

НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЕ СООБЩЕНИЯ

УДК 541.183.621.039.542

МОДЕЛИРОВАНИЕ РАБОТЫ ДОЛГОРЕСУРСНОГО ТЕРМОЭМИССИОННОГО ПРЕОБРАЗОВАТЕЛЯ С ЯДЕРНЫМ НАГРЕВОМ

Выбыванец В.И., Любимов Д.Ю. (НИИ НПО «Луч», г. Подольск, Московская обл.),
Корюкин В.А. (НИЦ «Курчатовский ин-т», г. Москва)

Прогнозирование работы термоэмиссионного преобразователя (ТЭП) с ядерным нагревом является актуальной задачей при длительном ресурсе [1]. Чаще всего постепенный отказ в работе ТЭП связывают со снижением генерируемой мощности [2]. Для прогнозирования и оценки вероятностных характеристик прогнозов обычно применяется расчетно-экспериментальный подход, основанный на математическом моделировании и статистических методах. Для электродов одноэлементного ТЭП такая попытка прогноза была сделана в исследованиях [3]. Настоящая статья посвящена обоснованию методики ускоренных испытаний для подтверждения стабильности выходных характеристик долгоресурсных вентилируемых термоэмиссионных преобразователей. Методика основана на температурной зависимости адсорбционных процессов на электродах.

Модели изменения эмиссионных свойств электродов ТЭП. В настоящее время требуемый ресурс приближается к 10 годам. Поэтому прямые демонстрационные эксперименты по подтверждению ресурса невозможны и необходима методика его прогнозирования. При отсутствии пороговых процессов возможно использование метода форсирования параметра, определяющего процесс. Более широкие возможности предоставляет переход от измерения суммарного эффекта к определению скорости соответствующего процесса с последующим интегрированием функциональной зависимости на предполагаемый ресурсный период. Этот метод не требует специального обоснования, если изучаемый процесс является единственным. Однако при наложении нескольких процессов необходимо модельное обоснование из-за возможности их взаимодействия.

Для ТЭП основным фактором, определяющим ресурс и деградацию выходных характеристик, является состояние поверхностей эмиттера и коллектора, на которые могут влиять следующие процессы:

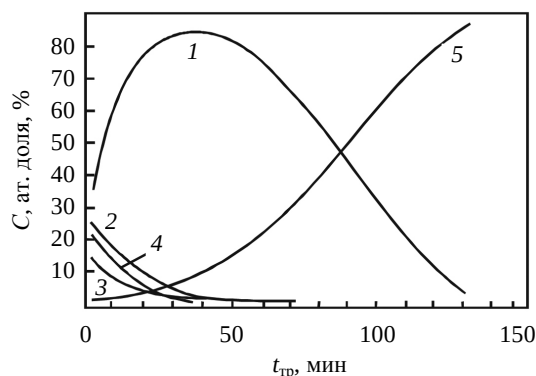
коллектор — адсорбция газообразных и летучих продуктов деления топлива, осаждение материала эмиттера путем испарения и циклических процессов

массопереноса, загрязнение поверхности вследствие как конденсации компонентов остаточных газов, так и сегрегации примесей из глубины коллектора, взаимодействие поступающих на поверхность примесей с материалом коллектора и адсорбированными слоями цезия;

эмиттер — сегрегация примесей на поверхности и фасетирование граней (112) вследствие вакуумного травления поверхности с образованием фасеток с наиболее устойчивыми гранями (110).

Показанное на рис. 1 распределение основных элементов W, Mo, C, O, Cs в приповерхностном слое коллектора одноэлементного преобразователя, проработавшего на тепловом стенде 2500 ч, является типичным, характерным для всех одноэлементных ТЭП, вплоть до максимального времени испытаний в течение 3 лет [4]. Индивидуальные особенности ресурсных испытаний приводили к изменению соотношений основных компонентов приповерхностного слоя коллектора, оставляя его состав неизменным. Поэтому эти данные могут быть использованы и при анализе работоспособности долгоресурсных преобразователей.

При отработке долгоресурсных преобразователей массоперенос вольфрама с эмиттера на коллектор можно оценивать путем изменения состава среды



Р и с. 1. Распределение W (1), O (2), Cs (3), C (4), Mo (5) в приповерхностном слое коллектора одноэлементного ТЭП по данным оже-анализа

межэлектродного зазора и температуры электродов. В общем случае массоперенос в условиях остаточной газовой среды (CO , H_2O , O_2) и нагретых электродов представляется в виде ряда последовательных стадий, каждая из которых может лимитировать скорость массопереноса и в принципе, воздействуя на любую из них, замедлять или ускорять процесс в целом.

Оценки потока W , Cs , Ba на поверхность коллектора. Для долгоресурсных вентилируемых ТЭП в настоящее время есть лишь некоторые оценки потока продуктов деления в межэлектродный зазор из топлива и степеней покрытия поверхности электродов атомами, поступающими на поверхность электродов из зазора [5, 6]. Поток атомов на поверхность коллектора в межэлектродном зазоре вентилируемого ТЭП спустя год работы следующий, $\text{с}^{-1}\cdot\text{см}^{-2}$: W $2\cdot 10^{11}$, O $3\cdot 10^9$, $^{138-140}\text{Ba}$ $8,5\cdot 10^8$, Ru , Sr , La , $\text{U} \sim 10^9$, Cs 10^{19} — 10^{20} . Как видно, за исключением цезия, поток атомов остальных элементов не сильно различается. В многоэлементном ТЭП массоперенос вольфрама с эмиттера на коллектор может составлять $1\cdot 10^{-6}$ — $5\cdot 10^{-4}$ мкм/ч в зависимости от стехиометрического состава оксидного топлива и температуры эмиттера [5, 6].

Численный метод расчета степени покрытия коллектора ТЭП барием. В настоящее время нет экспериментальных данных, по которым можно рассчитать изменение эмиссионных свойств электродов и выходных характеристик вентилируемого ТЭП под влиянием газообразных продуктов деления топлива при длительном ресурсе. Также нет детально разработанной теории, описывающей изменение эмиссионных свойств электродов при адсорбции на их поверхность смесей паров и газов, в частности, паров цезия и нескольких компонентов газообразных продуктов деления, находящихся в межэлектродном зазоре. Методы расчета основаны на полуэмпирических подходах и положениях, закономерных в узких и упрощенных условиях, что затрудняет прогнозирование длительного ресурса преобразователя, связанного, помимо прочего, и с неконтролируемыми процессами на электродах. Поэтому ограничимся рассмотрением изменения степени заполнения поверхности атомами, находящимися в межэлектродном зазоре, в результате идеализированной сорбции, не осложненной другими процессами.

Известно, что изменение работы выхода $\Delta\phi$ атомно-чистой поверхности металла на начальных стадиях адсорбции электроположительных элементов в первом приближении пропорционально количеству адсорбированных частиц: $\Delta\phi = 4\pi\mu N_a$, где μ — дипольный момент отдельной частицы; N_a — число адсорбированных частиц на единицу поверхности. Поверхностная концентрация адсорбированных частиц $N = \sum_i N_i$, где N_i — парциальная концентрация

атомов различных элементов на поверхности адсорбента.

Если не учитывать стадии доставки и удаления атомов в межэлектродный зазор и из него, то изменение концентрации атомов на однородной поверхности электрода для каждого компонента описывается кинетическим уравнением

$$\frac{dN_i}{dt} = w_a - w_d - w_{\text{п.д.}} - w_p,$$

где w_a , w_d , $w_{\text{п.д.}}$, w_p — скорость адсорбции, термодесорбции, поверхностной диффузии и образования новых соединений, в том числе с поверхностными атомами адсорбента, растворения атомов в объеме адсорбента соответственно. Последняя величина определяется скоростью перехода частиц через границу поверхности и объемной диффузией, при массопереносе в межэлектродном зазоре — это покрытие атомов бария слоем атомов вольфрама, перенесенных с эмиттера.

В частном случае, учитывая лишь два первых члена в уравнении скорости накопления адсорбата бария на поверхности коллектора, кинетическое дифференциальное уравнение примет вид

$$\frac{d\theta}{dt} = \frac{\alpha_{\text{Ba}}(1-\theta)P_{\text{Ba}} \exp(-E_a(\theta)/kT_G)}{N_{\text{макс}} \sqrt{2\pi M_{\text{Ba}} kT_G}} - \theta(1/\tau_0) \exp(-E_d(\theta)/kT_s), \quad (1)$$

где $\theta = N_{\text{Ba}}/N_{\text{макс}}$ — степень покрытия; α_{Ba} — коэффициент прилипания; P_{Ba} — парциальное давление паров бария; $E_a(\theta)$, $E_d(\theta)$ — энергия активации адсорбции и десорбции атомов бария соответственно; k — постоянная Больцмана; $N_{\text{макс}}$ — максимальная концентрация бария на поверхности; M_{Ba} — атомная масса бария; T_G , T_s — температура паров бария и поверхности; $1/\tau_0$ — частотный множитель. Вероятность столкновения атомов с активными центрами на поверхности при отсутствии процесса диссоциации обычно принимается равной $1 - \theta$. В случае неактивированной адсорбции $E_a(\theta)$ обращается в нуль, в случае активированной требует определения.

Кинетическое дифференциальное уравнение для скорости изменения степени покрытия поверхности вольфрама при адсорбции атомов бария решалось численно методом Рунге—Кутты 4-го порядка точности. Было показано, что расчеты адсорбции атомов бария на поверхность поликристаллического вольфрама при наличии паров цезия имеют сложный характер. При малом покрытии лучшее согласие между экспериментом и расчетом наблюдается при использовании зависимостей энергии десорбции $E_d(\theta)$ от степени покрытия θ в линейной форме, при большом — по логарифмическому закону [7].

Моделирование влияния снижения температуры коллектора на степень покрытия барием и выходную электрическую мощность ТЭП. Влияние степени покрытия коллектора продуктом деления ^{138}Ba на выходную электрическую мощность при снижении температуры с 630 до 480 °С рассчитывали с использованием модели пятнистой поверхности. Согласно этой модели работа выхода коллектора ϕ_k , покрытого цезием и барием, представляется в виде

$$\phi_k(\theta) = (1 - \theta)\phi_{Cs} + \theta\phi_{Ba},$$

где ϕ_{Cs} , ϕ_{Ba} — работа выхода поликристаллического вольфрама при монослойном покрытии цезием и барием; θ — степень покрытия поверхности барием; $1 - \theta$ — степень покрытия поверхности коллектора цезием.

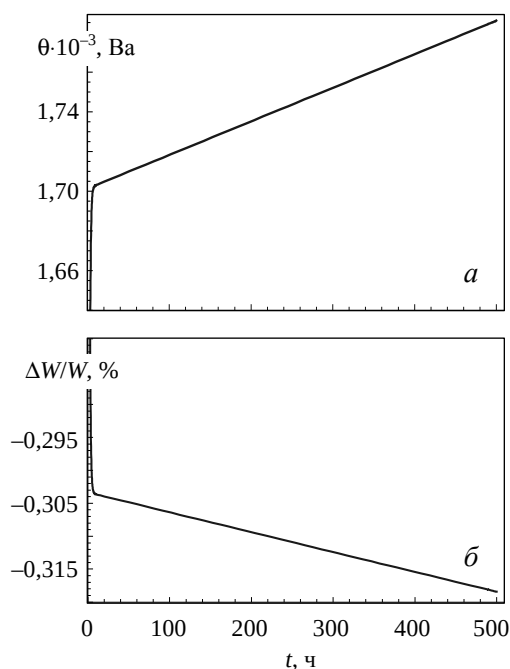
Изменение выходной электрической мощности ΔW долгоресурсного преобразователя при изменении работы выхода коллектора рассчитывали по формуле

$$\Delta W = -n\Delta\phi_k I,$$

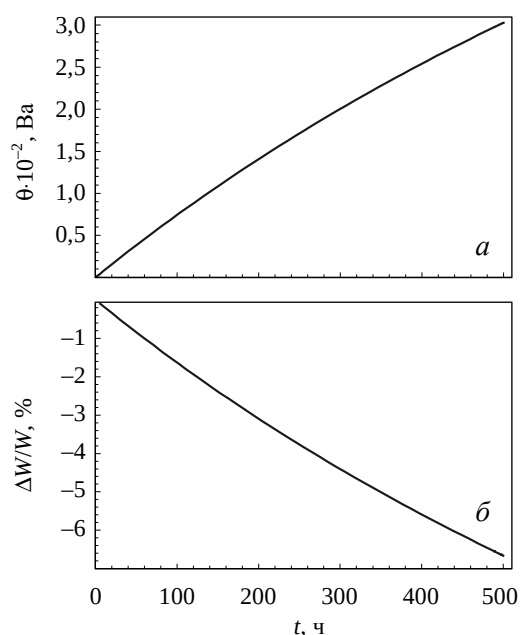
где n — число электрогенерирующих элементов; $\Delta\phi_k = \phi_k - \phi_{Cs}$ — изменение работы выхода коллектора при адсорбции бария; I — ток долгоресурсного преобразователя.

Временную зависимость степени покрытия барием и цезием поверхности коллектора из поликристаллического вольфрама в среде пара цезия давлением 260—400 Па при температуре 480—630 °С и парциальном давлении ^{138}Ba в межэлектродном зазоре в рабочем режиме рассчитывали с помощью системы компьютерной математики Mathematica 8 по уравнению (1). При заданном парциальном давлении цезия и продукта деления бария в газовой фазе межэлектродного зазора вблизи коллектора можно рассчитать кинетику изменения степеней покрытия вольфрамового коллектора барием и цезием в условиях совместной адсорбции, если заданы начальные условия $\theta_j(0) = \theta_j^0$ [6]. Предварительные расчеты изменения во времени максимального парциального давления ^{138}Ba в межэлектродном зазоре долгоресурсного вентилируемого преобразователя в рабочем режиме показали, что в конце ресурса 62 тыс. ч максимальное давление изотопа не превышает $6 \cdot 10^{-8}$ Па.

Результаты расчета зависимости от времени степеней покрытия барием и цезием поверхности коллектора из поликристаллического вольфрама в среде пара цезия с учетом взаимодействия между атомами бария и цезия на поверхности [6], а также изменения относительной выходной электрической мощности долгоресурсного преобразователя при снижении температуры от 630 до 480 °С и парциальном давлении бария в межэлектродном зазоре в конце ресурса показаны на рис. 2—3.



Р и с. 2. Зависимость степени покрытия коллектора ^{138}Ba (а) и изменения выходной электрической мощности (б) от времени при температуре коллектора 630 °С в рабочем режиме в течение 500 ч



Р и с. 3. То же, что на рис. 2, при температуре коллектора 480 °С

В начале режима в течение 500 ч степень покрытия барием коллектора при 630 °С слабо изменяется (см. рис. 2). Видно, что степень покрытия ^{138}Ba коллектора при 630 °С достигает ~0,002. Это приведет к снижению выходной электрической мощности примерно на 0,32%. Расчеты показывают, что снижение температуры коллектора до 480 °С в рабочем режиме может приводить к увеличению степени покрытия ^{138}Ba за счет уменьшения скорости десорбции. На

рис. 3 видно, что степень покрытия ^{138}Ba коллектора при 480 °С достигает ~0,03 в течение 500 ч со снижением выходной электрической мощности при этом ~7%.

Таким образом, снижение температуры коллектора в рабочем режиме может служить фактором ускорения испытаний долгоресурсного вентилируемого термоэмиссионного преобразователя с ядерным нагревом. Для этого в петлевых испытаниях после стабилизации выходных характеристик снимаются зависимости выходной электрической мощности $W_{\text{ЭГК}}$ преобразователя от температуры коллектора T_k в начале (до снижения температуры) и после снижения температуры. Сравнение кривых $W_{\text{ЭГК}} = f(T_k)$ во времени позволит судить о состоянии коллектора. Сдвиг максимума кривых в сторону большей температуры и снижение мощности $W_{\text{ЭГК}}$ будут свидетельствовать о накоплении атомов бария на поверхности коллектора. Постоянство или сдвиг $W_{\text{ЭГК}} = f(T_k)$ в сторону меньшей температуры коллектора будет свидетельствовать о значительном преобладании массопереноса вольфрама с эмиттера на коллектор над процессом адсорбции бария на поверхность коллектора. Такой эксперимент даст прямой ответ на вопрос о степени влияния продуктов деления на выходные характеристики в рабочем режиме работы преобразователя.

Предварительные расчеты показывают, что снижение температуры коллектора приводит к увеличению эквивалентного времени работы в несколько десятков раз. Это следует из решения кинетического уравнения для двух процессов — адсорбции и десорбции. В первом приближении при неизменности остальных параметров в уравнении скорость десорбции при снижении температуры коллектора снижается экспоненциально. Согласно расчетным и экспериментальным данным при снижении температуры коллектора на 100 °С теряется 4—5% электрической мощности при отсутствии продуктов деления на поверхности коллектора.

При условии накопления бария на поверхности коллектора во времени до степени покрытия $\theta = 0,1$ выходная электрическая мощность согласно расчетам снизится на 18—20%. Расчеты показывают, что временная база испытаний при снижении температуры коллектора на 100—150 °С может быть сокращена в 5—10 раз.

Заключение. Предлагаемая методика ускоренных испытаний позволяет подтвердить стабильность выходных характеристик долгоресурсных вентилиру-

емых термоэмиссионных преобразователей с ядерным нагревом, связанную с адсорбционными процессами на электродах. Она основывается на работе преобразователя в режиме с пониженной на 100—150 °С по сравнению с рабочей температурой коллектора. Согласно расчетным и экспериментальным данным при снижении температуры коллектора на 100 °С теряется 4—5% электрической мощности при отсутствии продуктов деления на поверхности коллектора. Расчеты показывают, что при условии накопления бария на поверхности коллектора во времени до степени покрытия $\theta = 0,03$ выходная электрическая мощность преобразователя может снизиться на 6—7%, при $\theta = 0,1$ — на 18—20%. Снижение температуры коллектора приводит к увеличению эквивалентного времени работы преобразователя в рабочем режиме в несколько раз.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Выбыванец В.И., Гонтарь А.С., Еремин С.А. и др.** Базовый электрогенерирующий канал двухрежимных термоэмиссионных ЯЭУ. — В сб.: Межд. конф. «Ядерная энергетика в космосе-2005». Москва—Подольск, 1—3 марта 2005 г., т. 1, с. 79—82.
2. **Синявский В.В.** Методы и средства экспериментальных исследований и реакторных испытаний термоэмиссионных электрогенерирующих сборок. М.: Энергоатомиздат, 2000. 380 с.
3. **Корюкин В.А.** Ресурсные свойства электродов одноэлементного электрогенерирующего канала термоэмиссионной ЯЭУ «Енисей». — Атомная энергия, 2001, т. 90, вып. 1, с. 3—12.
4. **Выбыванец В.И., Корюкин В.А., Обрезумов В.П.** Изменение эмиссионно-адсорбционных свойств коллекторов ТЭП в процессе работы. — В сб.: Межд. конф. по инженерным проблемам преобразования энергии. США, Вашингтон, 1989, с. 1161—1163.
5. **Гонтарь А.С., Гриднев А.А., Любимов Д.Ю.** Анализ физико-химических процессов в многоэлементном ЭГК с сообщающимися полостями твэла и межэлектродного зазора. — Атомная энергия, 2008, т. 104, вып. 4, с. 216—224.
6. **Любимов Д.Ю., Федик И.И., Шумилов А.А.** Влияние продуктов деления на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями твэла и межэлектродного зазора. — Там же, 2011, т. 110, вып. 6, с. 321—327.
7. **Крылов О.В.** Гетерогенный катализ. М.: ИКЦ «Академкнига», 2004. 680 с.

Поступило в Редакцию 16.10.14