

Федеральное государственное автономное образовательное
учреждение высшего образования «Уральский федеральный университет
имени первого Президента России Б.Н. Ельцина»

На правах рукописи



Бутаков Денис Сергеевич

АВТОНОМНЫЕ ИСТОЧНИКИ ПИТАНИЯ КОНДЕНСАТОРНОГО ТИПА
С ПРЯМЫМ ПРЕОБРАЗОВАНИЕМ ЭНЕРГИИ РАСПАДА
РАДИОИЗОТОПОВ В ЭЛЕКТРИЧЕСТВО

2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная
безопасность

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Екатеринбург – 2024

Работа выполнена в лаборатории радиоизотопных источников питания Акционерного общества «Институт реакторных материалов» Государственной корпорации «Росатом»

Научный руководитель: доктор технических наук, профессор,
РИСОВАННЫЙ Владимир Дмитриевич

Официальные оппоненты:

РОДИОНОВ Николай Борисович, доктор физико-математических наук, АО «Государственный научный центр Российской Федерации Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», г. Москва, г. Троицк, главный научный сотрудник лаборатории проблем физики токамаков отделения физики токамаков – реакторов и токонесущей плазмы;

ТАПЕРО Константин Иванович, доктор технических наук, старший научный сотрудник, АО «Научно-исследовательский институт приборов», Московская обл., г. Лыткарино, заместитель генерального директора по науке и инновациям;

ПЕНЯЗЬ Милена Алексеевна, кандидат технических наук, АО «Росатом Наука», г. Москва, ученый секретарь-руководитель группы научного руководства

Защита состоится «19» декабря 2024 г. в 11:30 ч на заседании диссертационного совета УрФУ 2.4.07.17 по адресу: 620002, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19, ауд. И-420 (зал Ученого совета).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», адрес объявления на сайте УрФУ <https://dissovet2.urfu.ru/mod/data/view.php?id=12&rid=6530>

Автореферат разослан « ____ » _____ 2024 г. _____

Ученый секретарь
диссертационного совета



Ташлыков Олег Леонидович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы

Во многих странах ведутся разработки источников питания прямого преобразования энергии распада радиоизотопов в электрическую. Наибольшее распространение как у нас в стране, так и за рубежом получили бета-вольтаические источники питания. Их удельная мощность не превышает 1 мкВт/см^3 , время эксплуатации составляет менее 10 лет, кпд- (1-2)%. Число публикаций по данной тематике в последние годы резко возросло и связывается с необходимостью широкого использования источников питания небольших размеров в различных областях науки и техники. Для миниатюрных автономных источников питания объемом менее 1 см^3 , мощностью более 5 мкВт и ресурсом более 10 лет альтернативы радиационным источникам питания нет.

Первые разработки бета-вольтаических источников питания относят к середине 1950-х годов и они совпадают по времени с началом развития полупроводниковой электроники. Однако, бета-вольтаические источники питания появились только в начале 1970-х годов, когда Ларри Олсен создал батарейку Betacel - первый в мире коммерчески успешный источник питания на основе ^{147}Pm . Для того времени это был «революционный» источник питания. Благодаря своим уникальным характеристикам батарейку Betacel использовали для питания составной части имплантируемых кардиостимуляторов. Однако их коммерческое применение было ограничено токсичностью ^{147}Pm . Согласно литературным данным, во всем мире продолжают разработки источников питания с различными радиоизотопами и полупроводниковыми структурами, но большого прогресса по увеличению их удельной мощности не удается достичь, что обусловлено, прежде всего, радиационными повреждениями полупроводниковых структур. В настоящее время на рынке присутствуют как минимум три фирмы США, которые на коммерческой основе изготавливают ядерные батарейки на основе ^3H и ^{63}Ni .

В России разработки по радиационным источникам питания с прямым преобразованием энергии распада радиоизотопов в электрическую вошли в Федеральную Целевую Программу «Приоритетные направления развития науки и техники на 2010 год и перспективу до 2015 года». Было выполнено несколько проектов по разработке бета-вольтаических источников также с использованием радиоизотопов ^3H и ^{63}Ni с полупроводниковыми преобразователями из кремния. Были подтверждены

эксплуатационные характеристики зарубежных аналогов, но их производство в России до сих пор не организовано, так как не достигнуты целевые значения в получении удельной мощности более 5мкВт/см^3 .

В 2015 г. в АО «ИРМ» впервые под научным руководством профессоров Булярского С.В. и Рисованого В.Д. были изготовлены и исследованы макеты радиоизотопных источников питания и накопителей энергии конденсаторного типа, в которых не применяются полупроводниковые структуры. Их конструкция, в части использования электродов с углеродными нано-трубками, подобна конструкции супер-конденсатора, в которых один из электродов содержит радиоизотоп ^{14}C . Новые источники прямого преобразования радиоактивного распада в электричество основаны на другом физическом принципе. Они не требуют внешней подзарядки и могут работать как в режиме постоянного тока при нагрузке, так и в импульсном режиме. Эти изделия получили название самозаряжающихся супер-конденсаторов. На новые источники питания в 2016г были поданы заявки на изобретения и получены четыре Патента РФ, а также Патенты США, Японии, Ю.Кореи, Канады.

В 2017-2021 гг. актуальность работ по разработке и исследованию самозаряжающихся супер-конденсаторов подтверждена решением НТС №7 Росатома, НТС ВПК и секции НТС РАН. В 2020-2022гг по данной тематике проведены комплексные исследования в рамках Единого Отраслевого Тематического Плана (ЕОТП) ГК «Росатом».

Целью данной работы являлось разработка и проведение исследований самозаряжающихся супер-конденсаторов с удельной мощностью более 5 мкВт/см^3 , работающих как в режиме постоянного тока, так и в импульсном режиме, которые могут быть использованы в различных областях науки и техники.

Для достижения цели были поставлены следующие **задачи**:

1. Разработать технологию синтеза углеродсодержащих материалов, содержащих в своей структуре радиоизотоп $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и провести исследования перспективных конструкционных материалов, использующихся в автономных радиоизотопных источниках питания конденсаторного типа.

2. Разработать конструкцию и технологию изготовления автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа с радиоизотопами $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и ионными жидкостями.

3. Получить экспериментальные данные и изучить вольтамперные характеристики автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа.

4. Разработать методики и провести испытания на воздействие климатических факторов, воздействие внешнего ионизирующего излучения и воздействие внешних механических нагрузок на автономные радиоизотопные источники питания конденсаторного типа.

5. Провести исследования работоспособности реальной электрической системы за счет ее энергообеспечения автономным радиоизотопным источников питания конденсаторного типа.

Научная новизна

Разработаны конструкции автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа, новые технологии изготовления углеродных электродов, содержащих радиоизотоп $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, лабораторная технология изготовления автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа.

Впервые на источниках питания прямого преобразования энергии распада в электричество получена удельная мощность при постоянной нагрузке $6 \text{ мкВт}/\text{см}^3$ и в импульсном режиме $690 \text{ мкВт}/\text{см}^3$, что существенно превышает зарубежные и российские бета-вольтаические источники питания.

Впервые получены экспериментальные данные по испытаниям автономных источников питания конденсаторного типа в диапазоне температур от -65 до $+130$ °C, воздействию внешних радиационных нагрузок до 100 крад и внешних механических нагрузок.

Теоретическая и практическая значимость

Разработана техническая и технологическая документация на изготовление самозаряжающихся супер-конденсаторов с радиоизотопами $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и ионными жидкостями.

Изготовлено более 300 макетов самозаряжающихся супер-конденсаторов с радиоизотопами $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и ионными жидкостями.

Разработаны программы и методики испытаний на воздействие климатических факторов, внешнего ионизирующего излучения и внешних механических нагрузок на автономные радиоизотопные источники питания конденсаторного типа.

С использованием разработанных в рамках работы радиоизотопных источников питания на основе $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ изготовлен лабораторный образец электронного модуля

периодической активации с радиоизотопным источником питания с выходными параметрами- длительность зарядки 10с, длительность импульса 10мс, выходная мощность 24,2 мВт.

Методология и методы исследования

Для решения поставленных задач в работе использовался вольтамперметрический метод для определения электрохимических характеристик используемых материалов, метод импедансной спектроскопии и метод линейной вольтамперметрии для исследования влияния ионизирующего излучения на свойства ионной жидкости. Для изучения структуры синтезируемых углеродных матриц, выполнены электронно-микроскопические исследования и микронзондовый рентгеноспектральный анализ на сканирующем электронном микроскопе TESCAN MIRA3 LMU, исследование пористости структур и состояние поверхности образцов проведено при помощи методов BET и BJH. С использованием метода отношений тройных и двойных совпадений TDCR на жидкостном сцинтилляционном спектрометрическом радиометре Hidex SL-300, проведены измерения активности бета-излучающих радионуклидов.

Положения, выносимые на защиту:

1. Конструкции радиоизотопных автономных источников питания конденсаторного типа на основе радиоизотопов $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ с различными электролитами с использованием ионных жидкостей.
2. Технология изготовления электродов с $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и источников питания конденсаторного типа с ионными жидкостями.
3. Вольт-амперные характеристики автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа различной конструкции на основе радиоизотопов $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ с ионными жидкостями.
4. Экспериментальные результаты стендовых испытаний макетов автономных радиоизотопных источников питания конденсаторного типа в диапазоне температур от -65 до 130°C , воздействию радиации до 100 крэд, воздействие вибрационных нагрузок в диапазоне частот (5-2000) Гц и ускорения 0,5g, воздействие ударных нагрузок длительностью (0,2-0,3) мс и ускорением $\pm 1750\text{g}$, прочностные характеристики источников питания при транспортировании в составе изделия и в упаковке.

5. Результаты испытаний электронного модуля периодической активации с использованием АИП конденсаторного типа с выходной мощностью не менее 24мВт.

Достоверность результатов

Достоверность полученных результатов обоснована применением современного, высокоточного и аттестованного испытательного и аналитического оборудования.

Обоснованность результатов диссертационного исследования достигается:

- проверкой теоретических положений экспериментальными исследованиями;
- согласованием новых положений с уже известными теоретическими положениями науки и экспериментальными данными других авторов;
- публикациями основных результатов работы в рецензируемых научных изданиях;
- обсуждением результатов диссертации на конференциях и симпозиумах, получении рецензий от ведущих специалистов.

Апробация работы:

Основные результаты и материалы диссертационной работы представлялись на российских конференциях и семинарах: Научно-техническая конференция по ядерным технологиям для молодых ученых, специалистов, студентов и аспирантов (г. Екатеринбург, 2022), заседание секции НТС ВПК РФ «Специальная техника для антитеррористических операций» (г. Москва, 2021), совместного заседания Научного совета ОНИР РАН «Фундаментальные проблемы элементной базы информационно-вычислительных и управляющих систем и материалов для ее создания» и Научного совета ОНИТ РАН «Фундаментальные проблемы наноструктур и нанотехнологий» (г. Москва, 2022), Межотраслевая научно-техническая конференция «РЕАКТОРНЫЕ МАТЕРИАЛЫ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ» (г. Екатеринбург, 2021), круглый стол на тему «Инновационные проекты организаций АО «Наука и инновации» в рамках утвержденного плана работы МВК Минобороны России и Госкорпорации «Росатом» (г. Москва, 2022), совет по применению ЭКБ предприятий кооперации АО «ИСС» и АО «НПО Лавочкина» (г. Москва, 2022), XVI отраслевая научно-техническая конференция молодых специалистов ГК «Росатом» «Высокие технологии атомной отрасли. Молодежь в инновационном процессе» (г. Нижний Новгород, 2022), форум «Микроэлектроника 2023» (г. Сочи, 2023).

Личный вклад

Под руководством и при непосредственном участии диссертанта разработаны конструкции, технологии и изготовлены автономные источники питания конденсаторного типа, изучены вольт-амперные характеристики, проведены расчетно-экспериментальные исследования по обоснованию их длительного ресурса, разработан и изготовлен электронный модуль периодической активации.

Публикации

По теме диссертационной работы опубликовано 10 научных трудов, из них 4 статьи в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ, включая 3 статьи в журналах, индексируемых в международной базе Scopus; получено 2 патента на изобретение РФ.

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, пяти глав, выводов и списка используемой литературы. Диссертация изложена на 148 страницах, содержит 94 рисунка, 38 таблиц и список литературы из 74 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении дана общая характеристика работы, обоснована актуальность выбранной темы. Определены цели и основные задачи исследования, изложены научная новизна и практическая значимость работы, а также сформулированы основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена литературному обзору по теме диссертационной работы. Приводится описание радиоизотопных источников питания различного типа и конструкции, включая бета-вольтаические. Описаны механизмы их работы и требования к радиоизотопным источникам питания. Рассмотрены методы расчета и физический смысл основных характеристик радиоизотопных источников и область применения данного типа устройств. Показано, что в настоящее время направление радиоизотопных источников питания прямого преобразования энергии радиационного распада в электрическую энергию имеет ряд нерешенных вопросов и научно-технических задач, прежде всего, в необходимости повышения их удельной мощности минимум до 5 мкВт/см³. На основании проведенного анализа сформулирована цель и основные задачи работы.

Вторая глава посвящена разработке материалов и конструкции автономного радиоизотопного источника питания конденсаторного типа

Для оценки перспектив использования различных бета-излучающих радиоизотопов для создания автономных источников питания конденсаторного типа разработаны критерии отбора. После учета таких отсекающих факторов, как наличие доступного сырья, технологий переработки, необходимых высоких энергий электронов при распаде, стоимостных параметров, было установлено, что перспективными являются радиоизотопы $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.

Условия эксплуатации конструкционных материалов, разрабатываемых автономных радиоизотопных источников питания с жидким электролитом, предполагают воздействие коррозионной химически активной среды электролита и потока ионизирующего бета-излучения. Поэтому основным требованием при выборе конструкционного материала является его устойчивость к данным воздействиям, а также прочность, технологичность обработки и высокая электропроводность. Основным критерием оценки электрохимических характеристик электродных материалов является сохранение низкого уровня тока активации в сочетании с широким интервалом пассивной области потенциалов.

Рассмотрено электрохимическое поведение образцов, изготовленных из фольги нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т, титана марки ВТ 1-0, меди, алюминия и стеклоглуглерода в качестве наиболее агрессивной среды, были выбраны электролиты в виде водных растворов серной и ортофосфорной кислот различной концентрации.

С помощью электрохимической станции Zive-SP2 (Wonatech, Южная Корея), с использованием вольтамперметрического метода определены электрохимические характеристики исследуемых материалов, представленные на рисунке 1.

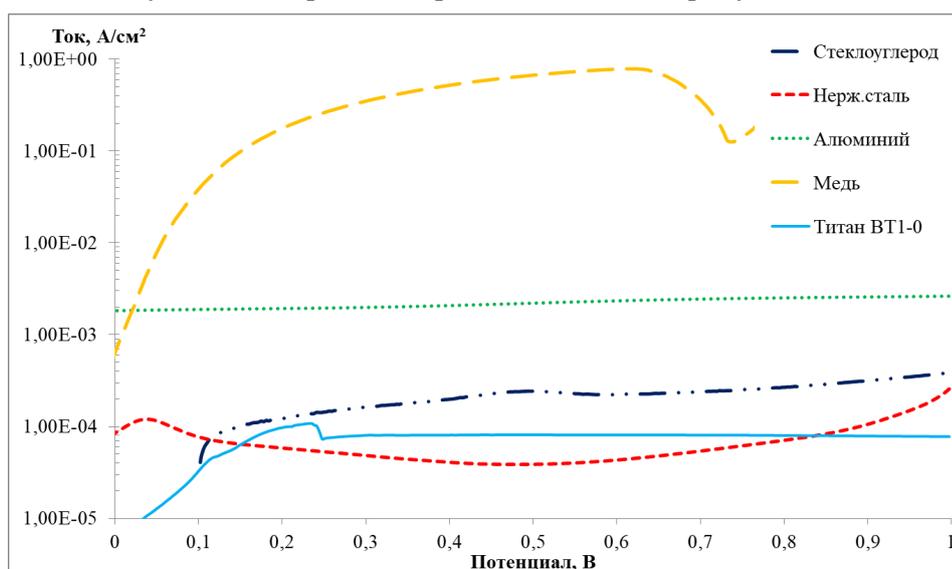


Рисунок 1 - Потенциодинамические кривые исследуемых материалов в водном растворе одно малярной серной кислоты

Анализ кривых показал, что среди рассмотренных материалов медь и алюминий имеют высокую коррозионную активность, что неприемлемо для использования в составе автономных радиоизотопных источниках питания. Стеклоуглерод продемонстрировал оптимальные электрохимические характеристики, однако его применение затруднено сложностью механической обработки и низкой прочностью. У нержавеющей стали марки 12X18H10T в диапазоне от 0,2 В до 0,8 В наблюдается участок пассивации, при этом токи участка пассивации не стабилизированы, участок не имеет вид прямой линии. При потенциалах выше 0,8 В наблюдается участок перепассивации (значительное возрастание анодного тока). Поведение титана марки ВТ 1-0 имеет несколько другой характер. На кривой зависимости тока от приложенного потенциала в области активного растворения до потенциала 0,2 В ток достигает значений $1 \cdot 10^{-4}$ А/см², при этом участок пассивации имеет вид прямой линии (стабильный ток) и соответствует диапазону от 0,2 В до более 1 В, что больше, чем для нержавеющей стали.

Проведены исследования воздействия ионной жидкости на поверхность образцов, изготовленных из фольги нержавеющей стали 12X18H10T и титана ВТ 1-0.

По результатам визуального исследования поверхность образца из титана марки ВТ 1-0 после испытаний по сравнению с его исходным состоянием не изменилась, на поверхности образца из нержавеющей стали 12X18H10T наблюдаются значительные изменения по сравнению с его исходным состоянием, а именно:

- цвет поверхности изменился с серебристо-металлического на рыжий, что характерно для оксида железа;
- точечные дефекты на поверхности характерны для образования питтингов и язв.

Таким образом, на основании проведенных исследований в качестве основного конструкционного материала корпуса предложен титан марки ВТ 1-0, как наиболее коррозионностойкий материал.

С использованием метода импедансной спектроскопии и метода линейной вольтамперометрии проведены исследования влияния ионизирующего излучения на электрохимические и электрофизические свойства ионной жидкости, используемой в качестве электролита в автономном радиоизотопном источнике питания.

Несмотря на все свои преимущества, ионные жидкости являются новым объектом научных исследований и их физико-химические свойства, на сегодняшний день, мало изучены. В результате исследований экспериментально установлено, что

ионные жидкости 1-бутил-3-метилимидазолия тетрафторборат и 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфонат без пропиленкарбоната не стойки к воздействию ионизирующего излучения и под его воздействием происходит увеличение омического сопротивления, создаваемого электролитом. Данные ионные жидкости могут быть использованы при их смешении с пропиленкарбонатом, используемым в качестве растворителя, после этого воздействие ионизирующего излучения приводит к уменьшению омического сопротивления электролита и улучшаются условия зарядных процессов в электролите. Ионная жидкость Aliquate 336 также может быть использована, воздействие на её электрофизические свойства ионизирующего излучения не существенно.

Отработаны технологии синтеза углеродных электродов модифицированных добавкой радиоизотопа $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ в форме водного раствора $(^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y})\text{Cl}_2$ одним случаем с использованием эпоксидной смолы, в другом с использованием резорцинформальдегидной. Радиоактивность добавляемого раствора измерялась при помощи жидкостинтилляционной спектрометрии на радиометре Hidex SL-300 с неопределенностью 5%, с учетом погрешности пробоподготовки.

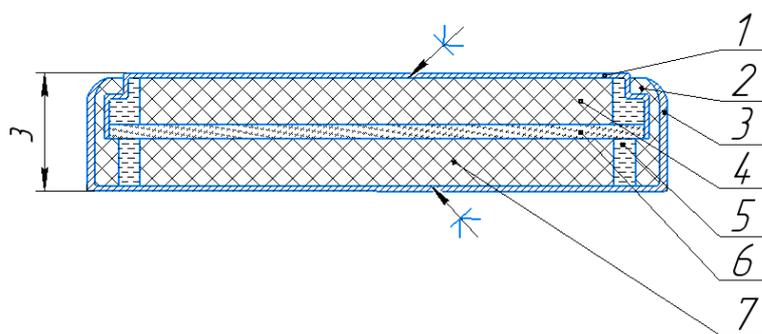
По результатам исследования влияния физической активации с применением активирующего газа CO_2 на пористую структуру и состояние поверхности образцов с использованием резорцинформальдегидной смолы при помощи методов ВЕТ и ВЖН, показано, что измеренная удельная площадь поверхности составляет $1315 \text{ м}^2/\text{г}$, при этом вклад микропор составляет 43 %, в то время как удельная площадь поверхности для РФС синтезируемого без использования активирующего газа CO_2 составила $664 \text{ м}^2/\text{г}$ и вклад микропор в общий объем пор составлял 51 %. Полученные данные измерений свидетельствуют, что применение физической активации существенно увеличивает удельную площадь поверхности и объем пор РФС+ CO_2 .

Для изучения структуры углеродных матриц, содержащих изотоп $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, были выполнены электронно-микроскопические исследования и микронзондовый рентгеноспектральный анализ на сканирующем электронном микроскопе TESCAN Mira3 LMU. С использованием карты распределения химических элементов исследована равномерность распределения $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. С использованием жидкостинтилляционной спектрометрии на радиометре Hidex SL-300 исследована удерживающая способность синтезируемых углеродных материалов содержащих изотоп $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Из результатов проведенных измерений следует, что доля активности, перешедшей в электролит через сепаратор из анодного пространства в катодное

($2,06 \cdot 10^{-5} \%$ и $5,07 \cdot 10^{-5} \%$), крайне мала, что свидетельствует о том, что разработанные в рамках работы технологии синтеза углеродных материалов модифицированных добавкой водного раствора $(^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y})\text{Cl}_2$, позволяют получать радиационно стойкую структуру, препятствующую выходу радионуклида $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ в раствор.

В ходе выполнения работы углеродный электрод с радиоизотопом и противоэлектрод без радиоизотопа изготавливались следующим образом: исследуемый углеродный материал в количестве 75 % масс. с фторопластовой суспензией 25% масс. смешивался в планетарном миксере в течение 5-10 мин до получения гомогенизированной полимер-углеродной смеси в виде пластичной массы. На следующем этапе производили многоступенчатое каландрирование полученной массы с помощью вальцов. При прокатке образовывалась полимер-углеродная лента, механическое связывание которой обеспечивалось за счет фибрилл из фторопласта. Вальцы находились на воздухе при комнатной температуре и атмосферном давлении. Нагрев вальцов не производился. Контроль толщины ленты производился на каждом этапе проката. В результате получали полимер-углеродную ленту требуемой толщины. Далее, острозаточенным цилиндрическим пробойником вырубали углеродные электроды требуемого формфактора.

Исследуемые экспериментальные образцы были выполнены по двухэлектродной схеме и состояли из титанового корпуса, кольца-изолятора, углеродных электродов и сепаратора (рисунок 2). Дисковые углеродные электроды приклеивали к токоотводам из титановой фольги с помощью электропроводящего адгезива. Герметизация экспериментальной ячейки проводилась в перчаточном боксе с инертной атмосферой (аргон) прессованием с давлением сжатия 50 кгс/см^2 .



1,3 – токоотводы, 2 – изолятор, 4,7– углеродные электроды, 5 – электролит, 6 – сепаратор

Рисунок 2 - Экспериментальный образец по двухэлектродной схеме

Схематично разработанный в рамках работы технологический процесс изготовления исследованных источников можно представлен ниже.

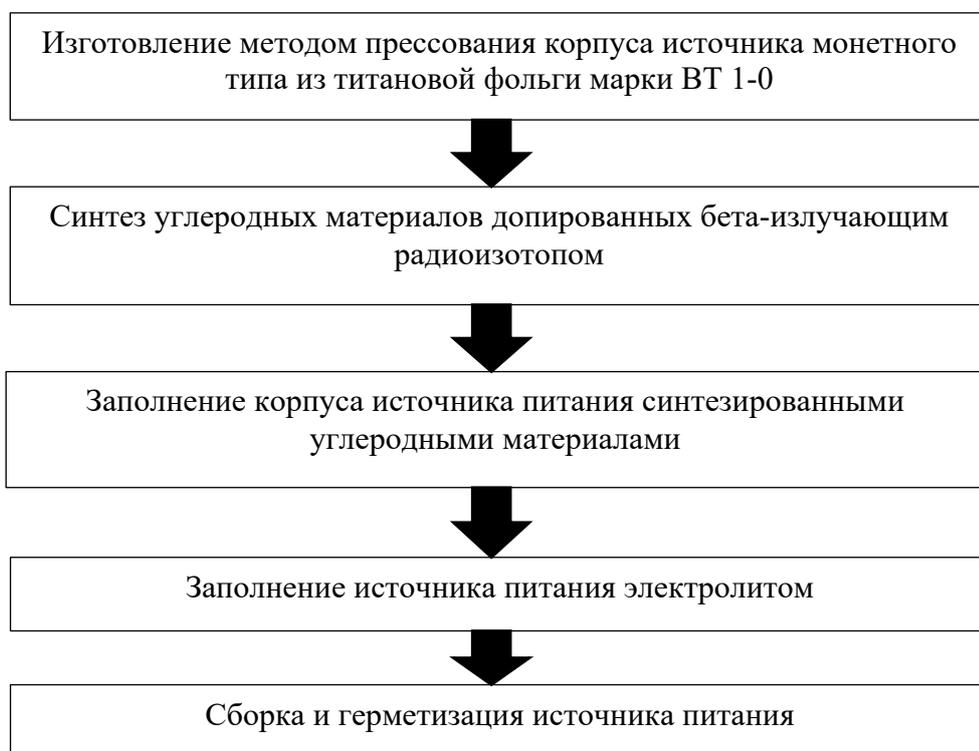


Рисунок 3 – Схема изготовления источника питания

В ходе выполнения работы были проведены исследования источников питания с различными габаритными характеристиками. Описание некоторых образцов исследуемых источников питания, результаты энергетических испытаний которых представлены в работе, приведено в таблице 1.

Таблица 1 – Описание экспериментальных образцов

| № образца | Активный электрод | Противоэлектрод | Активность добавленная в электрод, мКи | Электролит |
|-----------|---|------------------------------------|--|--|
| 914 | Углеродная матрица синтезированная из эпоксидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ | Многостенные углеродные нанотрубки | 5,0 | Смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1 |

Продолжение таблицы 1

| | | | | |
|------|--|--|-----|--|
| 940 | Смесь углеродной матрицы синтезированной из эпоксидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и многостенных углеродных нанотрубок | - | 5,0 | Смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1 |
| 957 | Углеродная матрица синтезированной из резорцин-формальдегидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ | Многостенные углеродные нанотрубки | 5,0 | Смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1 |
| 1063 | Углеродная матрица синтезированной из резорцин-формальдегидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ | Углеродная матрица синтезированной из резорцин-формальдегидной смолы | 5,0 | Смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1 |

В третьей главе представлены результаты исследований вольт-амперных характеристик радиоизотопных источников питания.

В рамках проделанной работы экспериментально установлено, что наиболее оптимальным вариантом конструкции источника питания для работы в импульсном режиме является использование в качестве активного электрода смесь углеродной матрицы синтезированной из эпоксидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ и многостенных углеродных нанотрубок и в качестве электролита смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1. С использованием данных оптимальных конструкции изготовлен демонстрационный образец импульсного источника питания (рисунок 4), с использованием вольтметра В7-78/1 измерены его энергетически характеристики.



Рисунок 4 – Внешний вид импульсного источника питания

Непосредственно после сборки были измерены его энергетические характеристики при помощи вольтметра В7-78/1, зафиксированы следующие параметры: напряжение холостого хода $U_{xx} = 100$ мВ и ток короткого замыкания $I_{кз} = 120$ мкА, погрешность измерения составляла 1%.

Через пять суток после изготовления АИП были проведены измерения напряжения холостого хода, составляло 300 мВ и тока короткого замыкания в импульсном режиме: на 2 секунды источник питания замыкали на регистрирующий амперметр, измеряли $I_{кз}$, размыкали амперметр и ожидали 20 секунд, затем снова повторяли действия, результаты измерений тока короткого замыкания представлены рисунке 5.

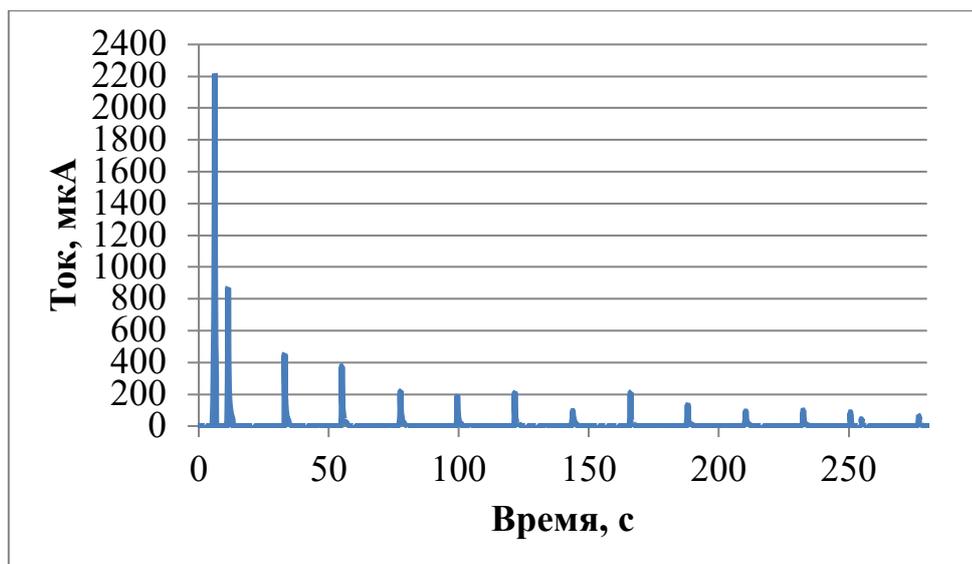


Рисунок 5 – Зависимость тока короткого замыкания от времени

Из графика видно, что при первом измерении пиковое значение силы тока составляет 2200 мкА. При следующих измерениях пиковое значение силы тока снижается, до уровня 100 мкА.

По результатам проведенных испытаний, продемонстрировано, что автономный источник питания конденсаторного типа с радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ в импульсном

режиме работы может генерировать токи до 2200 мкА при активности источника излучения 5 мКи.

Для обеспечения работы источника питания как в режиме постоянного тока, так и в импульсном режиме экспериментально определена следующая оптимальная конструкция: активный электрод изготавливается из углеродной матрицы синтезированной из резорцин-формальдегидной смолы меченой радиоизотопом $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, противоэлектрод из углеродной матрицы синтезированной из резорцин-формальдегидной смолы, в качестве электролита используется смесь 1-бутил-3-метилимидазолия трифторметансульфоната и пропиленкарбоната в соотношении 3:1. С использованием данных оптимальных конструкции изготовлен демонстрационный образец универсального источника питания с суммарной внутренней радиоактивностью изотопа $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ - 28 мКи, внешний вид и рентгенограмма образца представлены на рисунке 6.



а



б

а – внешний вид, б – рентгенограмма

Рисунок 6 – Внешний вид и рентгенограмма универсального источника питания

После изготовления образец был установлен в испытательный стенд для непрерывной регистрации динамики напряжения при подключении постоянной нагрузки график изменения напряжения представлен на рисунке 7.

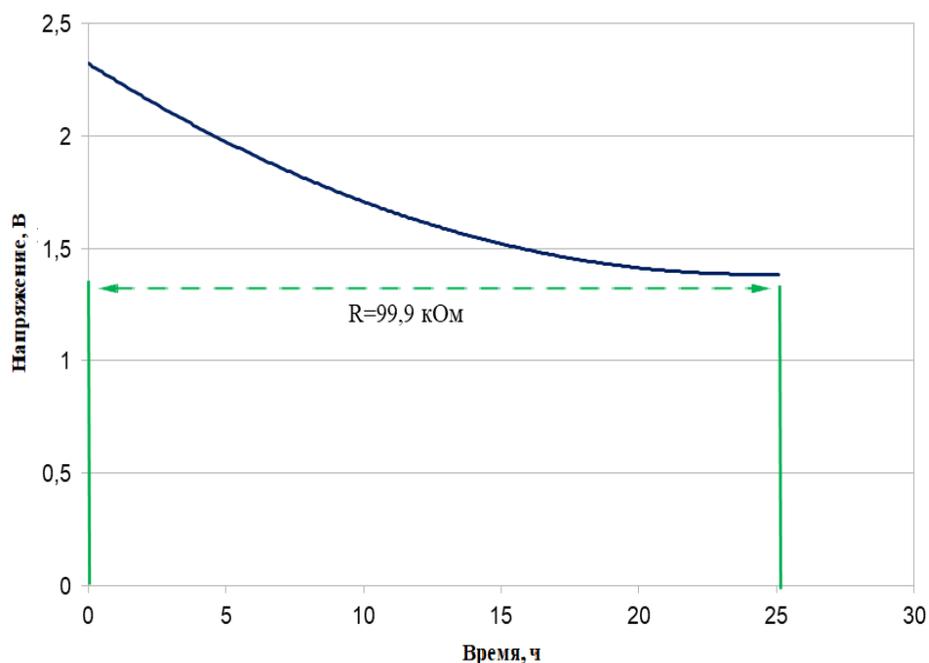


Рисунок 7 – Динамика напряжение при подключении постоянной нагрузки

По результатам энергетических испытаний определены характеристики представленные в таблице 2.

Таблица 2 – Энергетические характеристики

| Номинальное значение резистора, кОм | Напряжение с нагрузочным резистором U_p , В | Электрический ток с нагрузочным резистором I_p , мкА | Электрическая мощность с нагрузочным резистором W_p , мкВт |
|-------------------------------------|---|--|--|
| 99,9±1,0 | 1,384±0,003 | 13,854±0,003 | 19,174±0,001 |

Согласно расчетным данным, мощность источника излучения в данном образце составила 245 мкВт. Эффективности преобразования энергии радиационного распада в электрическую энергию в режиме постоянного тока - 7,7 %.

Сравнение результатов выходных удельных мощностей, достигнутых в рамках выполнения работы с лучшими мировыми аналогами представлено на рисунке 8.

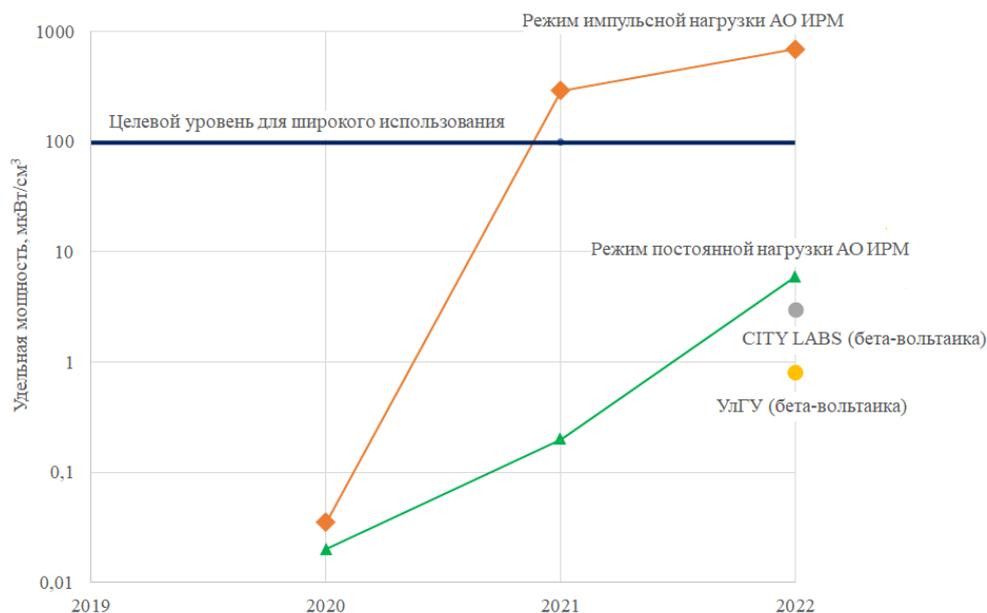


Рисунок 8 – Сравнение выходных удельных мощностей

Представлена общая конструктивная схема радиоизотопного источника питания конденсаторного типа и качественное описание основных физических явлений, протекающих в нем которые можно представить в следующей последовательности:

- бета-распад радионуклидов в материале электрода и формирование потока первичных бета-частиц,
- вхождение излучения в вещество (электролит), формирование потоков прошедших и обратно-рассеянных электронов,
- ионизация электролита и генерация в нем свободных носителей заряда, вторичная ионизация и размножение электронов (электронные каскады),
- формирование в электролите области рассеяния вторичных электронов и зоны прохождения излучения, изменение концентрации носителей заряда с толщиной электрода,
- миграция носителей заряда в электролите к двойному слою, перескок электронов через потенциальный барьер ДЭС, разделение зарядов в ДЭС, накопление заряда в емкости ДЭС (зарядка) и обратный перескок электронов (саморазрядка),
- хаотичное движение свободных вторичных электронов в объеме электролита, постепенное «охлаждение» термализованных вторичных электронов, существование термализованных электронов в электролите в течение времени их жизни, захват ионами электролита остывших электронов и рекомбинация зарядов.

В заключении сообщается, что основным производительным процессом, оказывающим положительное влияние на процесс преобразования энергии первичных электронов, рождающихся при бета-распаде зафиксированных в углеродной матрице рабочего электрода-коллектора радионуклидов, является ионизация атомов ионной жидкости с последующим перескоком образовавшихся вторичных электронов через ДЭС в углеродную матрицу. Зарядка емкости ДЭС сопровождается миграцией положительно заряженных ионов ионной жидкости, образовавшихся при ее ионизации, к внутреннему слою ДЭС, тогда как на поверхности электрода-коллектора накапливается отрицательный заряд собранных вторичных электронов.

В четвёртой главе представлены результаты испытаний источников питания в обоснование их использования в электронной компонентной базе.

В рамках проведённых исследований проведены механические испытания по определению уровня стойкости к нагрузкам, которым подвергается электронная компонентная база, устанавливаемая в бортовой аппаратуре современных космических аппаратов, воздействию которых может быть подвержен конструктив автономных радиоизотопных источников питания.

Проведены следующие виды испытаний:

- испытания на воздействия вибрационных нагрузок;
- испытания на прочность при транспортировке в составе изделия и упаковке;
- испытания на воздействие механического удара одиночного действия.

Испытания проводились одновременно на четырех образцах последовательно по каждой из трех взаимно перпендикулярных осей. За одну установку проводились последовательно испытания по обнаружению резонансов конструкции до вибрации, испытания на воздействие гармонических и случайных вибрационных нагрузок, а также испытания по обнаружению резонансов конструкции после вибрации.

По результатам проведенных механических испытаний подтверждена правильность выбранных материалов и технических решений в части стойкости к механическим воздействиям и возможность использования материалов, технических решений и технологических процессов в создании промышленных образцов автономных источников питания.

С целью определения уровня стойкости автономных источников питания к воздействию ионизирующего излучения проведены ускоренные радиационные испытания образцов. Испытания проведены с использованием установки статического гамма-излучения №200 (источник излучения – ^{60}Co) в нормальных климатических

условиях в соответствии с ГОСТ РВ 20.57.416-98, в пассивном режиме без электрической нагрузки. В ходе испытаний образцы были подвержены радиационному облучению в несколько этапов воздействия от 10 до 100 крад.

При достижении значения накопленной дозы 100 крад в одном из исследуемых единичных элементов нарушена герметичность. Одной из возможных причин нарушения герметичности конструкции может быть разрушение фторопластового изолирующего кольца, в результате накопления дозы облучения, превышающей 100 крад в данном полимере, произошли существенные структурные повреждения.

Для предотвращения разгерметизации, в качестве рекомендации, предложено произвести коррекцию технологии его изготовления и сборки. Например, при инкапсуляции элементов конструкции (электролит, изолирующее кольцо, катод, анод) в корпус, использовать сварку или спайку вместо запрессовки.

Значения выходной электрической мощности для образцов не изменяются при поглощенной дозе гамма-излучения до 30 крад и варьируются в пределах 6 мкВт.

С целью определения температурного диапазона эксплуатации, проведены климатические испытания с использованием аттестованной камеры тепла-холода SBT-211, с диапазоном воспроизводимой температуры от -65 до 130 °С и точностью поддержания температуры $\pm 0,2$ °С. Испытания проведены в диапазоне температур от -65 до +130 °С. На рисунке 9 представлен график изменения напряжения в зависимости от температуры.

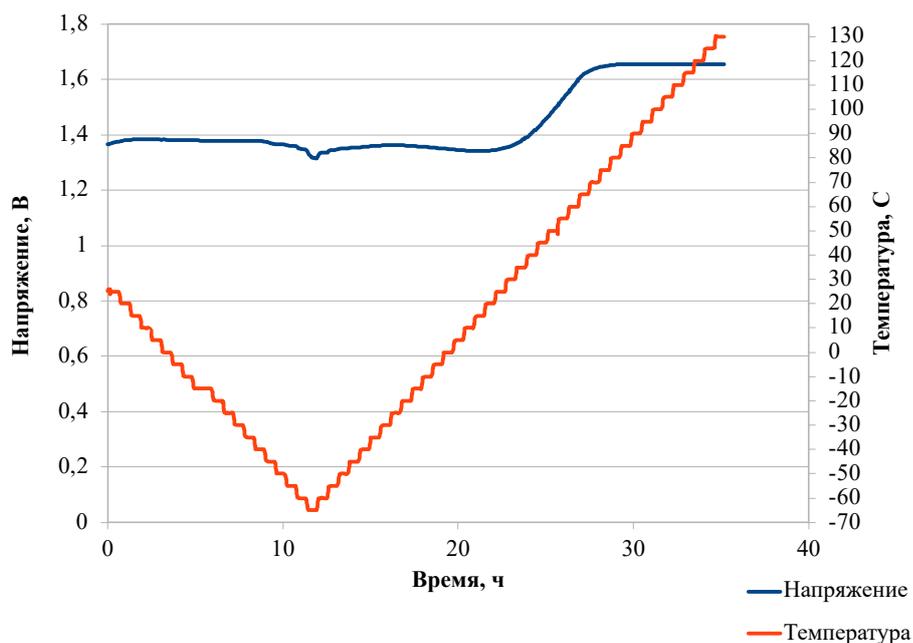


Рисунок 9 – Динамика напряжение при воздействии температуры

В пятой главе представлены результаты использования автономного радиоизотопного источника питания суперконденсаторного типа для изготовления электронного модуля периодической активации.

Модуль периодической активации, выполненный в виде гибридной сборки, состоящей из автономного радиоизотопного источника питания, накопителя энергии (конденсатора) и интегральной схемы.

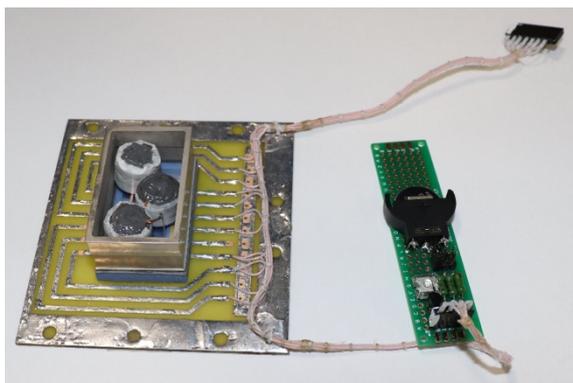


Рисунок 10 – Внешний вид изготовленного модуля

С использованием мультиметра Keysight 3458A измерены выходные энергетические характеристики изготовленного источника питания для электронного модуля.

Таблица 3 – Выходные энергетические характеристики

| № | Наименование показателя | Значение |
|---|---------------------------------------|-----------------------|
| 1 | Напряжение разомкнутой цепи, <i>V</i> | $2,35813 \pm 0,00002$ |
| 2 | Ток короткого замыкания, <i>mA</i> | $1,25361 \pm 0,00007$ |

С целью проверки работоспособности, определения напряжения и тока, генерируемого изготовленной гибридной сборкой, проведены исследовательские испытания.

Экспериментально определены максимальные амплитуды импульсов на осциллографе и рассчитана максимальная выходная мощность изготовленной гибридной сборки. Результаты определения максимальной выходной мощности при сопротивлении 200 Ом представлены в таблицах 4-5.

Таблица 4 – Результаты определения максимальной выходной мощности при различных сопротивлениях (режим импульса: 10 мс, 10 с)

| Значение сопротивления <i>R</i> , Ом | Максимальная амплитуда импульса U_{max} , В | Максимальная выходная мощность P_{max} , мВт |
|--------------------------------------|---|--|
| 200 | 2,2 | 24,2 |

Таблица 5 – Результаты определения максимальной выходной мощности при различных сопротивлениях (режим импульса: 10 мс, 1 с)

| Значение сопротивления R, Ом | Максимальная амплитуда импульса U_{\max} , В | Максимальная выходная мощность P_{\max} , мВт |
|---------------------------------|---|--|
| 200 | 2 | 20 |

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

Разработана конструкция автономного радиоизотопного источника питания конденсаторного типа, с использованием с использованием в качестве источника ионизирующего излучения радионуклида $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, и ионной жидкости в качестве электролита.

1 Разработаны две технология изготовления углеродных электродов с радиоизотопами $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Используя метод физической активации CO_2 с предварительной карбонизацией при пониженных температурах достигнута удельная площадь поверхности синтезируемого углеродного материала - $1315 \text{ м}^2/\text{г}$. Продемонстрировано, что разработанные в рамках работы технологии синтеза углеродных материалов модифицированных добавкой водного раствора $(^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y})\text{Cl}_2$, позволяют получать радиационно стойкую структуру, препятствующую выходу радионуклида $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ в раствор.

2 Разработан технологический процесс изготовления автономного радиоизотопного источника питания конденсаторного типа.

3 На разработанных источниках питания достигнуты удельные мощности при постоянной нагрузке $6 \text{ мкВт}/\text{см}^3$, в импульсном режиме $690 \text{ мкВт}/\text{см}^3$.

4 Продемонстрирована устойчивость к внешнему радиационному воздействию до 100 крад, а также стабильная работа в температурном диапазоне от -65°C до $+130^\circ\text{C}$. Автономные радиоизотопные источники питания конденсаторного типа показали устойчивость к воздействию на них механических вибрационных, ударных и транспортировочных нагрузок.

5 Изготовлен и исследован электронный модуль периодической активации, выполненный в виде гибридной сборки из автономного радиоизотопного источника питания конденсаторного типа, накопителя энергии и интегральной схемы. Напряжение изготовленного для данной работы источника питания составило 2,3 В, ток короткого замыкания - 1,2 мА. Максимальная выходная мощность изготовленной

гибридной сборки составила 24,2 мВт, при амплитуде импульса 2,2 В, сопротивлении 200 Ом и скважности 1000.

Рекомендации и перспективы дальнейшей разработки темы.

Результаты диссертационной работы могут быть использованы для выполнения дальнейших опытно-конструкторских работ с целью создания автономного радиоизотопного источника питания под нужды Заказчика. Перспектива дальнейшего развития данной темы заключается в разработке полноценной физической и математической модели данного типа источников питания, позволяющей спрогнозировать выходные электрические характеристики в зависимости от используемых материалов и конструктивного исполнения с целью создания автономного радиоизотопного источника питания с удельными выходными мощностными характеристиками от 50 мкВт/см³, что в свою очередь даст возможность широкомасштабного внедрения изделий подобного типа.

СПИСОК ОСНОВНЫХ ПУБЛИКАЦИЙ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах, определенных ВАК РФ и Аттестационным советом УрФУ

1. **Butakov, D.S.** Next-Generation Capacitor-Type Nuclear Batteries with Liquid Electrolyte / D. S. Butakov, V. D. Risovanyi, A. I. Kostylev, V. N. Dushin, N. G. Firsin, L. P. Sinel'nikov, V. N. Nikolkin // Atomic Energy. – 2022. – Vol. 132. - №3. – P. 182–186. 0,28 п. л. / 0,2 п. л. (Scopus)

2. **Butakov, D.S.** Sr-doped carbon matrices for use as electrodes in autonomous electrical energy sources / **D. S. Butakov**, A. A. Askarova, V. N. Nikolkin, L. P. Sinel'nikov, V. N. Rychkov // Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo Assets Engineering. - 2024. - Vol. 335. - №6. - P. 135–142. 0,74 п. л. / 0,24 п. л. (Scopus)

3. **Butakov, D.S.** Optimization of the Technology for Manufacturing the Electrodes for Self-Charging Supercapacitors from Carbon Nanotubes / **D. S. Butakov**, N. V. Keller, V. N. Nikolkin, A. A. Zolotavin, A. A. Askarova, V. Y. Kheynstein // Russian Journal of Electrochemistry. – 2024. – Vol. 60. - №7. –P. 526–531. 0,49 п. л. / 0,15 п. л. (Scopus)

4. **Бутаков, Д.С.** Разработка радиоизотопных автономных источников питания конденсаторного типа с жидким электролитом / **Д.С. Бутаков**, В.Н. Николкин, Н.В. Келлер, А.А. Аскарова, В.Я. Плюхина, В.Д. Рисованный // НОВОЕ В РОССИЙСКОЙ ЭЛЕКТРОЭНЕРГЕТИКЕ. – 2024. - № 6. – С. 21-31. 0,62 п. л. / 0,4 п. л.

Патенты

5. Патент РФ № RU 2777413 С1, 03.08.2022. Радионуклидный источник питания суперконденсаторного типа и способ его изготовления // Патент России № 2021127432. 2019. Бюл. №22. А.И. Костылев, Н.Г. Фирсин, Е.А. Печерцева, А.В. Мацкевич, В.Н. Душин, Н.А. Кудряшев, Н.А. Корсакова, С.И. Кузнецов, А.А. Андреева, В.Д. Рисованный, **Д.С. Бутаков**, В.Н. Николкин, Л.П. Синельников, Д.А. Мухортов.

6. Патент РФ № RU 2813372 С1, 12.02.2024. Электрод радиоизотопного источника питания и способ его изготовления // Патент России № 2022133696. 2022.

Бюл. №25. **Д.С. Бутаков**, Л.П. Синельников, В.Н. Николкин, А.А. Аскарова, Е.В. Дегтярева, О.К. Зарубина, А.А. Золотавин, Н.В. Келлер, Т.Л. Кузина, В.Я. Плюхина, С.В. Тарасов.

Другие публикации

7. Золотавин, А.А. Освоение технологии получения углеродных нанотрубок на установке CVDLAB CWR-1100 / А.А. Золотавин, В.Н. Николкин, **Д.С. Бутаков** // Реакторные материалы атомной энергетики. - 2021. - С. 54. 0,06 п. л. / 0,02 п. л.

8. Аскарова, А.А. Электрохимические исследования электролитов и материалов применяемых в радиоизотопных автономных источниках питания / А.А. Аскарова, В.Н. Николкин, **Д.С. Бутаков**, Т.Л. Кузина // Реакторные материалы атомной энергетики. - 2021. - С. 57-58. 0,12 п. л. / 0,03 п. л.

9. **Бутаков, Д.С.** Влияние ионизирующего излучения на электрофизические характеристики ионных жидкостей / **Д.С. Бутаков**, А.А. Золотавин, В.Н. Николкин // Реакторные материалы атомной энергетики. - 2021. - С. 59-60. 0,12 п. л. / 0,1 п. л.

10. Келлер, Н.В. Исследования углеродных нанотрубок полученных методом химического осаждения из газовой фазы на установке CVDLAB CWR-1100 / Н.В. Келлер, **Д.С. Бутаков**, В.Н. Николкин // Реакторные материалы атомной энергетики. - 2021. - С. 61-62. 0,12 п. л. / 0,06 п. л.