

На правах рукописи

Шумилов Алексей Андреевич

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ОКСИДНОГО ТОПЛИВА
НА ВЫХОДНУЮ МОЩНОСТЬ ТЕРМОЭМИССИОННЫХ
ЭЛЕКТРОГЕНЕРИРУЮЩИХ КАНАЛОВ

01.04.07 – Физика конденсированного состояния

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'Шумилов Алексей Андреевич', is written on a white rectangular background that is slightly tilted.

Москва, 2013

Работа выполнена в Национальном исследовательском ядерном университете
«МИФИ»

Научный руководитель: Член-корр. РАН, доктор технических наук, профессор
НИЯУ «МИФИ» Федик Иван Иванович

Официальные оппоненты: д.т.н., начальник лаборатории ФГУП «НИИ НПО
«ЛУЧ» г. Подольск, Исаков Виктор Павлович

канд. физ. мат. наук, начальник группы НИЦ
"Курчатовский Институт", Корюкин Владимир
Александрович

Ведущая организация:

Открытое акционерное общество «Красная Звезда»

Защита состоится «24» апреля 2013 г. В 16 час. 30 мин.
на заседании диссертационного совета Д 212.130.04 в национальном
исследовательском ядерном университете «МИФИ»

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке национального
исследовательского ядерного университета «МИФИ»

Автореферат разослан «21» марта 2013 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
д.ф.-м.н., профессор



И.И.Чернов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

В проектных разработках космических ядерных энергетических установок (ЯЭУ) развитие получили термоэмиссионные реакторы-преобразователи (ТРП) на тепловых и промежуточных нейтронах. Одним из элементов ТРП является электрогенерирующий канал (ЭГК), содержащий вентилируемый ТВЭЛ с ядерным топливом на основе диоксида урана.

В многоэлементном электрогенерирующем канале с оксидным ядерным топливом с разделенными, частично разделенными или сообщающимися полостями ТВЭЛА и межэлектродного зазора (МЭЗ) имеются многочисленные факторы, оказывающие влияние на работоспособность канала и, в частности, на изменение выходных характеристик электрогенерирующих элементов (ЭГЭ). Одним из таких факторов является наличие на поверхности электродов остаточных и адсорбированных примесных элементов (О, С, Н, N), компонентов оксидного ядерного топлива – кислорода и урана, а также образующихся в процессе работы реактора продуктов деления (ПД) и продуктов активации цезия (ПАЦ). Очистка межэлектродного зазора от примесей путем термовакуумной подготовки ЭГК и предварительная дистилляция цезия позволяет снизить содержание остаточных и адсорбированных на поверхности электродов примесных элементов до уровня, практически не влияющего на выходные характеристики установки.

Попадание на поверхность электродов ПД урана и ПАЦ также может сказываться на стабильности выходных характеристик ЭГК. Влияние ПД на вольтамперную характеристику (ВАХ) ЭГК существенным образом зависит от их количества на поверхности электродов. Наиболее сильно работу выхода электронов из вольфрама могут изменить щелочноземельные и редкоземельные металлы и их оксиды, которые имеют работу выхода на вольфрамовой подложке в диапазоне 1,1 – 4,0 эВ при монослойном покрытии, т.е. значительно ниже, чем работа выхода из поликристаллического вольфрама (4,6 эВ). Другая группа металлов, выход которых при делении ядер урана почти такой же, как и у редкоземельных металлов, и присутствие которых на поверхности вольфрама может изменить его вакуумную работу выхода, состоит из Мо, Ru, Rh и Pd. Летучие ПД, такие как галогены (Br, I) и халькогены (Se, Te), так же могут изменить работу выхода электронов в вакууме из вольфрамовых электродов при попадании в МЭЗ. При длительном ресурсе ЭГК с разделенными, частично разделенными или сообщающимися полостями ТВЭЛА и межэлектродного зазора кислород, уран, ПД и примесные компоненты топлива могут также попадать в МЭЗ из оксидного топлива путем диффузии через эмиттерную оболочку. В этом случае для рассматриваемых типов ЭГК потоки компонентов в МЭЗ практически одинаковы, если одинаковы материалы, геометрические характеристики и температуры эмиттерных оболочек. В ЭГК с сообщающимися полостями ТВЭЛА и МЭЗ формирующиеся в изотермической топливной полости газы, состоящие из основных и примесных компонентов, ПД и их оксидов, могут так же попадать в МЭЗ, диффундируя в газообразном цезии через газоотводное устройство (ГОУ), ловушку и газоотводящий тракт. На этом пути оксиды урана и такие соединения ПД, как оксиды редкоземельных металлов, циркония и иттрия,

конденсируются в ловушке и газоотводном тракте в диапазоне температур 1500 – 1800 К, а оксиды бария и стронция – в диапазоне 1200 – 1500 К. Металлические ПД Ru, Rh, Mo и Tc также конденсируются в газоотводном тракте при температурах не ниже 1200 К. Далее, диффундируя в цезиевом газе МЭЗ вдоль ЭГК, оставшиеся компоненты (щелочноземельные металлы, халькогены и галогены) и их газообразные соединения (например, CsI, CsBr) адсорбируются и десорбируются на поверхностях электродов и, наконец, выходят в вакуумно-цезиевую систему (ВЦС) реактора или петлевого канала. Вывод газов из МЭЗ в ВЦС может осуществляться как с одной стороны ЭГК, так и с двух сторон. В ЭГК с разделенными полостями твэла и МЭЗ газы, формирующиеся в изотермической топливной полости, попадают в ВЦС по отдельному, не сообщающемуся с МЭЗ газоотводящему тракту с температурой, близкой к температуре коллектора. В этом случае в ВЦС реактора или петлевого канала также попадают щелочноземельные металлы, халькогены и галогены. Конечным продуктом активации цезия (^{133}Cs) является щелочноземельный металл барий (^{134}Ba), который образуется в газовой фазе и на поверхности электродов МЭЗ ЭГК, а также в трактах ВЦС и в жидком цезии генератора паров цезия реактора или генератора паров рабочего тела петлевого канала, но в меньшей степени.

Для всех рассматриваемых типов ЭГК вынос ПД, в частности, щелочноземельных металлов, халькогенов и галогенов осуществляется в ВЦС. В этом случае количество указанных выше ПД и активации в МЭЗ ЭГК, а соответственно и влияние на выходные характеристики отдельного ЭГК и термоэмиссионного реактора–преобразователя в целом, должно зависеть от их концентрации в газообразном цезии ВЦС, а точнее на входе в МЭЗ. В свою очередь концентрации ПД в газообразном цезии ВЦС зависят от схемы подачи пара цезия в МЭЗ. Таким образом, для анализа влияния ПД и ПАЦ на работу выхода электронов в ЭГК в зависимости от конструктивной схемы требуется: провести оценку кинетики совместного поведения щелочноземельных ПД и галогенов в оксидном топливе; провести расчет парциальных давлений компонентов в топливной полости и их потоков через ГОУ в МЭЗ на нестационарных режимах работы ЭГК и, в частности, петлевого канала (ПК); провести расчет диффузии ПД в МЭЗ через оболочку эмиттера; провести на основе полученных данных моделирование распределения концентрации ПД и ПАЦ в трактах ВЦС и в МЭЗ вдоль ЭГК применительно к различным конструктивным схемам ЭГК и оценить степень покрытия электродов ПД и ПАЦ. Данные по степени покрытия электродов ПД и ПАЦ позволят дать оценку их влияния на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК.

Цель работы

Разработка модели поведения ПД и активации цезия в многоэлементном электрогенерирующем канале на стационарных и нестационарных режимах работы для последующей оценки на основании полученных данных влияния ПД на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК применительно к различным конструктивным схемам.

Научная новизна работы

В процессе выполнения работы впервые получены следующие результаты:

- 1) Впервые разработана модель и проведен модельный расчет радиального распределения химического и фазового состава ПД в топливном сердечнике из диоксида урана в условиях работы термоэмиссионного ЭГК, а также парциальных давлений компонентов газовой фазы в центре топлива.
- 2) Проведено моделирование распределения ПД для условий испытаний ЭГК в ПК с использованием данных по элементному и количественному составу ПД, образующихся в топливе. Проведен анализ топлива при температурах выше 1800 К и дана оценка максимальным давлениям в МЭЗ Ва и I для различных циклов испытаний в составе петлевого канала.
- 3) Установлены ПД, которые могут влиять на эмиссионные свойства электродов ЭГК в ресурсе и имеющие на порядок более высокие, чем у других ПД, парциальные давления: Ва, Sr, I и их соединения.
- 4) Впервые получены данные по потокам ПД и их изотопов из топливной полости в МЭЗ, а так же по распределению среднего давления в МЭЗ ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэл на стационарных и нестационарных режимах работы ЭГК. Так же разработана модель и получены результаты по распределению ПАЦ вдоль ЭГК.
- 5) Впервые произведена оценка влияния ПД и ПАЦ на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК в зависимости от различных конструктивных схем.

Научная и практическая значимость работы

Полученные результаты применимы для прогнозирования термодинамики и кинетики поведения ПД урана и ПАЦ в многоэлементных ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла на разных режимах и в разных конструктивных схемах. Результаты диссертационной работы позволяют оценить различные конструктивные схемы ЭГК и выбрать оптимальную, с точки зрения влияния ПД, схему для дальнейшей отработки ЭГК при испытаниях в петлевом канале и в составе установки.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Результаты моделирования и анализа влияния ПД на фазовый состав достехиометрического диоксида урана в твэлах ЭГК.
2. Разработанная кинетическая модель и полученные с ее помощью данные по выносу изотопов из оксидного топлива на нестационарных режимах работы.
3. Математическая модель и результаты моделирования распределения концентраций ПД и ПАЦ в МЭЗ вдоль ЭГК, компьютерное моделирование распределения среднего давления нуклидов ^{138}I , ^{138}Xe , ^{138}Cs , ^{138}Ba и соединений CsI, BaI в газовой фазе МЭЗ и ВЦС для ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями МЭЗ и твэла.
4. Разработанная модель распределения ПД для условий испытаний ЭГК в ПК с использованием данных по элементному и количественному составу ПД, образующихся в топливе во время испытаний.

5. Полученные данные распределения средних давлений изотопов ПД Ва, Sr и I в МЭЗ ЭГК на форсированном режиме с использованием результатов расчетов потоков по разработанной программе.

6. Результаты общего анализа полученных данных применительно к разным конструктивным схемам ЭГК, а так же результаты оценки влияния совместной адсорбции цезия и бария на выходную мощность ЭГК с разделенными и сообщающимися полостями МЭЗ и твэла.

Достоверность научных положений, результатов и выводов

Достоверность научной работы обоснована применением общепризнанных методов моделирования, широко используемых в мире оценочных моделей, и всесторонним тестированием расчетных программ. Достоверность полученных данных также подтверждается корреляцией с имеющимися экспериментальными данными и результатами других исследователей.

Личный вклад соискателя

Соискатель принимал непосредственное участие в обсуждении и постановке задачи по моделированию термодинамики и кинетики поведения ПД и ПАЦ в ЭГК, а так же по оценке влияния ПД на выходную мощность ЭГК. Разработка программного обеспечения и алгоритмов, компьютерные эксперименты выполнены соискателем. Анализ полученных результатов и подготовка публикаций выполнена с соавторами.

Апробация работы

Основные положения работы представлены и обсуждены: на конференциях МИФИ «Молодежь и наука» 2007 и 2008, Москва; на конференции “Термоэмиссионное преобразование энергии. Материалы. Технология” 2009, Подольск; на научной сессии НИЯУ «МИФИ» 2010, Москва; на международной научно-практической конференции «Теория и практика в физико-математических науках» 2012, Москва; на международной научно-практической конференции «Естественные науки: вопросы биологии, химии, физики» Новосибирск, 2012 г.

Публикации

По теме диссертации опубликовано 12 работ в научных журналах, сборниках трудов конференций и семинаров, в том числе две статьи в журналах, рекомендованных ВАК.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во *введении* обоснована актуальность рассмотрения термодинамики и кинетики поведения ПД и ПАЦ в многоэлементном ЭГК с сообщающимися и отдельными полостями МЭЗ и твэла. Сформулирована цель работы, указана ее новизна и практическая значимость, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В *первой главе* приведена принципиальная схема ЭГК, рассмотрены основные физические и физико-химические процессы, определяющие вынос продуктов в МЭЗ; обозначены ПД, максимально влияющие на работу выхода электронов из материала эмиттера.

Во *второй главе* приведены методики и результаты модельного расчета радиального распределения химического и фазового состава ПД в топливном сердечнике из диоксида урана в условиях работы термоэмиссионного ЭГК, а также парциальные давления компонентов газовой фазы в центре топлива. Радиальное распределение состава и температуры оксидного топлива, содержащего ПД, приводит к значительному различию в величинах концентраций и парциальных давлений компонентов на периферии и в центре топлива. Это имеет существенное значение в условиях работы многоэлементного ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла. Для расчетов радиального и аксиального распределения ПД в топливе использовалась приближенная методика расчета объемного распределения тепловыделения:

$$q(r, z) = \frac{Q}{C} \cdot \left(a_1 + a_2 \cdot \exp\left(-\frac{r_f - r}{\lambda}\right) \right) \cdot \cos\left(\frac{\pi z}{H_{эфф}}\right) \quad (1),$$

$$\beta(r, z, \tau) = q(r, z) \cdot \tau \quad (2), \quad C m_i(r, z, \tau) = \beta(r, z, \tau) \cdot Y_i \cdot C_U^0 \quad (3),$$

$$C = 2\pi \int_{r_0}^{r_f} \cdot \left(a_1 + a_2 \cdot \exp\left(-\frac{r_f - r}{\lambda}\right) \right) \cdot r dr \int_{-L/2}^{L/2} \cdot \cos\left[\left(\frac{\pi z}{H_{эфф}}\right)\right] \cdot dz \quad (4),$$

где Q – полная тепловая мощность ЭГК; a_1, a_2 – доли вклада в тепловыделение при делении на "быстрых" и "тепловых" нейтронах; r_f – наружный радиус топливного сердечника; r_0 – внутренний радиус топливного сердечника; L – длина топливного сердечника; λ – параметр, характеризующий среднюю длину пробега "тепловых" нейтронов в материале сердечника; $H_{эфф}$ – эффективная высота активной зоны реактора; $\beta(r, z, \tau)$ – выгорание; r, z – координаты; τ – время; $q(r, z)$ – объемное тепловыделение; Y_i – выход i -го элемента при делении; $C m_i(r, z, \tau)$ – концентрация i -ого ПД; C_U^0 – начальная концентрация урана.

Количество кислорода в каждой точке оксидного топлива варьировалось в зависимости от исходного стехиометрического состава и его перераспределения в температурном поле сердечника. Результаты оценок по формуле использовались в качестве исходных данных для расчета изменения фазового состава достехиометрического оксидного топлива. Для расчета состава и парциальных давлений компонентов над диоксидом урана, содержащим ПД, был использован программный комплекс АСТРА-4 с дополнением базы данных программного комплекса термодинамическими свойствами конденсированных и газообразных веществ Ru, Rh, Tc, URu₃, URh₃, UPd₃, Cs₂Te, PdTe, BaTe, LaTe, LaSe, USe, CeRu₂, Rh₃Te₂, Cs₂UO₄, RuO₂, RuO₄, RuO₃, Cs₂MoO₄, BaUO₃ и SrUO₃, а также теплотами растворения BaO, SrO, ZrO₂, La₂O₃, CeO₂, Nd₂O₃, Y₂O₃, Cs и Te в диоксиде урана.

В результате расчетов получены данные о составе топлива, приведенные в табл. 1, которые были использованы для дальнейшего моделирования выхода ПД в газовую фазу. Результаты расчета парциальных давлений компонентов газовой фазы над достехиометрическим оксидным топливом в топливной полости ($r=r_0$) при давлении пара

цезия ^{227}Pa при различном выгорании топлива твэла ЭГК показали, что равновесная газовая фаза в топливной полости представляет собой многокомпонентную систему, содержащую более 50 компонентов. Давление всех компонентов газовой фазы с ростом выгорания меняются. Наибольшее давление имеют йодид цезия, йод и диодид бария. Парциальное давление кислорода и его соединений с лантаноидами, иттрием и цирконием слабо возрастает (примерно в 1,5 – 4 раза), а щелочноземельных металлов и их оксидов менее, чем на порядок, поскольку возрастает их концентрация в оксидном твердом растворе.

Таблица 1. Концентрации (мас.%) конденсированных фаз в достехиометрическом оксидном топливе вблизи поверхности топливной полости ($T = 2400\text{ K}$, $r = r_0$) и на периферии ($T = 2100\text{ K}$, $r = r_f$) при различном выгорании топлива

Выгорание, %		0,12		1,1	
		Вблизи топливной полости	Периферия топливного сердечника	Вблизи топливной полости	Периферия топливного сердечника
Оксидный твердый раствор $\text{U}_{1-y}\text{Me}_y\text{O}_{2-x}$ *		99,9996	99,9629	99,9922	99,5260
Твердый раствор интерметаллидов UM_3 ($M=\text{Ru}, \text{Rh}, \text{Pd}$)		0,0003	0,0021	0,0028	0,0153
Металлическая фаза	Mo	0,0024 **	0,0131	0,0209**	0,0122
	Tc	0,0007**	0,0039	0,0062**	0,0345
	Ru	0,0018**	0	0,016**	0,0888
	Rh	0,0001**	0	0,0011**	0
Отдельные фазы	MoO_2	0	0	0	0,1333
	Rh_3Te_2	0	0,0013	0	0,0114
	CeRu_2	0	0,0168	0	0
Твердый раствор $(\text{Ba},\text{Sr})(\text{U},\text{Zr})\text{O}_3$	BaUO_3	0	0	0	0,1013
	BaZrO_3	0	0	0	0,0291
	SrUO_3	0	0	0	0,00003
	SrZrO_3	0	0	0	0,00078
Газовая фаза		0,0001	0,0001	0,005	0,04729

* $\text{Me} = \text{Y} + \text{Zr} + \text{La} + \text{Ce} + \text{Nd} + \text{Ba} + \text{Sr} + \text{Cs} + \text{Te}$.

** Находятся в оксидном твердом растворе $\text{U}_{1-y}\text{Me}_y\text{O}_{2-x}$.

Третья глава посвящена расчету потоков ПД (Ba, Sr, I) из топливной полости каждого ЭГЭ в МЭЗ на форсированном и номинальном режимах и оценке распределения среднего давления Ba, Sr и I в МЭЗ. Выбор изотопов Ba, Sr, I осуществлялся путем анализа цепочек радиоактивного распада осколков бинарного деления ^{235}U тепловыми нейтронами, а также исходя из простого предположения, что за время диффузии в топливе с характерным размером столбчатой структуры 100 – 200 мкм при температуре не более 2400 К они должны оставаться изотопами этих элементов, т. е. не претерпеть распад.

Радиальное распределение концентрации изотопов ПД в топливном сердечнике находилось из решения следующего одномерного уравнения диффузии:

$$\frac{\partial C_{j,i}}{\partial t} = \varphi_{j,i} - \lambda_{j,i} \cdot C_{j,i} + D_j \cdot \frac{\partial^2 C_{j,i}}{\partial r^2} + \left(\frac{D_j}{r} + \frac{\partial D_j}{\partial r} \right) \cdot \frac{\partial C_{j,i}}{\partial r} \quad (5),$$

где $\varphi_{j,i}$ – скорость образования i -ого изотопа j -ого ПД; $\lambda_{j,i}$ – постоянная распада i -ого изотопа j -ого ПД; $C_{j,i}(r,t)$ – концентрация i -ого изотопа j -ого ПД; D_j – коэффициент диффузии j -ого ПД в диоксиде урана; t – время; r – радиус. В модели учитываются радиальные зависимости скорости образования изотопов и температуры топлива. Граничные условия для одного ЭГЭ с совмещенными полостями МЭЗ и твэла на границе раздела фаз топливо-эмиттер записываются следующим образом:

$$D_j \cdot \frac{dC_{j,i}}{dr} \Big|_{r=r_f} = 0 \quad (6), \quad \text{а в изотермической топливной полости:}$$

$$S \cdot D_j \cdot \frac{dC_{j,i}}{dr} \Big|_{r=r_o} = -\sum_i (F_{j,i} \cdot P_{j,i}) \quad (7), \quad \text{где } S \text{ – площадь поверхности изотермической}$$

топливной полости; $F_{j,i}$ – диффузионная проводимость ГОУ по i -ому изотопу j -ого ПД; $P_{j,i}$ – парциальное давление i -ого изотопа j -ого ПД в изотермической топливной полости; r_o – радиус изотермической топливной полости; r_f – радиус топливного сердечника. Граничные условия означают отсутствие потока ПД через эмиттер и выход их в МЭЗ путем диффузии в цезиевом паре через ГОУ с заданной проводимостью. Оценки показывают, что время диффузии бария в диоксиде урана на расстояние 50 мкм при температуре 2400 К составляет ~ 25 ч, стронция – 3 ч, йода ~ 1 ч. С уменьшением температуры топлива время диффузии увеличивается. Если сумма периодов полураспада предшественников данного изотопа находится в пределах 1 – 30 ч, то такой изотоп включался в расчеты. Из расчетов были исключены короткоживущие изотопы бария, стронция и йода с периодом полураспада менее одного часа и с кумулятивными выходами менее 10^{-5} . Из этих соображений были выбраны изотопы бария – ^{138}Ba , ^{139}Ba , ^{140}Ba , стронция – ^{88}Sr , ^{89}Sr , ^{90}Sr , йода – ^{129}I , ^{130}I , ^{131}I , ^{133}I , ^{135}I . Потоки изотопов ПД рассчитывались по граничному условию, полученные данные аппроксимировались зависимостью от времени. Расчеты потоков

ПД проводили при следующих параметрах: а) форсированный режим работы ЭГК: время – 8760 ч, скорость выгорания – $1,3 \cdot 10^{-4}$ % FIMA/ч, максимальная температура топлива – 2400 К, температура топлива вблизи эмиттера – 2100 К, температура ГОУ – 2400 К, давление Cs – 1-2 торр (133,32 – 266,4 Па); б) номинальный режим работы ЭГК: время – 52560 ч, скорость выгорания – $7 \cdot 10^{-5}$ % FIMA/ч, максимальная температура топлива – 2100 К, температура топлива вблизи эмиттера – 1800 К, температура ГОУ – 2100 К, давление Cs – 133,32 – 266,4 Па.

Таблица 2. Результаты расчетов суммарного потока ПД из оксидного топлива через ГОУ в МЭЗ ЭГК (л Па/с)

Изотопы	Форсированный режим	Начало номинального режима	Конец ресурса
$^{88}\text{Sr}, ^{89}\text{Sr}, ^{90}\text{Sr}$	$2,9 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-8}$	$7,2 \cdot 10^{-7}$
$^{138}\text{Ba}, ^{139}\text{Ba}, ^{140}\text{Ba}$	$4,1 \cdot 10^{-6}$	$1,3 \cdot 10^{-7}$	$9,6 \cdot 10^{-7}$
$^{129}\text{I}, ^{130}\text{I}, ^{131}\text{I}, ^{133}\text{I}, ^{135}\text{I}$	$2,8 \cdot 10^{-6}$	$3,6 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-6}$

Результаты расчетов суммарного потока ПД показали, что поток из оксидного топлива через ГОУ в МЭЗ ЭГК в конце форсированного режима достигает локального максимума, затем снижается в начале номинального режима и постепенно растет, достигая максимума в конце ресурса.

Моделирование поведения изотопов Ba, Sr и I в МЭЗ в парах цезия в девятиэлементном ЭГК на форсированном режиме проводилось с использованием одномерного нестационарного уравнения диффузии с точечными источниками:

$$\frac{\partial P}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + \frac{R \cdot T}{S} \cdot \sum_k v_k(t) \cdot \delta(x - x_k) - \lambda \cdot P \quad (8),$$

где x – координата вдоль ЭГК; t – время; $P(x, t)$ – среднее парциальное давление изотопа в МЭЗ ЭГК; D – коэффициент бинарной диффузии изотопа в парах Cs; S – площадь сечения МЭЗ; $v_i(t)$ – поток изотопа из i -ого ЭГЭ; λ – постоянная β^- распада изотопа; T – средняя температура пара Cs в МЭЗ; R – газовая постоянная; $\delta(x-x_i)$ – дельта-функция; i – номер ЭГЭ; x_i – координата выхода изотопа из ЭГЭ. Граничные условия для базовой схемы ЭГК ставили, исходя из отсутствия потока изотопов в тупиковой части ЭГК и нулевого давления на выходе из ЭГК. Дельта-функция представлялась в виде: $\delta(x-x_i) = \sqrt{500/\pi} \cdot \exp(-500 \cdot (x-x_i))$ (9).

Анализ полученных данных показывает, что суммарные давления бария, стронция и йода в МЭЗ ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и ТВЭЛ на форсированном режиме работы не превышает соответственно $1,3 \cdot 10^{-7}$ Па, $6,6 \cdot 10^{-8}$ Па, $6,6 \cdot 10^{-8}$ Па. Такие низкие парциальные давления изотопов не должны влиять на ВАХ ЭГК.

В *четвертой главе* проведен термодинамический анализ и приведены результаты модельного расчета химического и фазового состава ПД в достехиометрическом оксидном топливе и расчет парциальных давлений компонентов в топливной полости в условиях работы ЭГК в составе ПК с использованием данных по элементному и количественному составу ПД, образующихся в топливе. Оценка количественного состава основных 18 ПД (Se, Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Te, I, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Pr), образующихся в ЭГК при испытаниях в составе ПК, была выполнена в соответствии с хронограммой тепловой мощности ЭГК с первого до шестого цикла. Термодинамический анализ изменения фазового состава топлива при испытаниях ЭГК в составе ПК проводили с помощью многоцелевого программного комплекса АСТРА-4. Исходный стехиометрический коэффициент топлива $O/U = 1,997$. Анализ полученных данных концентраций (мас.%) конденсированных фаз $U_{1-y}Me_yO_{2-x}$, $(Ba,Sr)(U,Zr)O_3$, $U(Rh,Pd)_3$ и CsI в достехиометрическом оксидном топливе вблизи поверхности центральной топливной полости (ЦТП) ($r = r_0$) в середине 5-ого ЭГЭ при давлении пара цезия ≈ 267 Па в зависимости от времени на 6-ом цикле испытаний ЭГК показал, что при температурах выше 1800 К топливо вблизи поверхности топливной полости состоит в основном из матричного твердого раствора $U_{1-y}Me_yO_{2-x}$ и небольшого количества интерметаллидов $CeRu_2$, $U(Rh,Pd)_3$ ($\sim 4 \cdot 10^{-3}$ мас.%). Молибден и технеций при температурах ~ 2200 К примерно поровну распределены между твердым раствором $U_{1-y}Me_yO_{2-x}$ и отдельной металлической фазой твердого раствора Мо-Тс.

При анализе результатов расчета парциальных давлений CsI , BaI и SrI в топливной полости в различные моменты времени шестого цикла испытаний выяснилось, что равновесные парциальные давления йодидов цезия, бария и стронция в центральной топливной полости находятся на уровне 933-1333, 1,33 и 2,66 Па и, в целом, возрастают в ресурсе. На рисунке 1 приведена зависимость парциального давления CsI (как имеющего максимальное парциальное давление) в топливной полости ЭГЭ №5 от времени.

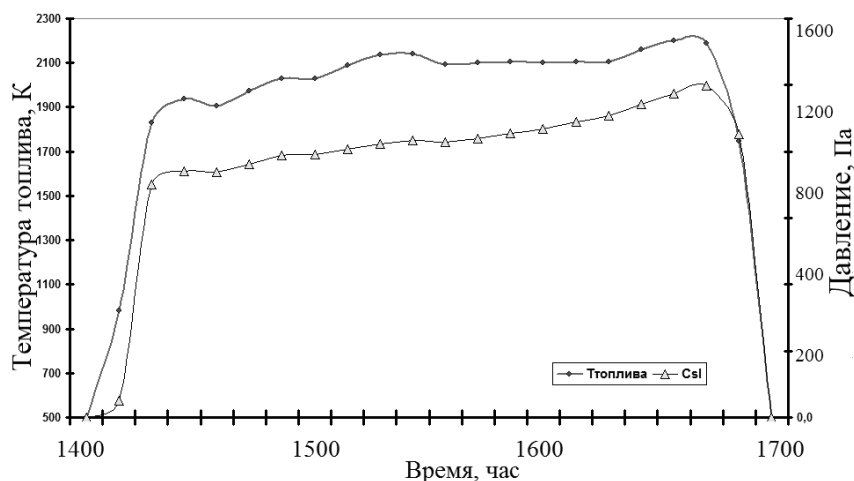


Рис. 1 Зависимость парциального давления CsI в топливной полости ЭГЭ № 5 от времени

В *пятой главе* представлена разработанная диффузионная модель выноса изотопов бария и йода из оксидного топлива в МЭЗ на нестационарных режимах работы многоэлементного ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ. Приведены и обсуждены полученные результаты. Как показали модельные термодинамические расчеты, наибольшие давления среди ПД на шестом цикле испытаний могут иметь CsI, Sr, Ba, I, SrI, BaI, BaI₂, SrI₂, BaO и SrO. При попадании в МЭЗ работу выхода электронов в вакууме из вольфрама могут изменить Ba, Sr, а также I. Причем барий и стронций снижают вакуумную работу выхода из поликристаллического вольфрама до 1,7 и 2,5 эВ соответственно, а йод повышает до 4,9 эВ. В связи с этим, несомненный интерес представляет оценка кинетики совместного поведения щелочноземельных ПД и галогенов в оксидном топливе, парциальных давлений компонентов в топливной полости и их потоков через ГОУ в МЭЗ на нестационарных режимах работы. Перераспределение ПД Ba и I в диоксиде урана может быть описано полным уравнением неразрывности, в котором учтено образование изотопов элементов при

делении урана по цепочке распада и сам распад: $\frac{\partial C_i}{\partial t} = \dot{\phi}_i - \lambda_i \cdot C_i - \text{div} J_i$ (10), где $\dot{\phi}_i$ –

скорость образования изотопа ПД; λ_i – постоянная распада; C_i – концентрация i -ого изотопа ПД; J_i – поток i -ого ПД. Поток ПД может быть определен

уравнением: $J_i = -\frac{(D_i \cdot C_i)}{(k \cdot T)} \cdot \text{grad} \mu_i - \frac{(D_i \cdot C_i \cdot Q_i)}{(k \cdot T^2)} \cdot \text{grad} T$ (11), где D_i – коэффициент

(изотопной) диффузии i -ого ПД в топливной матрице; μ_i – химический потенциал i -ого ПД; Q_i – эффективное тепло переноса i -ого ПД. Граничные условия для одного ЭГЭ с совмещенными полостями МЭЗ и твэл записываются следующим образом: на

границе раздела фаз топливо-эмиттер $D_i \cdot \frac{dC_i}{dr} \Big|_{r=r_1} = 0$ (12), а в изотермической

топливной полости $S \cdot D_i \cdot \frac{dC_i}{dr} \Big|_{r=r_0} = -\sum_j (F_{ij} \cdot P_{ij})$ (13), где S – площадь

поверхности изотермической топливной полости; F_{ij} – проводимость ГОУ по ij -ому компоненту; P_{ij} – парциальное давление ij -ого компонента в изотермической топливной полости; r_0 – радиус изотермической топливной полости; r_1 – радиус топливного сердечника. Граничные условия означают отсутствие потока ПД через эмиттер и выход их в МЭЗ через ГОУ с заданной проводимостью. Зависимости парциальных давлений Ba и I от времени, рассчитанные по термодинамической и диффузионной моделям, подобны. Однако, уровень парциальных давлений, рассчитанных по диффузионной модели, на несколько порядков ниже за счет выхода компонентов через ГОУ в МЭЗ. Максимальное давление Ba составляет $\sim 10^{-6}$ Па, а

йода $\sim 10^{-5}$ Па. Характерно резкое увеличение парциальных давлений как I, так и Ba в начале выхода на режим испытаний и некоторое возрастание давления на протяжении испытаний, связанное с ростом температуры топлива, выгорания и концентрации компонентов на поверхности топливной полости. Колебания скорости выгорания и, соответственно, температуры топлива (в районе 1450 – 1480 ч) вызывают симбатное изменение парциальных давлений Ba и I. Сравнение полученных зависимостей парциальных давлений I, Ba, BaO, BaI и BaI₂ от времени, рассчитанных по диффузионной модели, показало, что в порядке снижения давлений компоненты газовой фазы топливной полости расположены следующим образом: I, BaO, Ba, BaI, BaI₂. Характер изменения парциальных давлений BaO, BaI, BaI₂ аналогичен изменению давлений бария и йода в топливной полости в процессе испытаний. Следует отметить, что давления йодидов бария более чем на 7 порядков ниже давления оксида бария. Рассчитанный характер изменения величин потоков компонентов через ГОУ в МЭЗ в процессе испытаний повторяет характер изменения соответствующих парциальных давлений в топливной полости. Полученные данные были использованы для оценок зависимостей максимальных давлений Ba и I в МЭЗ ЭГК от времени. Следует обратить внимание на то, что максимальные давления достигаются в тупиковой части МЭЗ.

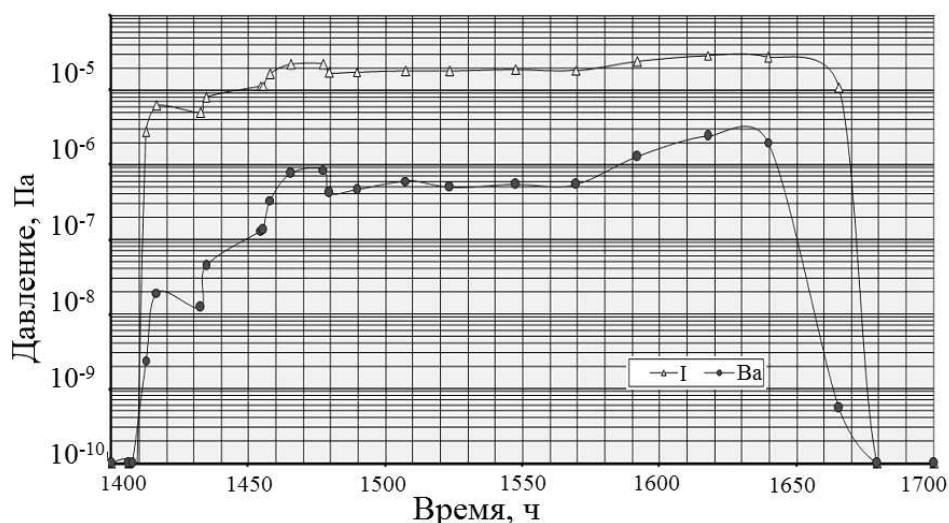


Рис. 2 Зависимость максимальных давлений I и Ba в МЭЗ ЭГК от времени

Результаты расчетов приведены на рис. 2. Видно, что максимальное давление йода в МЭЗ ЭГК не превышает $\sim 4 \cdot 10^{-5}$ Па, а бария $\sim 3 \cdot 10^{-6}$ Па и достигается при максимальной скорости выгорания $9,5 \cdot 10^{-5} \%$ /ч и максимальной температуре топлива 2200 К. Аналогичные оценки, выполненные для BaI, показывают, что его максимальное давление в МЭЗ не превышает 10^{-13} Па. Данные по максимальному давлению Ba в МЭЗ ЭГК, в свою очередь, использовали для оценок степени покрытия барием поверхности коллектора. Оценка показала, что в среднем максимальная

степень покрытия не превышает 0,1, что не должно заметным образом влиять на ВАХ ЭГК.

Шестая глава описывает разработанную модель распределения ПАЦ вдоль ЭГК. Кроме ПД на стабильность выходных характеристик электродов так же влияют ПАЦ. Это влияние существенно зависит от их количества на поверхности электродов, что, в свою очередь, зависит от парциального давления компонентов в газовой фазе. Основной вклад в наработку продуктов активации ^{133}Cs в ЭГК и в вакуумно-цезиевой системе вносит реакция (n,γ): $^{133}\text{Cs} (n, \gamma) ^{134m}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Cs} \rightarrow ^{134}\text{Ba}$. Период полураспада ^{134m}Cs составляет 2,914 ч, а ресурс ЭГК и реактора – не менее одного года, поэтому во внимание была принята диффузия только двух изотопов: ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2,062$ года) и ^{134}Ba в парах цезия (^{133}Cs). Для макроскопического описания процессов переноса изотопов ^{134}Cs и ^{134}Ba в диффузионно-проточной схеме система дифференциальных уравнений неразрывности в приближении независимой диффузии для ЭГК имеет вид:

$$\frac{\partial P_1}{\partial t} = D_1 \cdot \frac{\partial^2 P_1}{\partial x^2} + \sum_i \sigma_i \cdot \varphi_i \cdot P - \lambda \cdot P_1, \quad \frac{\partial P_2}{\partial t} = D_2 \cdot \frac{\partial^2 P_2}{\partial x^2} + \lambda \cdot P_1 \quad (14),$$

а для трактов (ВЦС)

$$\frac{\partial P_1^1}{\partial t} = D_1^1 \cdot \frac{\partial^2 P_1^1}{\partial x^2} + \sum_i \sigma_i \cdot \varphi_i \cdot P - \lambda \cdot P_1^1 - v \cdot \frac{\partial P_1^1}{\partial x} \quad (15),$$

$$\frac{\partial P_2^1}{\partial t} = D_2^1 \cdot \frac{\partial^2 P_2^1}{\partial x^2} + \lambda \cdot P_1^1 - v \cdot \frac{\partial P_2^1}{\partial x} \quad (16),$$

где P_k, P_k^1 – парциальные давления изотопов ^{134}Cs и ^{134}Ba в МЭЗ ЭГК и трактах соответственно; D_k, D_k^1 – коэффициенты бинарной диффузии k -ого изотопа в цезиевом паре в МЭЗ ЭГК и трактах соответственно; P – давление пара цезия ^{133}Cs ; T – время; x – координата; D_k – коэффициенты бинарной диффузии k -ого изотопа в цезиевом паре; v – скорость течения пара цезия; λ – постоянная β^- распада ^{134}Cs ; $\sum_i \sigma_i \cdot \varphi_i$ – сумма по группам нейтронов произведений сечений радиационного захвата на средний поток нейтронов. Коэффициенты бинарной диффузии изотопов ^{134}Cs и ^{134}Ba в цезиевом паре рассчитывались по формуле:

$$D_k = \frac{8\sqrt{2}}{3} \cdot \left(\frac{k \cdot T}{\pi} \right)^{3/2} \cdot \frac{1}{P \cdot (d_{Cs} + d_k)^2} \cdot \sqrt{\frac{1}{m_{Cs}} + \frac{1}{m_k}} \quad (17),$$

где k – постоянная Больцмана; T – температура пара цезия; d_k – эффективные диаметры k -ых атомов; m_k – массы k -ых атомов. Граничные условия для уравнений ставились, исходя из отсутствия потоков изотопов в тупиковой части МЭЗ и равенства давлений по каждому изотопу, рассчитываемых в точке выхода из МЭЗ ЭГК и входа в цезиевый тракт. Расчеты показали, что максимальное давление изотопа ^{134}Ba в тупиковой части МЭЗ ЭГК в конце 7-летнего ресурса не превышает $3 \cdot 10^{-8}$ Па

($P_{Cs} = 665$ Па). При расходе Cs 0,088 г/сутки ($P_{Cs} = 133,3$ Па) максимальное давление ^{134}Ba в МЭЗ в конце ресурса находится на уровне $9 \cdot 10^{-10}$ Па, как показано на рис. 3.

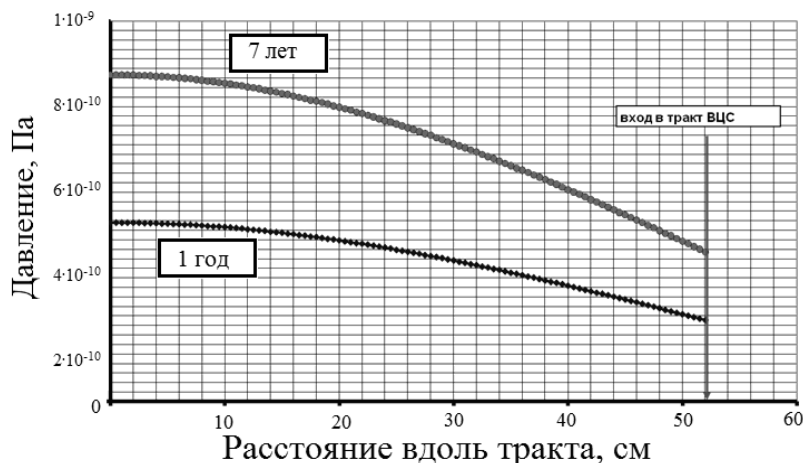


Рис. 3 Распределение давления изотопа Ba по тракту ВЦС. А – испаритель, Б – конденсатор

В *седьмой главе* дана оценка влияния ПД на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК в зависимости от различных конструктивных схем. Приведена разработанная модель распределения давления ПД в газовой фазе МЭЗ и ВЦС, а так же рассмотрена кинетика совместной адсорбции Cs, Ba и Sr и ее влияние на работу выхода вольфрамового коллектора и выходную мощность ЭГК. Концентрации ПД в газообразном цезии ВЦС зависят от схемы подачи пара цезия в МЭЗ ЭГК, геометрических характеристик системы и ее температуры. Проведено моделирование распределения концентрации ПД в МЭЗ вдоль трактов ВЦС и сравнительная оценка влияния ПД на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК. При моделировании распределения давления ПД в газовой фазе МЭЗ и ВЦС рассматривались 3 варианта исполнения ЭГК, приведенных на рис. 4: (а) ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС; (б) ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и двухсторонним выводом ПД в ВЦС и (в) ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС.

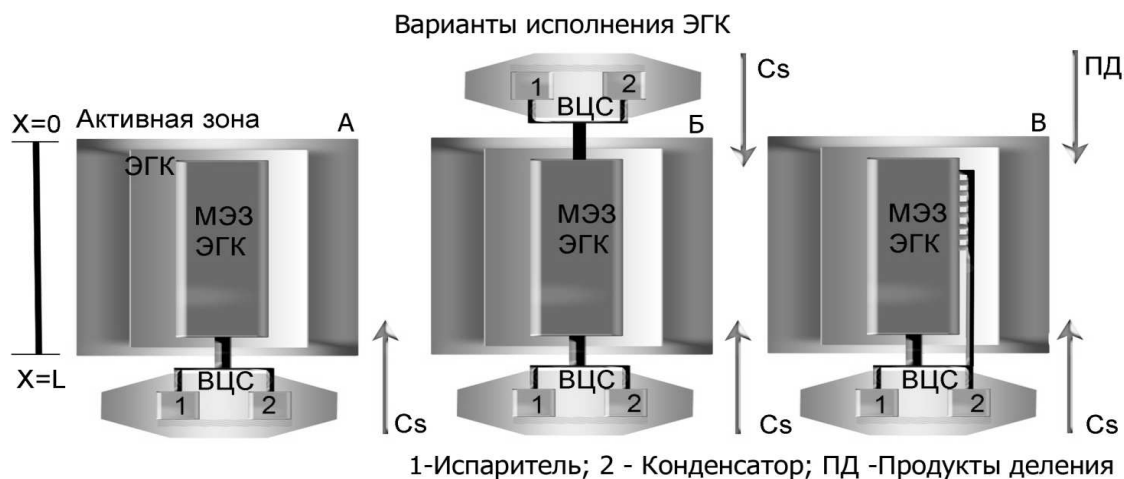


Рис. 4 Схематическое изображение различных вариантов исполнения ЭГК

Для сравнительного анализа и моделирования распределения давления ПД в газовой фазе МЭЗ и ВЦС для ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями МЭЗ и твэла были выбраны стабильный нуклид ^{138}Ba и его предшественники по цепочке β -распада. Нуклид ^{138}Ba образуется непосредственно при делении урана и по цепочке β -распада ^{138}I . Для описания процессов переноса нуклидов в парах цезия в МЭЗ ЭГК и ВЦС использована система дифференциальных уравнений неразрывности в приближении независимой диффузии.

Для ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла имеем следующие системы уравнений, начальных и граничных условий для распределения среднего давления нуклидов в МЭЗ вдоль ЭГК:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial P_i}{\partial t} &= D_{i,Cs} \cdot \frac{\partial^2 P_i}{\partial x^2} + \sum_k \frac{v_{i,k} \cdot R \cdot T}{S_g} \cdot \delta(x - x_k) - \lambda_i \cdot P_i + \sum_{j \neq i} \lambda_j \cdot P_j \\ P_i(0, x) &= 0 \quad P_i(t, L) = P_i^*(t, y_0) \quad \frac{\partial P_i(t, 0)}{\partial x} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (18),$$

для распределения среднего давления нуклидов в тракте ВЦС:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial P_i^*}{\partial t} &= D_{i,Cs}^* \cdot \frac{\partial^2 P_i^*}{\partial y^2} - \lambda_i \cdot P_i^* + \sum_{j \neq i} \lambda_j \cdot P_j^* + \frac{v_i^* \cdot R \cdot T^*}{S_g^*} \cdot \delta(y - y_0) - v \cdot \frac{\partial P_i^*}{\partial y} \\ P_i^*(0, y) &= 0 \quad P_i^*(t, 0) = PE_i(t) \quad P_i^*(t, L^*) = PC_i(t) \end{aligned} \right\} \quad (19).$$

Для ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла и выводом нуклидов из топливной полости в ВЦС, минуя МЭЗ ЭГК, имеем следующие системы уравнений, начальных и граничных условий для распределения среднего давления нуклидов в МЭЗ вдоль ЭГК:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial P_i}{\partial t} &= D_{i,Cs} \cdot \frac{\partial^2 P_i}{\partial x^2} - \lambda_i \cdot P_i + \sum_{j \neq i} \lambda_j \cdot P_j \\ P_i(0, x) &= 0 \quad P_i(t, L) = P_i^*(t, y_0) \quad \frac{\partial P_i(t, 0)}{\partial x} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (20),$$

для распределения среднего давления нуклидов в тракте ВЦС:

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial P_i^*}{\partial t} &= D_{i,Cs}^* \cdot \frac{\partial^2 P_i^*}{\partial y^2} - \lambda_i \cdot P_i^* + \sum_{j \neq i} \lambda_j \cdot P_j^* + \frac{v_i^* \cdot R \cdot T^*}{S_g^*} \cdot \delta(y - y_1) + \frac{D_{i,Cs}^* \cdot S_g}{S_g^*} \cdot \frac{\partial P_i^*}{\partial y} \cdot \delta(y - y_0) - v \cdot \frac{\partial P_i^*}{\partial y} \\ P_i^*(0, y) &= 0 \quad P_i^*(t, 0) = PE_i(t) \quad P_i^*(t, L^*) = PC_i(t) \end{aligned} \right\} \quad (21).$$

В приведенных уравнениях $P_i, P_i^* (i, j=1, 2, \dots, n)$ – парциальные давления нуклидов в МЭЗ и ВЦС; k – номер ЭГЭ; t – время; x, y – координаты вдоль МЭЗ ЭГК и тракта ВЦС; x_k – координата k -ого точечного источника выхода нуклида в МЭЗ ЭГК; y_0 – координата точечного источника входа нуклидов из МЭЗ ЭГК в тракт ВЦС; $D_{i,Cs}, D_{i,Cs}^*$ – коэффициенты бинарной диффузии i -ого нуклида в цезиевом паре в МЭЗ и ВЦС; λ_i – постоянная β^- распада i -ого нуклида; $v_{i,k} = v_{i,k}(t)$ – поток i -ого нуклида через ГОУ в МЭЗ, для k -ого ЭГЭ; $v_i^* = v_i(t)$ – суммарный поток i -ого нуклида из ЭГК в ВЦС; v – скорость течения пара цезия в тракте ВЦС; S_g – площадь сечения

межэлектродного зазора, S_g^* – площадь сечения тракта ВЦС; R – газовая постоянная, T – температура газовой среды МЭЗ; T^* – температура газовой среды ВЦС; $\delta(x-x_k)$ – дельта- функция; $PE_i(t)$, $PC_i(t)$ – парциальные давления паров нуклидов в цезиевом испарителе и конденсаторе, y_l – координата точечного источника входа нуклидов из ЭГК в тракт ВЦС; y_0 – координата точечного источника входа нуклидов из тракта ВЦС в МЭЗ ЭГК. Коэффициенты бинарной диффузии нуклидов в цезиевом паре оценивались по методике из главы 6. Анализ результатов расчетов распределения давлений нуклидов ^{138}I , ^{138}Xe , ^{138}Cs , ^{138}Ba и их соединений CsI и BaI в МЭЗ показывает, что наибольшие давления реализуются в ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС. В то же время, различие давлений стабильного нуклида бария для ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла ($2,2 \cdot 10^{-7}$ Па) и двухсторонним выводом ПД в ВЦС ($4,5 \cdot 10^{-7}$ Па) не очень значительно. Степени покрытия поверхности электродов адсорбированными атомами Cs, Ba и Sr можно получить в результате решения системы обыкновенных дифференциальных уравнений, описывающих локальный баланс адатомов на поверхности с учетом потоков хемосорбции и десорбции. Результаты расчета показали, что степень покрытия коллектора барием монотонно растет, а цезием – монотонно падает со временем. Это происходит вследствие вытеснения адатомов бария (за счет их большей энергии связи (десорбции) с поверхностью) адатомов цезия при совместной адсорбции на поверхности вольфрама. Изменение работы выхода электронов из поликристаллического вольфрама в зависимости от степеней покрытия цезием и барием рассчитывалось с использованием модели пятнистой поверхности и модели Гифтопулоса-Левина. В соответствии с моделью пятнистой поверхности работа выхода коллектора покрытого цезием и барием представляется в виде: $\varphi_c(\vartheta) = (1-\vartheta) \cdot \varphi_{Cs} + \vartheta \cdot \varphi_{Ba}$ (22), где φ_{Cs} , φ_{Ba} – работы выхода поликристаллического вольфрама при монослойном покрытии цезием и барием; θ – степень покрытия поверхности коллектора барием; $(1-\theta)$ – степень покрытия поверхности коллектора цезием. Согласно модели Гифтопулоса-Левина работа выхода коллектора, покрытого цезием и барием, записывается в виде:

$$\varphi_c^*(\theta) = (1-\theta) \cdot \varphi_{Cs} \cdot \left[1 - G(1-\theta) \cdot \left[1 - \frac{k1 \cdot (1-\theta)}{1 + k2 \cdot (1-\theta)^{3/2}} \right] \right] + \varphi_{Ba} \cdot \theta \cdot \left[1 - G(\theta) \cdot \left[1 - \frac{k3 \cdot \theta}{1 + k4 \cdot (\theta)^{3/2}} \right] \right] \quad (23),$$

где $G(\theta) = 1 - 3 \cdot \theta^2 + 2 \cdot \theta^3$; $k1$, $k2$, $k3$, $k4$ – коэффициенты, характеризующие дипольные моменты и поляризуемость адатомов цезия и бария, а также геометрию их расположения на поверхности поликристаллического вольфрама. Результаты показывают, что в модели пятнистой поверхности работа выхода коллектора линейно возрастает с увеличением степени покрытия барием, а в модели Гифтопулоса-Левина наблюдается некоторое снижение работы выхода при степенях покрытия до

0,08. Установлено, что при максимальном давлении бария в МЭЗ не более $4,45 \cdot 10^{-6}$ Па максимальное изменение работы выхода коллектора в цезиевом паре ($T_{\text{коллектора}} = 923 \text{ К}$, $P_{\text{Cs}} = 160 \text{ Па}$) за счет адсорбции бария составляет $\Delta\phi_c = -0.034 \text{ эВ}$ при расчетах по модели Гифтопулоса-Левина и $\Delta\phi_c = +0.027 \text{ эВ}$ – по модели пятнистой поверхности. Изменение выходной электрической мощности девятиэлементного ЭГК рассчитывалось по формуле: $\Delta W = 9 \cdot I \cdot \Delta\phi_c$, где I – ток ЭГК; $\Delta\phi_c$ – изменение работы выхода коллектора одного ЭГЭ.

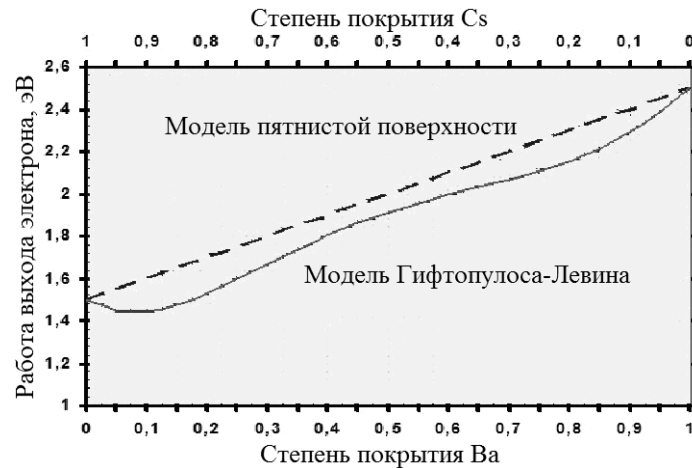


Рис. 5 Работа выхода коллектора из поликристаллического вольфрама в зависимости от степеней покрытия цезием и барием

Предполагалось, что работа выхода эмиттера остается неизменной из-за очень низкой (по нашим оценкам $< 10^{-5}$) степени покрытия барием при указанных выше давлениях и температурах от 1800 до 2100 К. Проведенные расчеты относительного изменения выходной электрической мощности ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями МЭЗ и твэла обобщены в таблице 3.

Таблица 3 - Относительное изменение выходной электрической мощности ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями МЭЗ и твэла

Конструктивная схема ЭГК	$ \Delta W/W \cdot 100 , \%$
ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла и выводом ПД в ВЦС	0,8
ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и двухсторонним выводом ПД в ВЦС	1,7
ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС	4,8

Анализ данных таблицы позволяет заключить, что наименьшее влияние барий, как ПД, будет оказывать на ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла и выводом ПД в ВЦС. Однако различие во влиянии бария на выходную мощность ЭГК с разделенными и сообщающимися полостями МЭЗ и твэла не столь существенно, и предпочтение следует отдать ЭГК с сообщающимися полостями и двухсторонним выводом ПД в ВЦС, ввиду простоты конструкции и технологии изготовления.

Приведенные выше оценки влияния ПД на выходную электрическую мощность ЭГК на примере бария не учитывали влияния процесса массопереноса вольфрама с эмиттера на коллектор. ЭГК с оксидным топливом является постоянно действующим

источником кислорода, способным поддерживать давление кислорода в межэлектродном зазоре на уровне ($1 \cdot 10^{-5} - 1 \cdot 10^{-4}$ Па), что приводит к образованию легколетучих оксидов (WO , WO_2 , WO_3) и к значительному возрастанию испарения вольфрама по сравнению с сублимацией. Цезий, адсорбированный на поверхности эмиттера, может изменять испарение разных оксидов вольфрама в области температуры от 1700 до 1900 К, где работа выхода вольфрама становится ниже сродства к электрону оксида WO_3 . В этом случае почти весь кислород расходуется на образование и испарение отрицательно заряженного иона WO_3^- . Массоперенос вольфрама с эмиттера на коллектор со скоростью не менее 10^{-4} мкм/ч сводит практически на нет влияние Ва на изменения выходной мощности ЭГК, как показано в табл. 4.

Таблица 4 - Относительное изменение выходной электрической мощности ЭГК с сообщаемыми и разделенными полостями МЭЗ и твэла при учете массопереноса вольфрама с эмиттера на коллектор

Конструктивная схема ЭГК	$ \Delta W/W \cdot 100 , \%$
ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и твэла и выводом ПД в ВЦС	<0,05
ЭГК с сообщаемыми полостями МЭЗ и твэла и двухсторонним выводом ПД в ВЦС	<0,1
ЭГК с сообщаемыми полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС	<1,0

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. На основании анализа ресурсного изменения химического и фазового состава оксидного топлива и выхода ПД и их соединений в МЭЗ ЭГК получены результаты по концентрации компонентов оксидного топлива, включая ПД, и их распределение по радиусу и оси топливного сердечника. Показано, что вблизи поверхности топливной полости топливо состоит в основном из оксидного твердого раствора $U_{1-y}Me_yO_{2-x}$ (более 99,99 мас. %), в котором помимо лантаноидов, циркония, иттрия, бария, стронция и цезия растворены также молибден, технеций и рутений. Количество других фаз $U(Ru,Rh,Pd)_3$, не превышает 0,01 мас.
2. Впервые построена модель и проведен модельный расчет радиального распределения ПД в топливном сердечнике из диоксида урана в условиях работы термоэмиссионного ЭГК, а также парциальных давлений компонентов газовой фазы в центре топлива. Получены данные по потокам и давлениям компонентов. Показано, что максимальные давления Ва и I развиваются в конце 6-го цикла испытаний и достигают значений $\sim 2,6 \cdot 10^{-6}$ Па для бария и $\sim 3,9 \cdot 10^{-5}$ Па для йода.
3. Установлены ПД, которые могут влиять на ресурс ЭГК и имеют достаточные парциальные давления: Ва, Sr, I. Построена модель и получены для них и их изотопов данные по потокам и распределению среднего давления в МЭЗ ЭГК с совмещенными полостями МЭЗ и твэла на стационарных и нестационарных режимах работы, в том числе и для многоэлементных ЭГК. Разработана модель и получены результаты по распределению ПАЦ вдоль ЭГК.

4. Проведен общий анализ полученных данных и показано, что при одинаковых геометрических характеристиках ВЦС наибольшие давления реализуются в ЭГК с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и односторонним выводом ПД в ВЦС. В то же время, различие давлений стабильного нуклида бария для ЭГК с разделенными полостями ($2,2 \cdot 10^{-7}$ Па) и сообщающимися полостями и двухсторонним выводом ПД в ВЦС ($4,5 \cdot 10^{-7}$ Па) незначительно.

5. С использованием моделей Гифтопулоса-Левина и пятнистой поверхности оценено влияние совместной адсорбции цезия и бария на работу выхода коллектора из поликристаллического вольфрама и выходную мощность ЭГК. Показано, что наименьшее влияние барий, как ПД, оказывает на ЭГК с разделенными полостями а так же с сообщающимися полостями МЭЗ и твэла и двухсторонним выводом ПД в ВЦС.

Основные публикации по теме диссертации

1. Любимов Д.Ю., Федик И.И., Шумилов А.А. Влияние ПД на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями твэла и межэлектродного зазора // Атомная энергия. 2011. Т.110. №6. С.321-328
2. Любимов Д. Ю., Николаев Ю. В. Шумилов А. А. Влияние ПД на фазовый состав достехиометрического диоксида урана в тепловыделяющих элементах термоэмиссионных электрогенерирующих каналов // Материаловедение. 2008. №3. С. 34-42
3. Николаев Ю. В. Шумилов А. А. Кинетика совместной адсорбции Cs, Sr и Ba на поверхностях электродов электрогенерирующего канала термоэмиссионного преобразователя. // В сб.: Науч. труды сессии МИФИ-2010. 2010. Т.1. С. 144-146
4. Николаев Ю. В. Шумилов А. А. Моделирование распределения давления ПД в газовой фазе МЭЗ и ВЦС для ЭГК с разделенными полостями МЭЗ и ТВЭЛ. // В сб.: Науч. труды сессии МИФИ-2010. 2010. Т.1. С. 146-148
5. Николаев Ю. В. Шумилов А. А. Термодинамические расчеты фазового состава летучих ПД в топливной полости, МЭЗ и ВЦС. // В сб.: Науч. труды сессии МИФИ-2010. 2010. Т.1. С. 148-150
6. Лобанов М.А., Любимов Д.Ю., Шумилов А.А. Оценка влияния ПД на выходную мощность термоэмиссионных ЭГК с сообщающимися и разделенными полостями МЭЗ и твэл. // ФГУП «НИИ НПО» Луч». Отчет НИР. Инв. № 8067 Н/Б–2009. С. 43
7. Шумилов А.А. Кинетика поведения ПД в оксидном топливе и МЭЗ вентилируемых термоэмиссионных ЭГК. // [Электронный ресурс] Сайт конференции «Молодежь и наука 2008» URL: <http://www.molod.mephi.ru/reports.asp?rid=890>
8. Шумилов А.А. Математическое моделирование распределения концентрации продуктов активации цезия в МЭЗ вдоль ЭГК. // [Электронный ресурс] Сайт конференции «Молодежь и наука 2008» URL: <http://www.molod.mephi.ru/reports.asp?rid=892>
9. Шумилов А.А. Расчет распределения среднего давления изотопов продуктов деления Ba, Sr и I в МЭЗ ЭГК на форсированном режиме. // [Электронный ресурс] Сайт конференции «Молодежь и наука 2008» URL: <http://www.molod.mephi.ru/reports.asp?rid=891>
10. Шумилов А.А. Компьютерное моделирование влияния продуктов деления на фазовый состав достехиометрического оксида урана в твэлах термоэмиссионных ЭГК. // [Электронный ресурс] Сайт конференции «Молодежь и наука 2007» URL: www.molod.mephi.ru/2007/Data/629.htm
11. Шумилов А.А. Расчет концентрации продуктов активации Cs в электрогенерирующем канале термоэмиссионного реактора-преобразователя. // В сб.: Науч. труды IV Международной научно-практической конференции «Теория и практика в физико-математических науках» 2012 г. С. 30-32
12. Шумилов А.А. // Расчет распределения концентрации изотопов Ba в электрогенерирующем канале термоэмиссионного реактора-преобразователя В сб.: материалы международной заочной научно-практической конференции «Естественные науки: вопросы биологии, химии, физики» 2012 г. С 86-90