

一般边界条件下球形压力容器钢壁中氚和氦-3 的浓度变化规律研究*

刘远东 尹益辉[†] 谭云

(中国工程物理研究院总体工程研究所, 绵阳 621900)

(2011 年 10 月 20 日收到; 2012 年 1 月 4 日收到修改稿)

为了认识储氚高压容器壁材料的力学性能变化及其导致的容器承载能力变化, 必须研究储氚期间, 容器壁中氚和氦-3 浓度的空间分布和随时间的变化. 针对容器外表面为一般传质边界条件和容器内部氚为范德瓦尔斯气体的情况, 同时考虑容器腔内和容器壁中氚的衰变和扩散, 建立求解储氚高压容器壁中氚和氦-3 浓度的解析理论模型, 导出了氚和氦-3 浓度的理论公式. 通过解析计算给出了器壁中氚和氦-3 浓度随外表面传质系数的变化曲线和浓度的时空变化曲线, 提出了氦-3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律, 即处于开放空间的储氚球形高压容器, 器壁中氦-3 的浓度呈内高外低的分布, 时间越长, 浓度沿径向的梯度越大, 在时间足够长时, 各处浓度逼近时间无限长时的最终值, 也就是各处的最大值, 内表面处的最大值是该处氚初始时刻浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍, 这里 β_1 和 β_2 为与氚的范德瓦尔斯常数相关的参数. 研究结果为储氚高压容器的强度安全性评估提供了前提.

关键词: 钢制球形压力容器, 氚衰变, 氦-3, 扩散

PACS: 66.30.-h

1 引言

储氚高压容器腔内的氚会不断衰变产生氦-3, 同时不断向容器壁中渗透. 渗透到容器壁中的氚又继续衰变产生氦-3, 同时在壁材料中扩散, 直至渗透到容器外. 在容器腔内的氦-3 与剩余的氚形成混合气体, 产生混合气体压力. 在容器壁中的氦-3 在材料中就地滞留. 材料中的氚和氦-3 会引起材料力学性能变化, 进而导致容器承载能力改变. 为了认识容器壁材料的力学性能变化及其导致的容器承载能力变化, 首先必须认识储氚期间, 容器壁中氚和氦-3 浓度的空间分布和随时间的变化情况. 对该问题, 文献 [1—5] 进行了实验测试研究, 文献 [6—12] 进行了不同程度近似的理论研究. 实验研究不易获得规律性认识, 也不易获得过长储存时期后的结果. 文献 [6—9] 的解析理论研究中引入的近似假设导致了对规律性认识缺乏应有的深度和精度. 文献 [10] 和 [11] 采用分子动力学方法研究了

金属钍中氦团簇的融合行为和氦泡压力, 得到了有意义的结果, 但没有涉及到钍中氦的分布问题. 文献 [12] 去掉文献 [6—9] 中采用的一些假设, 同时考虑容器腔内和容器壁中氚的衰变和扩散, 针对氚采用理想气体模型描述和容器外表面为第一类传质边界条件的情况, 建立了求解储氚高压容器壁中氚和氦-3 浓度的解析理论模型, 给出了氚和氦-3 浓度的理论公式, 并通过解析计算给出了氚和氦-3 浓度的分布规律. 本文在文献 [12] 的基础上, 针对氚为更加符合实际的范德瓦尔斯气体和容器外表面为更具一般性的第三类传质边界条件的情况, 建立相应的解析理论模型, 重新导出了容器壁中氚和氦-3 浓度的理论公式, 计算得到了氚和氦-3 浓度随外表面传质系数的变化规律和随时间与空间位置的变化规律, 将理想气体条件下的氦-3 浓度的 2 倍定律发展为范德瓦尔斯气体条件下的氦-3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律. 本文的理论模型和有关规律性认识与文献 [12] 相比更加符合实际, 为储氚高压容器壁材料的力学性能分析和容器承载能力评估

* 中国工程物理研究院科学技术发展基金 (批准号: 2008A0301010) 资助的课题.

[†] E-mail: yinyh@caep.ac.cn

提供了更好的前提.

2 理论模型与计算公式

2.1 氙的衰变与扩散及器壁中氙的浓度公式

考虑氙的衰变, 由 Fick 定律, 可得到钢制球形压力容器壁中氙的扩散方程为^[13]

$$\frac{\partial c_T}{\partial t} = D_T \left(\frac{\partial^2 c_T}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c_T}{\partial r} \right) - \lambda c_T, \quad (1)$$

式中 c_T 是氙的浓度, 本文取为质量浓度; t 是时间变量; r 是球坐标变量; D_T 是氙的扩散系数, $D_T = D_{0T} \exp(-Q_D/RT)$, D_{0T} 是扩散常数, Q_D 是扩散激活能, R 是普适气体常数, 其值为 $8.31451 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, T 是绝对温度; λ 是氙的衰变常数, $\lambda = \ln 2 / \tau_{1/2}$, 而 $\tau_{1/2}$ 是氙的半衰期, 其值为 4501 天.

假定初始时刻容器壁中氙的浓度为零, 则与式 (1) 相应的初始条件为

$$c_T(r, r \neq R_i, t = 0) = 0, \quad (2)$$

式中 R_i 是容器内径.

根据 Sieverts 定律, 容器内表面处氙的浓度与容器腔内氙分压的平方根成正比^[6,7], 满足关系

$$c_T(r = R_i, t) = S_{0T} \sqrt{P_T} \exp(-\Delta H_T/RT), \quad (3)$$

式中 S_{0T} 是氙的溶解度常数; P_T 为容器腔内氙引起的压强; ΔH_T 是溶解热.

考虑容器外表面满足一般形式的传质边界条件, 有

$$-D_T \frac{\partial c_T}{\partial r} \Big|_{r=R_o} = \eta(c_T|_{r=R_o} - c_{Tf}), \quad (4)$$

式中 R_o 是容器外径; η 是对流传质系数; c_{Tf} 是与器壁外表面接触的空气氙的浓度.

引入无量纲变量

$$\begin{aligned} \bar{r} &= r/h, \quad \bar{r}_i = R_i/h, \quad \bar{r}_o = R_o/h, \\ \bar{P}_T &= P_T/P_{T0}, \quad \bar{c}_T = c_T/c_{T0}, \quad \bar{c}_{Tf} = c_{Tf}/c_{T0}, \\ \bar{t} &= t D_{0T} \exp(-Q_D/RT)/h^2, \\ \bar{\tau}_{1/2} &= \tau_{1/2} D_{0T} \exp(-Q_D/RT)/h^2, \\ \bar{\eta} &= \eta h/[D_{0T} \exp(-Q_D/RT)] \end{aligned}$$

和

$$\bar{\lambda} = \lambda h^2/[D_{0T} \exp(-Q_D/RT)],$$

这里 $h = R_o - R_i$, P_{T0} 是初始时刻容器腔内的氙压强, $c_{T0} = S_{0T} \exp(-\Delta H_T/RT) \sqrt{P_{T0}}$ 是初始时刻容器内表面的氙浓度, 首先将 (1)–(4) 式化为无量纲形式, 然后再令 $\bar{u} = \bar{c}_T e^{\bar{\lambda} \bar{t}} + e^{\bar{\lambda} \bar{t}} \sqrt{\bar{P}_T} \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_o) - e^{\bar{\lambda} \bar{t}} [(\sqrt{\bar{P}_T} + \bar{\eta} \bar{c}_{Tf})/(1 + \bar{\eta})] \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i)$, 进一步将它们化为以变量 $\bar{u}$ 表示的形式, 得到

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{t}} &= \frac{\partial^2 \bar{u}}{\partial \bar{r}^2} \\ &- \frac{\bar{\lambda} \sqrt{\bar{P}_T} + (\sqrt{\bar{P}_T})' + \bar{\lambda} \bar{\eta} \bar{c}_{Tf} + \bar{\eta}(\bar{c}_{Tf})'}{1 + \bar{\eta}} \\ &\times \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i) e^{\bar{\lambda} \bar{t}} \\ &+ [\bar{\lambda} \sqrt{\bar{P}_T} + (\sqrt{\bar{P}_T})'] \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_o) e^{\bar{\lambda} \bar{t}} \\ &+ \frac{2(\sqrt{\bar{P}_T} + \bar{\eta} \bar{c}_{Tf})}{1 + \bar{\eta}} e^{\bar{\lambda} \bar{t}} - 2\sqrt{\bar{P}_T} e^{\bar{\lambda} \bar{t}}, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\bar{u}(\bar{r}, \bar{t} = 0) = \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_o) - \frac{1 + \bar{\eta} \bar{c}_{Tf}}{1 + \bar{\eta}} \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i),$$

$$\frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{r}}(\bar{r} = \bar{r}_o, \bar{t}) + \left(\bar{\eta} - \frac{1}{\bar{r}_o} \right) \bar{u}(\bar{r} = \bar{r}_o, \bar{t}) = 0,$$

$$\bar{u}(\bar{r} = \bar{r}_i, \bar{t}) = 0.$$

(5) 式中含有容器腔内氙引起的压强 $\bar{P}_T = P_T/P_{T0}$, 要求解 (5) 式, 必须先确定 $\bar{P}_T$, 其方法如下.

首先将文献 [12] 所给器壁中的氙浓度公式代入氙的扩散通量公式 $J = -D_T \partial c_T / \partial r$ 进行积分计算, 得到在足够长的储存时期内, 容器腔内的氙在相同时间内的渗透量与衰变量之比为 10^{-7} 量级. 即就容器腔内氙总量的变化而言, 可忽略氙的渗透而只考虑氙的衰变. 在此情况下, 根据氙的衰变规律, 可得到任意时刻容器腔内氙的摩尔体积近似为 $V_{Tm} = V_{Tm0} e^{\lambda t}$, 这里 V_{Tm0} 是初始时刻容器腔内氙的摩尔体积.

然后将 $V_{Tm} = V_{Tm0} e^{\lambda t}$ 代入氙的范德瓦尔斯方程, 就得到 P_T 的表达式, 再将其无量纲化, 就得到 $\bar{P}_T$ 的表达式为

$$\bar{P}_T = \frac{1}{\alpha_1 e^{\bar{\lambda} \bar{t}} - \alpha_2} + \frac{\alpha_1 - \alpha_2 - 1}{(\alpha_1 - \alpha_2) e^{2\bar{\lambda} \bar{t}}}, \quad (6)$$

其中

$$\begin{aligned} \alpha_1 &= \frac{V_{Tm0}}{V_{Tm0} - b_T} - \frac{a_T}{RTV_{Tm0}}, \\ \alpha_2 &= \frac{b_T}{V_{Tm0} - b_T} - \frac{a_T b_T}{RTV_{Tm0}^2}, \end{aligned}$$

而 a_T 和 b_T 是氙的范德瓦尔斯常数.

最后, 为了便于数学推导, 将 (6) 式用如下近似函数代替, 即近似取

$$\bar{P}_T = (\beta_1 / e^{\bar{\lambda} \bar{t}/2} + \beta_2 / e^{2\bar{\lambda} \bar{t}})^2, \quad (7)$$

式中参数 β_1 和 β_2 由数值拟合得到, 它们与氙的范德瓦尔斯常数有关. 至此就确定了 $\bar{P}_T$.

这里, 作为验证用 (7) 式逼近 (6) 式的一个算例, 文献 [14], 取氙的范德瓦尔斯常数 $a_T = 2.47 \times 10^{10} \text{ mm}^6 \cdot \text{MPa} \cdot \text{mol}^{-2}$, $b_T = 2.66 \times 10^4 \text{ mm}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, 并设 $P_{T0} = 30 \text{ MPa}$, $T = 300 \text{ K}$ 和 $V_{Tm0} = 1.03848 \times 10^5 \text{ mm}^3/\text{mol}$, 求得当拟合参数 $\beta_1 = 0.894790$, $\beta_2 = 0.111518$ 时, 在任意长储存期内由 (7) 式计算的 $\bar{P}_T$ 与 (6) 式计算的 $\bar{P}_T$ 的最大相对误差都小于 1.266%, 且在约 15 个半衰期后就稳定到 $3.6 \times 10^{-4}\%$. 这说明用 (7) 式逼近 (6) 式具有足够的精度. 显然, 当 $\alpha_1 = 1$, $\alpha_2 = 0$ 或 $\beta_1 = 1$, $\beta_2 = 0$ 时, (6) 式和 (7) 式就都退化到文献 [12] 中所讨论的氙为理想气体时的情况.

另外, 根据实测及理论计算, 参数 c_{Tf} 在任何时刻都极小, 可近似取 $c_{Tf} \equiv 0$ 和 $\bar{c}_{Tf} \equiv 0$.

然后将式 (7) 和 $\bar{c}_{Tf} \equiv 0$ 代入式 (5), 就得到关于 $\bar{u}(\bar{r}, \bar{t})$ 的控制方程

$$\begin{aligned} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{t}} &= \frac{\partial^2 \bar{u}}{\partial \bar{r}^2} - \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \left(\beta_1 \frac{\bar{\lambda}}{2} e^{\bar{\lambda}\bar{t}/2} - \beta_2 \bar{\lambda} e^{-\bar{\lambda}\bar{t}} \right) \\ &\quad \times \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i) + \left(\beta_1 \frac{\bar{\lambda}}{2} e^{\bar{\lambda}\bar{t}/2} - \beta_2 \bar{\lambda} e^{-\bar{\lambda}\bar{t}} \right) \\ &\quad \times \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_0) - \frac{2\bar{\eta}}{1 + \bar{\eta}} (\beta_1 e^{\bar{\lambda}\bar{t}/2} + \beta_2 e^{-\bar{\lambda}\bar{t}}), \\ \bar{u}(\bar{r}, \bar{r} \neq \bar{r}_i, \bar{t} = 0) &= \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_0) - \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i), \\ \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{r}}(\bar{r} = \bar{r}_0, \bar{t}) + \left(\bar{\eta} - \frac{1}{\bar{r}_0} \right) \bar{u}(\bar{r} = \bar{r}_0, \bar{t}) &= 0, \\ \bar{u}(\bar{r} = \bar{r}_i, \bar{t}) &= 0. \end{aligned} \quad (8)$$

求解 (8) 式, 首先得到 $\bar{u}(\bar{r}, \bar{t})$. 然后将 $\bar{u}(\bar{r}, \bar{t})$ 还原为 $\bar{c}_T$, 就得到器壁中氙的浓度公式为

$$\begin{aligned} \bar{c}_T(\bar{r}, \bar{t}) &= \frac{1}{\bar{r}} \sum_{n=1}^{\infty} A_n(\bar{t}) e^{-(\bar{\lambda} + \xi_n^2)\bar{t}} \psi_n(\bar{r}) \\ &\quad + \sqrt{\bar{P}_T}(\bar{r} - \bar{r}_0) + \frac{\sqrt{\bar{P}_T}}{1 + \bar{\eta}}(\bar{r} - \bar{r}_i), \end{aligned} \quad (9)$$

其中 $\xi_n (n = 1, 2, \dots, \infty)$ 是由特征方程

$$\begin{aligned} \sin \xi \bar{r}_i \left[\left(\bar{\eta} - \frac{1}{\bar{r}_0} \right) \cos \xi \bar{r}_0 - \xi \sin \xi \bar{r}_0 \right] \\ - \cos \xi \bar{r}_i \left[\xi \cos \xi \bar{r}_0 + \left(\bar{\eta} - \frac{1}{\bar{r}_0} \right) \sin \xi \bar{r}_0 \right] = 0 \end{aligned} \quad (10)$$

确定的特征根, 而

$$\begin{aligned} A_n(\bar{t}) &= \left[\left(\frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \right) \frac{\bar{\lambda}}{2} - \frac{F_{4n}}{F_{1n}} \frac{2\bar{\eta}}{1 + \bar{\eta}} \right] \\ &\quad \times \frac{\beta_1}{\bar{\lambda}/2 + \xi_n^2} [e^{(\bar{\lambda}/2 + \xi_n^2)\bar{t}} - 1] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &- \left[\left(\frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \right) \bar{\lambda} + \frac{F_{4n}}{F_{1n}} \frac{2\bar{\eta}}{1 + \bar{\eta}} \right] \\ &\times \frac{\beta_2}{\xi_n^2 - \bar{\lambda}} [e^{(\xi_n^2 - \bar{\lambda})\bar{t}} - 1] + \frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}}, \\ \psi_n(\bar{r}) &= \sin \xi_n \bar{r} - \text{tg} \xi_n \bar{r}_i \cos \xi_n \bar{r}. \end{aligned}$$

这里

$$\begin{aligned} F_{1n} &= \int_{\bar{r}_i}^{\bar{r}_0} [\psi_n(\bar{r})]^2 d\bar{r}, \\ F_{2n} &= \int_{\bar{r}_i}^{\bar{r}_0} \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_0) \psi_n(\bar{r}) d\bar{r}, \\ F_{3n} &= \int_{\bar{r}_i}^{\bar{r}_0} \bar{r}(\bar{r} - \bar{r}_i) \psi_n(\bar{r}) d\bar{r}, \\ F_{4n} &= \int_{\bar{r}_i}^{\bar{r}_0} \psi_n(\bar{r}) d\bar{r}, \end{aligned}$$

它们可通过定积分具体表示为 n 的显式函数.

2.2 容器壁中氦-3 的浓度公式

常温条件下, 氦-3 不易溶于固体材料中, 因此在容器腔内的氦-3 不会渗透进入容器壁中, 而在容器壁中的氦-3 会就地滞留. 于是, 与氙的扩散方程 (1) 相应, 求解器壁材料中氦-3 的相对含量的控制方程为

$$\frac{dc_{\text{He}}}{dt} = \lambda c_T, \quad (11)$$

这里 c_{He} 是器壁材料中氦-3 的相对含量, 本文仍然称其为浓度.

与 (11) 式相应的初始条件为 $c_{\text{He}}(0) = 0$.

引入 $\bar{c}_{\text{He}} = c_{\text{He}}/c_{T0}$, 将 (11) 式化为无量纲形式, 有

$$\frac{d\bar{c}_{\text{He}}}{d\bar{t}} = \bar{\lambda} \bar{c}_T. \quad (12)$$

利用初始条件 $\bar{c}_{\text{He}}(0) = 0$ 求解 (12) 式, 得到器壁中氦-3 的浓度为

$$\begin{aligned} \bar{c}_{\text{He}} &= \frac{\bar{\lambda}}{\bar{r}} \sum_{n=1}^{\infty} G_n(\bar{t}) \psi_n(\bar{r}) \\ &\quad + \left[\frac{1}{1 + \bar{\eta}}(\bar{r} - \bar{r}_i) + (\bar{r}_0 - \bar{r}) \right] \\ &\quad \times \left(2\beta_1(1 - e^{-\bar{\lambda}\bar{t}/2}) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\beta_2}{2}(1 - e^{-2\bar{\lambda}\bar{t}}) \right), \end{aligned} \quad (13)$$

式中

$$G_n(\bar{t}) = \left[\left(\frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \right) \frac{\bar{\lambda}}{2} - \frac{F_{4n}}{F_{1n}} \frac{2\bar{\eta}}{1 + \bar{\eta}} \right]$$

$$\begin{aligned}
 & \times \frac{\beta_1}{\bar{\lambda}/2 + \xi_n^2} \left[-\frac{2}{\bar{\lambda}} (e^{-\bar{\lambda}\bar{t}/2} - 1) \right. \\
 & \left. + \frac{1}{\bar{\lambda} + \xi_n^2} [e^{-(\bar{\lambda} + \xi_n^2)\bar{t}} - 1] \right] \\
 & - \left[\left(\frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \right) \bar{\lambda} + \frac{F_{4n}}{F_{1n}} \frac{2\bar{\eta}}{1 + \bar{\eta}} \right] \\
 & \times \frac{\beta_2}{\xi_n^2 - \bar{\lambda}} \left[-\frac{1}{2\bar{\lambda}} (e^{-2\bar{\lambda}\bar{t}} - 1) \right. \\
 & \left. + \frac{1}{\bar{\lambda} + \xi_n^2} [e^{-(\bar{\lambda} + \xi_n^2)\bar{t}} - 1] \right] \\
 & - \left(\frac{F_{2n}}{F_{1n}} - \frac{F_{3n}}{F_{1n}} \frac{1}{1 + \bar{\eta}} \right) \\
 & \times \frac{1}{\bar{\lambda} + \xi_n^2} [e^{-(\bar{\lambda} + \xi_n^2)\bar{t}} - 1].
 \end{aligned}$$

由 (13) 式可求得在时间无限长时, 器壁中各点处的氦-3 浓度的最终值为整个储存过程的各自最大值, 且内表面处的最终值为整个壁上的最大值, 其无量纲值为 $\bar{c}_{\text{He}}(\bar{r}_i, \bar{t} = \infty) = 2\beta_1 + \beta_2/2$. 即内表面处的氦-3 浓度最终值为该处初始时刻氦浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍. 这一结果与文献 [12] 针对氦采用理想气体模型描述的情况得到的“2 倍”略有不同.

3 理论计算与浓度变化规律

3.1 基于解析理论计算的器壁中氦和氦-3 浓度的时空变化规律及两个气体模型的结果比较

针对外表面氦浓度保持为零即 $\bar{\eta} = \infty$ 的情况, 图 1(a) 给出了储存无限长时间后容器壁中氦-3 浓度沿径向的分布, 图 1(b) 给出了容器内表面上氦和氦-3 浓度随储存时间的变化. 可见, 考虑氦为理想气体和范德瓦尔斯气体所得到的氦和氦-3 浓度的时空分布规律是一致的, 只是在数值上范德瓦尔斯气体的计算结果比理想气体的略小. 而对器壁中氦和氦-3 浓度的时空分布规律, 文献 [12] 已做了分析,

3.2 氦和氦-3 浓度随容器外表面对流传质系数 $\bar{\eta}$ 的变化规律

图 2 给出了在储存无限长时间后在 $\bar{\eta} = 0$ 和 $\bar{\eta} = \infty$ 两种极端对流传质边界条件下容器壁中氦-3 浓度的径向分布. 其中为了突出显示 $\bar{\eta}$ 的影响, 给出了图 2(a) 的局部放大图, 即图 2(b). 由图 2

可见, $\bar{\eta}$ 对越靠近外表面位置的氦-3 浓度的影响越大, 对内表面处的无影响, 对外表面处的影响最大. 外表面处氦-3 的无量纲浓度由 $\bar{\eta} = \infty$ 时的 0 变为 $\bar{\eta} = 0$ 时的 0.062. 该数值与内表面处的相应值即其最大值 1.845 相比是很小的, 这说明, 总的来说, $\bar{\eta}$ 的影响是很小的. 这种表面对流传质系数对氦-3 浓度影响很小的认识与文献 [15] 所得的认识是一致的.

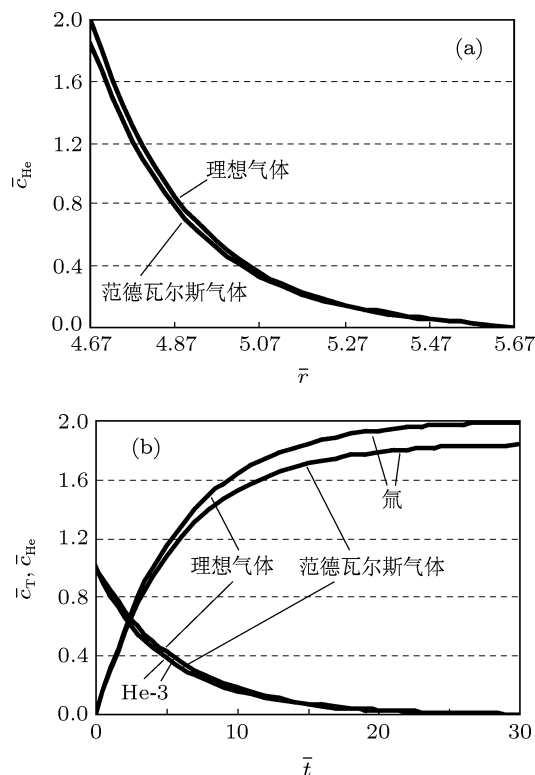


图 1 $\bar{\eta} = \infty$ 时氦和氦-3 浓度的时空分布 (a) 沿径向的分布; (b) 随储存时间的变化

图 3 给出了在 $\bar{\eta} = 0$ 条件下容器外表面上氦和氦-3 的浓度随储存时间的变化. 与图 3 相应, 在 $\bar{\eta} = \infty$ 条件下容器外表面上氦和氦-3 的浓度不随储存时间变化, 一直保持为零. 图 3 表明, 由于 $\bar{\eta}$ 的影响, 容器外表面处氦和氦-3 的浓度不再保持为零, 而是随时间非线性变化. 其中, 氦的浓度先由零变大, 在一定时间以后再逐渐变小, 直到最后又变为零. 氦-3 的浓度由初始的零值逐渐增大, 在一定时间以后趋近于其最大值 0.062. 氦和氦-3 浓度的这种变化过程正好反映了氦的扩散、衰变和边界对流以及所产生氦-3 的滞留与累积的共同结果: 即在储存初期, 氦未扩散到容器外表面处, 因而刚开始时外表面处都没有氦和氦-3; 但随着时间延长, 氦不断向外表面扩散并累积, 外表面邻近区域的氦浓度就不断增大, 与之相应, 氦衰变产生的

氦-3 的浓度也相应增大; 再后来, 氦浓度沿径向的梯度越来越小, 扩散导致的氦累积量比衰变量更少, 因而氦的浓度又随时间增大而减小, 但由于氦-3 滞留和累积, 因而氦-3 浓度一直随时间延长而增大, 直至氦完全衰变时达到其最大值.

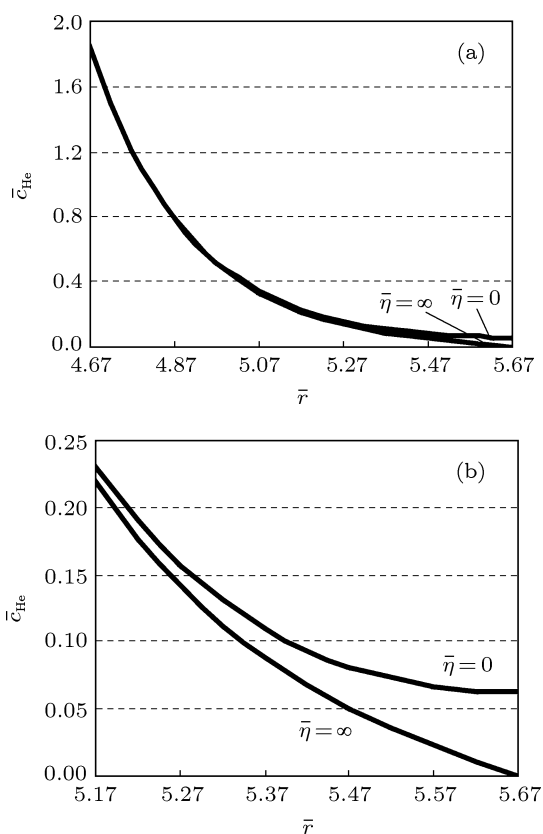


图2 不同对流传质系数和储存无限长时氦-3 浓度沿径向的分布 (a) 整个壁厚; (b) 外层半壁厚

图1—图3 只给出了容器外表面处氦的浓度保持不变 ($\bar{\eta} = \infty$) 和氦不向容器外渗透 ($\bar{\eta} = 0$) 两种极端情况的结果. 然而, 实际的对流传质边界条件的 $\bar{\eta}$ 值都是介于这二者之间的, 对此, 具体分析时将 $\bar{\eta}$ 的实测值代入公式进行计算即可. 这里, 为了分析 $\bar{\eta}$ 的影响规律, 将 $\bar{\eta}$ 作为一个变量, 计算给出了在储存两个半衰期时和储存无限长时间以后容器外表面处氦和氦-3 的浓度随 $\bar{\eta}$ 的变化数据, 如表1. 表中数据表明, 在同一储存时期, 随着 $\bar{\eta}$ 由零增大到足够大的值, 外表面处氦-3 的浓度由最大值不断减小, 直至到零. 而在有限储存期内, 外表面处氦的浓度随 $\bar{\eta}$ 的变化情况与氦-3 的类似, 但在储存无限长时间以后, 氦的浓度都变为零, 因而与 $\bar{\eta}$ 无关. 该表中的数据与图2 中的曲线同样都说明, 总的来说, $\bar{\eta}$ 的影响是很小的.

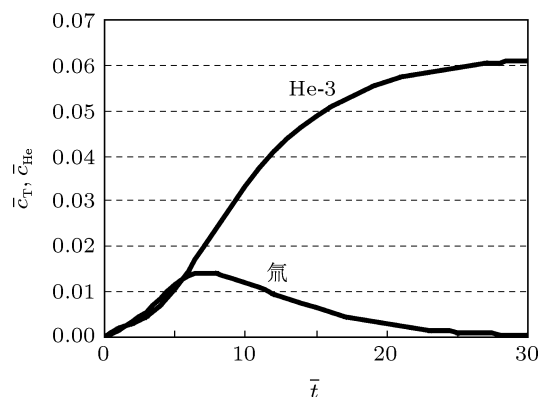


图3 $\bar{\eta} = 0$ 时容器外表面上氦和氦-3 浓度随时间的变化

表1 外表面处、两个特征时刻氦和氦-3 浓度随 $\bar{\eta}$ 的变化

$\bar{\eta}$	0	1	10^1	10^2	10^3	10^4	10^5	10^6	10^7	10^8
$t = 2 \text{ HL}$	$\bar{C}_T$	3.7×10^{-3}	2.0×10^{-3}	5.5×10^{-4}	8.4×10^{-5}	9.3×10^{-6}	9.5×10^{-7}	9.0×10^{-8}	1.0×10^{-8}	0
	$\bar{C}_{He}$	3.2×10^{-3}	1.6×10^{-3}	3.0×10^{-4}	3.5×10^{-5}	4.0×10^{-6}	4.1×10^{-7}	4.0×10^{-8}	0	0
$t = \infty$	$\bar{C}_T$	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	$\bar{C}_{He}$	6.2×10^{-2}	4.7×10^{-2}	1.6×10^{-2}	2.1×10^{-3}	2.2×10^{-4}	2.2×10^{-5}	2.2×10^{-6}	2.2×10^{-7}	2.0×10^{-8}

3.3 氦-3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律

根据上文分析, 可得到如下定律: 处于开放空间的储氦球形高压容器, 器壁中氦-3 的浓度呈内高外低的分布, 时间越长, 浓度沿径向的梯

度越大, 在时间足够长时, 各处浓度逼近最终的最大值, 内表面处的最大值是该处氦初始时刻浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍. 当容器内初始氦压强为 30 MPa、温度为 300 K 时, 有 $2\beta_1 + \beta_2/2 = 1.845$. 本文称该定律为氦-3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律. 显然, 该定

律对于器壁材料的氦脆分析及后续的容器承载能力分析是十分有益的.

3.4 理论与实验结果的比较

文献 [16] 给出了内径 $R_i = 35 \text{ mm}$ 、外径 $R_o = 42.5 \text{ mm}$ 的球形容器在储存 4 年和 6 年时其内表面处的氦浓度和氦 -3 浓度之比的实验测试结果, 试验件为 21-6-9 牌号的不锈钢, 无涂层, 置于常温常压下保存. 文献 [12] 针对氦为理想气体和外表面对流传质系数 $\bar{\eta} = \infty$ 的情况给出了理论

计算结果. 这里针对范德瓦尔斯气体和 $\bar{\eta} = 0$ 的情况进行相应的理论计算和对比. 表 2 给出了实测结果与理论计算结果及其对比偏差. 表中数据表明, 本文理论计算和文献中实测得到的氦浓度与氦 -3 浓度之比非常接近, 这在一定程度上说明本文关于氦 -3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律是符合实际的. 另外, 如图 1(b) 所示, 本文计算值与文献 [12] 计算值的差别来源于气体模型的不同, 而范德瓦尔斯气体模型无疑比理想气体模型更接近实际, 表中 6 年期数据正好与此相符, 但 4 年期数据却与此相反, 这自然应归因于实测数据误差.

表 2 两种不同储存年限的球形容器壁中氦和氦 -3 浓度比值的比较

$\bar{C}_T/\bar{C}_{He}$	文献 [16] 实测值	文献 [12] 理论值	本文理论值	本文理论值与实测值相对偏差 /%
4 年期	4.25	4.12	4.05	4.7
6 年期	2.55	2.62	2.60	2.0

4 结 论

1. 针对容器外表面为一般对流传质边界条件和容器腔内氦与氦为范德瓦尔斯气体的情况, 同时考虑储氦球形高压容器腔内和壁中氦的衰变和扩散, 导出了容器壁中氦和氦 -3 浓度的解析理论公式.

2. 解析计算给出了氦衰变和扩散过程中器壁中氦和氦 -3 浓度的时空变化规律, 将理想气体条件下获得的氦 -3 浓度的 2 倍定律改进为范德瓦尔斯气体条件下的氦 -3 浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍定律:

即处于开放空间的储氦球形高压容器, 器壁中氦 -3 的浓度呈内高外低的分布, 时间越长, 浓度的梯度越大, 在时间足够长时, 各处浓度逼近时间无限长时的最终值, 也就是最大值, 内表面处的最大值是该处氦初始时刻浓度的 $2\beta_1 + \beta_2/2$ 倍. 特别地, 当容器内初始氦压强为 30 MPa、温度为 300 K 时, 有 $2\beta_1 + \beta_2/2 = 1.845$.

3. 解析计算给出了容器外表面对流传质系数对氦和氦 -3 浓度的影响规律, 分析找出: 总的来说, 外表面对流传质系数的影响是很小的.

- [1] Marchi C S, Somerday B, Robinson S 2007 WSRC-STI 00579
- [2] Wang X L 2009 *Journal of Nuclear and Radiochemistry* **31** 64 (in Chinese) [汪小琳 2009 核化学与放射化学 **31** 64]
- [3] Ma L M, Li Y Y 1988 *Acta Metallurgica Sinica* **24** B432
- [4] Fedov V V, Pokhmursky V I, Dyomina E V, Prusakova M D, Vinogradova N A 1995 *Fusion Technology* **28** 1153
- [5] Shiraishi T, Nishikawa M, Tamaguchi T, Kenmotsu K 1999 *J. Nucl. Mater.* **273** 60
- [6] Chen C A, Wu S, Ni R F, Bo C M 2000 *Journal of Nuclear and Radiochemistry* **22** 144 (in Chinese) [陈长安, 武胜, 倪然夫, 柏朝茂 2000 核化学与放射化学 **22** 144]
- [7] Chen C A, Wu S, Ni R F 2000 *Atomic Energy Science and Technology* **35** 20 (in Chinese) [陈长安, 武胜, 倪然夫 2000 原子能科学技术 **35** 20]
- [8] Wang L B, Lu M Q, Li Y Y 2003 *Acta Metallurgica Sinica* **39** 449 (in Chinese) [王隆保, 吕曼祺, 李依依 2003 金属学报 **39** 449]
- [9] Xie B, WENG K P 2009 *Journal of Molecular Science* **25** 352 (in Chinese) [谢波, 翁葵平 2009 分子科学学报 **25** 352]
- [10] Xie C, Hou Q, Wang J, Sun T Y, Long X G, Luo S Z 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5159 (in Chinese) [谢朝, 侯氢, 汪俊, 孙铁英, 龙兴贵, 罗顺忠 2008 物理学报 **57** 5159]
- [11] Zhang B L, Wang J, Hou Q 2011 *China. Phys. B* **20** 036105
- [12] Liu Y D, Yin Y H, Tan Y, Sun Y, Mei J 2011 *Sci. China Tech. Sci.* **54** 1521
- [13] Wang P X, Song J S 2002 *Helium in Materials and the Permeation of Tritium* (Beijing: National Defense Industry Press) p53 (in Chinese) [王佩璇, 宋家树 2002 材料中的氦及氦渗透 (北京: 国防工业出版社) 第 53 页]
- [14] Hu X, Lv R D, Liu G J, Hei E C 2007 *Physical Chemistry* (Beijing: Higher Education Press) p11 (in Chinese) [胡英, 吕瑞东, 刘国杰, 黑恩成 2007 物理化学 (北京: 高等教育出版社) 第 11 页]
- [15] Jiang Y M, Xie H B, Guo F, Liu P, Li J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54**

5769 (in Chinese) [蒋益明, 谢亨博, 郭峰, 刘平, 李劲 2005 物理学报 54 5769]

[16] Chen C A 2003 *Ph. D. Dissertation* (Mianyang: China Academy

of Engineering Physics) (in Chinese) [陈长安 2003 博士学位论文 (绵阳: 中国工程物理研究院)]

Research on tritium and helium-3 content distributions in steel wall of spherical pressure vessel under general boundary condition*

Liu Yuan-Dong Yin Yi-Hui[†] Tan Yun

(*Institute of Structural Mechanics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*)

(Received 20 October 2011; revised manuscript received 4 January 2012)

Abstract

In order to understand the changes of mechanical properties of the wall materials and the carrying capacity of vessel which contains high pressure tritium, the spatiotemporal changes of tritium and helium-3 content in the wall should be studied during tritium storage. Taking into consideration the case that the outer surface of the vessel is with general mass transfer boundary condition and the tritium inside the vessel is van der Waals gas, and also taking into account both decay and permeation of tritium inside the vessel and decay and diffusion of tritium in the wall material, the analytical theoretical models of tritium and helium-3 content in the wall are developed and solved, and relevant theoretical formulas are deduced. Through analytical calculations, the curves of tritium and helium-3 content in the wall versus mass transfer coefficient of the outer surface, storage time and the spatial positions are plotted. Through analysis, a law called $2\beta_1 + \beta_2/2$ time law of helium-3 content is put forward, where β_1 and β_2 are the coefficients which are related to van der Waals constant of tritium. The law is proposed: helium-3 content in the wall of the spherical high pressure vessel storing tritium which is in an open space rises along the radius from outer to inner, and the content radial gradient increases with storage time. If storage time is long enough, the helium-3 content at any point will approach to its final value, that is, a maximal value at a relevant point. The ratio of the maximum helium-3 content to the related initial tritium content is $2\beta_1 + \beta_2/2$ at the inner surface. The obtained formulas and understandings can be used as a premise of the safety assessment of tritium stored vessel.

Keywords: steel spherical pressure vessel, tritium decay, helium-3, diffusion

PACS: 66.30.-h

* Project supported by the Science and Technology Development Foundation of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 2008A0301010).

[†] E-mail: yinyh@caep.ac.cn