [1] OTAKE Y, SEKI Y, WAKABAYASHI Y, et al. Research and development of a non-destructive inspection technique with a compact neutron source [J]. *Journal of Disaster Research*, 2007, 12(3): 585-592.
- [2] BANHART J. *Advanced tomographic methods in materials research and engineering* [M]. Oxford, UK: Oxford University Press, 2008.
- [3] VONTOBEL P, LEHMANN E, CARLSON W D. Comparison of X-ray and neutron tomography investigations of geological materials [J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2005, 52(1): 338-341.
- [4] 陈红涛, 赵芳, 刘世龙, 等. 移动式中子发生器的研制 [J]. *中国原子能科学研究院年报*, 2013: 71.
CHEN Hongtao, ZHAO Fang, LIU Shilong, et al. Development of mobile neutron generator [J]. *Annual Report of China Institute of Atomic Energy*, 2013: 71.
- [5] STROBL M, MANKE I, KARDJILOV N, et al. Advances in neutron radiography and tomography [J]. *Journal of Physics: D Applied Physics*, 2009, 42(24): 243001.
- [6] EL ABD A, KICHANOV S E, TAMAN M, et al. Determination of moisture distributions in porous building bricks by neutron radiography [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2020, 156: 108970.
- [7] KANEMATSU M, MARUYAMA I, NOGUCHI T, et al. Quantification of water penetration into concrete through cracks by neutron radiography [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research: Section A Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2009, 605(1/2): 154-158.
- [8] IKEDA Y, OTAKE Y, MIZUTA M. Nondestructive measurement method to detect water/void inside slabs using compact neutron source by backscattered neutrons [J]. *Journal of Advanced Concrete Technology*, 2017, 15(10): 603-609.
- [9] IKEDA Y, OTAKE Y, MIZUTA M. Nondestructive measurement for water and voids in concrete with compact neutron source [J]. *Plasma and Fusion Research*, 2018, 13: 2406005.
- [10] ZHANG Peng, LIU Zhaolin, WANG Yu, et al. 3D neutron tomography of steel reinforcement corrosion in cement-based composites [J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 162: 561-565.
- [11] TIAN Binbin, JING Hantao, WANG Sheng, et al. Feasibility of nuclide-identified imaging based on the back-streaming white neutron beam at the China spallation neutron source [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2021, 92(5): 053303.
- [12] REN H T, PENG S X, LU P N, et al. Commissioning and operation of the deuteron injector for PKUNIFTY project [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(2): 02A706.
- [13] WANG X, XING Q, LOONG C K, et al. Delivery of 3 MeV proton and neutron beams at CPHS: a status report on accelerator and neutron activities at Tsinghua University [J]. *Physics Procedia*, 2014, 60: 186-192.
- [14] LAVELLE C M, BAXTER D V, BOGDANOV A, et al. Neutronic design and measured performance of the low energy neutron source (LENS) target moderator reflector assembly [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research: Section A Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2008, 587(2/3): 324-341.
- [15] FURUSAKA M, SATO H, KAMIYAMA T, et al. Activity of Hokkaido university neutron source, HUNS [J]. *Physics Procedia*, 2014, 60: 167-174.
- [16] WANG S, OTAKE Y, YAMAGATA Y, et al. Simulation and design of a simple and easy-to-use small-scale neutron source at Kyoto university [J]. *Physics Procedia*, 2014, 60: 310-319.
- [17] BAYANOV B, BELOV V, TASKAEV S. Neutron producing target for accelerator based neutron capture therapy [J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2006, 41(1): 460.
- [18] BAYANOV B, KASHAEVA E, MAKAROV A, et al. A neutron producing target for BINP accelerator-based neutron source [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2009, 67(S7/S8): S282-S284.
- [19] ALEJNIK V, BURDAKOV A, DAVYDENKO V, et al. BINP accelerator based epithermal neutron source [J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2011, 69(12): 1635-1638.
- [20] LI Xiaobo, IKEDA Y, KOBAYASHI T, et al. Study on the edge-cooling target structure for transportable accelerator-driven neutron source [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research: Section A Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2021, 1017: 165793.
- [21] SATO T, NIITA K, MATSUDA N, et al. Particle and heavy ion transport code system, PHITS, version 2.52 [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2013, 50(9): 913-923.
- [22] HAWKESWORTH M R. Neutron radiography: equipment and methods [J]. *Atomic Energy Review*, 1977, 15(2): 169-220.

- [23] CHADWICK M B, OBLOŽINSKÝ P, HERMAN M, et al. ENDF/B-VII. 0: next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology [J]. Nuclear Data Sheets, 2006, 107(12): 2931-3060.
- [24] FEINBERG G, PAUL M, ARENSHTAM A, et al. LiLiT: liquid-lithium target as an intense neutron source for nuclear astrophysics at the Soreq applied research accelerator facility [J]. Nuclear Physics: A, 2009, 827(1/2/3/4): 590c-592c.
- [25] PAUL M, ARENSHTAM A, HALFON S, et al. A high-power liquid-lithium target (LiLiT) for neutron production [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2015, 305(3): 783-786.
- [26] HALFON S, PAUL M, ARENSHTAM A, et al. High-power liquid-lithium target prototype for accelerator-based boron neutron capture therapy [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2011, 69(12): 1654-1656.
- [27] HALFON S, FEINBERG G, PAUL M, et al. High-flux neutron source based on a liquid-lithium target [J]. AIP Conference Proceedings, 2013, 1525(1): 511-515.
- [28] KNASTER J, GARIN P, MATSUMOTO H, et al. Overview of the IFMIF/EVEDA project [J]. Nuclear Fusion, 2017, 57(10): 102016.
- [29] TASKAEV S, BAYANOV B, BELOV V, et al. Development of lithium target for accelerator based neutron capture therapy [EB/OL]. [2022-12-01]. https://bnct.inp.nsk.su/publics/2006/10051_Taskaev.pdf.
- [30] STACEY W M. Nuclear reactor physics [M]. 2nd ed. Weinheim, Germany: Wiley-VCH, 2007: 29-31.
- [31] ASTRELIN V T, BURDAKOV A V, BYKOV P V, et al. Blistering of the selected materials irradiated by intense 200 keV proton beam [J]. Journal of Nuclear Materials, 2010, 396(1): 43-48.
- [32] LUO Jian, ZHOU Hongbo, LIU Yuelin, et al. Dissolution, diffusion and permeation behavior of hydrogen in vanadium: a first-principles investigation [J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 2011, 23(13): 135501.
- [33] YANG Yitao, ZHANG Chonghong, MENG Yancheng, et al. Nanoindentation on V-4Ti alloy irradiated by H and He ions [J]. Journal of Nuclear Materials, 2015, 459: 1-4.
- [34] ZIEGLER J F. SRIM & TRIM [EB/OL]. [2022-12-01]. <http://www.srim.org/>.
- [35] YAMAGATA Y, HIROTA K, JU J, et al. Development of a neutron generating target for compact neutron sources using low energy proton beams [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2015, 305(3): 787-794.
- [36] NISHIMURA C, KOMAKI M, AMANO M, et al. Hydrogen permeation characteristics of vanadium-nickel alloys [J]. Materials Transactions, 1991, 32(5): 501-507.
- [37] ISHIKAWA T, MCLELLAN R B. The diffusivity of hydrogen in copper at low temperatures [J]. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 1985, 46(4): 445-447.
- [38] YANO S, TADA M, MATSUI H. Hydrogen embrittlement of MFR candidate vanadium alloys [J]. Journal of Nuclear Materials, 1991, 179/180/181(Part 1): 779-782.
- [39] GUI Lijiang, LIU Yuelin, WANG Weitian, et al. First-principles investigation on vacancy trapping behaviors of hydrogen in vanadium [J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 442(S1/S2/S3): S688-S693.
- [40] HULTGREN P J, SCOTT T E. Proton-bombardment-induced blistering of vanadium [J]. Journal of Applied Physics, 1976, 47(10): 4394-4400.
- [41] EGELAND G W, VALDEZ J A, MALOY S A, et al. Heavy-ion irradiation defect accumulation in ZrN characterized by TEM, GIXRD, nanoindentation, and helium desorption [J]. Journal of Nuclear Materials, 2013, 435(1/2/3): 77-87.
- [42] HUA Juan, LIU Yuelin, ZHAO Mingwen, et al. Effects of Cr on H and He trapping and vacancy complexes in V in a fusion environment: a first-principles study [J]. The European Physical Journal: B, 2017, 90(6): 119.
- [43] ZIEGLER J F, ZIEGLER M D, BIRSACK J P. SRIM: the stopping and range of ions in matter (2010) [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research: Section B Beam Interactions with Materials and Atoms, 2010, 268(11/12): 1818-1823.
- [44] BI Gang, KANG Jun, WANG Linwang. High velocity proton collision with liquid lithium: a time dependent density functional theory study [J]. Physical Chemistry Chemical Physics, 2017, 19(13): 9053-9058.
- [45] SOPPERA N, DUPONT E, FLEMING M. JANIS book of proton-induced cross-sections [EB/OL]. [2022-12-01]. <http://www.oecd-neo.org/janis/book/book-proton>.
- [46] KAI T, MAEKAWA F, KOSAKO K, et al. DCHAIN-SP 2001: high energy particle induced radioactivity calculation code [EB/OL]. [2022-12-01]. <https://doi.org/10.11484/jaeri-data-code-2001-016>.

(编辑 陶晴)