# 同位素温差电池用高效热电转换材料与器件研究进展

柏胜强<sup>1,2</sup>,廖锦城<sup>1,2</sup>,夏绪贵<sup>1,2</sup>,陈立东<sup>1,2</sup>

(1. 中国科学院上海硅酸盐研究所,上海 200050; 2. 中国科学院大学 材料科学与光电技术学院,北京 100049)

摘 要: 同位素温差电池(Radioisotope Thermoelectric Generator, RTG)自20世纪60年代以来在深空探测领域获得长期应用。综述了同位素温差电池的主要特点和关键技术,介绍了高效热电转换材料与器件最新研究进展,结合未来深空探测需求,提出同位素温差电池用热电转换材料与器件技术的发展思路。

关键词:同位素温差电池;热电转换材料;热电发电器件

中图分类号: V43 文献标识码: A 文章编号: 2096-9287(2020)06-0525-11

DOI:10.15982/j.issn.2096-9287.2020.20200062

**引用格式:**柏胜强,廖锦城,夏绪贵,等.同位素温差电池用高效热电转换材料与器件研究进展[J].深空探测 学报(中英文),2020,7(6):525-535.

**Reference format:** BAI S Q, LIAO J C, XIA X G, et al. Research progress of thermoelectric materials and devices radioisotope thermoelectric generators[J]. Journal of Deep Space Exploration, 2020, 7 (6): 525-535.

# 引 言

全球经济的发展和科技的进步促进了空间科学, 特别是深空探测技术的快速发展,美、欧、印、日等 国家均加快了太阳系外层行星的探测计划。我国载人 航天和探月工程发展迅速<sup>[1]</sup>。2020年"天问1号"火星探 测器的成功发射,标志着我国对太阳系其它行星以及 深空探测计划开始实施。由于距离太阳过远,光照强 度极弱,太阳能电池已经无法满足木星以远的太阳系 行星和太阳系边际探测等任务。作为深空探测的关键 技术之一,先进空间电源系统的研发迫在眉睫<sup>[25]</sup>。

核电源系统,因其不受太阳光和其他环境的影响,可以同时为航天器提供电能和热能,自20世纪 60年代以来在美、俄(前苏联)月球、火星和深空探 测领域获得长期应用。空间核电源中,热源有两种形 式,即放射性同位素和核反应堆。采用放射性同位素 热源的电池通常输出功率较小,从毫瓦级至几百瓦 级,适用于特种卫星、行星着陆器/巡视器、深空探测 器等小功率需求的电源供给;而采用核反应堆为热源 的电池功率范围为千瓦级至兆瓦级,可用于行星表面 开发(月球/火星基地)、空间轨道运输、高功率载荷 航天器、深空探测器等大功率电源需求的系统<sup>[68]</sup>。按 热能转变为电能的方式,核电源又可分为静态方式 (温差电-Thermoelectric、热光伏-Thermophotovoltaic、 热离子-Thermionic、碱金属)和动态方式(如:斯特林-Stirling、朗肯-Rankine、布雷顿-Brayton)。典型核电源系统如图1所示,与静态方式相比,采用动态方式换能的电源系统转换效率更高、比功率也更大。由于含有运动部件或工作介质,动态方式核电源的固有可靠性和服役寿命一般不及静态方式。

同位素温差电池(Radioisotope Thermoelectric Generator, RTG)是利用半导体材料的泽贝克(Seebeck) 效应将热能直接转变成电能的一种物理电源,具有系统 体积小、结构紧凑、可靠性高、寿命长等特点。半个多 世纪以来,美国一直在深空探测领域长期处于国际领 先地位,为近50个空间飞行器、着陆/巡视器的核心能 源供给装置,长寿命、高可靠的RTG有效保障和支撑 了美国深空探测技术的发展<sup>[9]</sup>。2000年以来,我国热电 转换技术发展迅速,在热电转换材料设计合成与器件 研制方面取得了长足的发展。2018年,我国在"嫦娥 4号"中首次使用了RTG,在月夜热电联供系统的支持 下,完成国际首次月球背面月夜阶段月球表面温度采集 任务,实现了同位素温差电池技术的重大突破<sup>[1,10-1]</sup>。

本文将简述同位素温差电池的主要特点和关键技术,介绍热电能量转换技术高效热电转换材料与器件的研究进展,结合未来深空探测需求,提出RTG用热电转换材料与器件技术的发展思路。



图 1 典型核电源系统的能量转换 Fig. 1 Energy conversion of typical space nuclear power

### 1 RTG的特点与现状

#### 1.1 RTG的结构与基本特点

同位素温差电池的结构主要包括放射性同位素热 源、热电转换器件(也称换能器/组件)、外壳(包括 散热器)及附件(传感器、结构/电气接口等)。图2 给出了2种典型的空间用RTG的结构,其中热电转换器 件的安装方式不同。对于瓦级及以下小功率电池(例 如:俄罗斯Angel-RTG<sup>[12]</sup>等),热电转换器件的整体体 积小,可以安装在热源的端面,如图2(a)所示。这 种结构安装简单,由于热源表面的有效热利用面积 小,系统漏热大,电池的能量转换效率一般不高。在 几十~百瓦级大功率电池,例如:美国多任务RTG

(Multi Mission-RTG, MMRTG)<sup>[9]</sup>等,热电转换器件 数量达到几十至几百个,通常在圆柱形同位素热源的 圆周范围内呈均匀的辐射状分布,这种结构可以减少 系统漏热并保证热源温场分布均匀,如图2(b)所 示。为了使不同发电单元的输出电压具有高一致性, 需要保证每个热电转换器件与热源和外壳(散热器) 的热接触良好,这对于系统结构设计与集成安装技术 提出很高要求。

与化学电池、太阳能电池--蓄电池供电系统、燃料 电池相比,同位素温差电池的环境适应性更强、可靠 性更高、寿命更长,特别适用于任务周期1 a以上至数 10 a的空间工程,以及环境恶劣、无人维护的边远地 区、远海岛礁的长期工作的装备。目前,同位素温差 电池的系统效率不高(约6%左右),且常用放射性同 位素热源的原料钚238(Pu238)的价格十分昂贵,使 用钚238热源的空间用RTG的电功率都在数百瓦以内。

#### 1.2 国外RTG发展现状与发展趋势

美、俄等国在空间核电源技术领域一直处于国际 领先,发展基本同步,但技术路线不同,美国几乎全 部使用Pu238作为热源,而俄罗斯(前苏联)的空间核 电源多采用核反应堆作为热源。本文简述了美国RTG 的发展进程和技术特点,美国RTG技术的发展进程如 图3所示,表1列举了美国空间RTG的主要型号及其性 能参数<sup>[9,13]</sup>。



图 2 典型RTG结构中热电转换器件的不同安装方式 Fig. 2 Installation structure in two typical RTG



图 3 美国RTG技术的发展进程

Fig. 3 Develop process of RTG in USA

#### 表1 美国空间用RTG的主要型号及其性能参数

Table 1 Typical RTG model of USA and their performances

参数	SNAP-3B	SNAP-19	MHW-RTG	GPHS-RTG	MMRTG
电功率(BOM)/W <sub>e</sub>	2.7	40	170	300	125
输出电压/V	5.6	16	30	30	28
热功率(BOM)/W <sub>th</sub>	53	610	2 400	4 500	2 000
热源质量/kg	0.12	1.23	4.8	9.0	5.0
热电转换材料	Pb-Te	TAGS-SnTe/PbTe	Si-Ge	Si-Ge	TAGS-SnTe/PbTe
电池效率(BOM)/%	4.5	6.5	6.7	6.7	6.4
电池质量/kg	5.2	15.0	36.0	60.0	44.0
质量比功率/(W·kg <sup>-1</sup> )	0.52	2.7	4.7	5.0	2.8
设计寿命/a	5	10	10	15	17

20世纪50年代,美国启动了核辅助电源系统 (Systems for Nuclear Auxiliar Power, SNAP)计划, 其首个钚238同位素电池SNAP-3B应用于1961年发射的 近地轨道卫星Transit-4A。作为卫星的辅助电源, SNAP-3B的电功率为2.7 W<sub>e</sub>,质量约5.2 kg。随后,美 国开发了一系列SNAP型号的RTG,其中SNAP-19改进 了热电转换器件的设计与连接技术,并在n型元件中 采用了TAGS-SnTe多段结构,有效提高了电池的效率 (~6.5%)。此外,SNAP-19通过改进电路设计、改善 电池内部惰性气体环境等手段提高了电池的使用寿 命,被成功应用于"海盗号"(Viking)火星着陆器。 1969—1972年,为适宜Apollo登月任务的需求, SNAP-27被设计成同位素热源与发电器分离的结构。 发射过程中同位素热源与发电器分开放置,在月面 上由宇航员将同位素热源装入发电器中完成RTG的 装配。

为满足空间飞行器及大功率载荷的电源需求,百 瓦级RTG(Multi Hundred Watts-RTG,MHW-RTG) 采用高温SiGe材料,电功率达到170W<sub>e</sub>。由于热源温 度达到1000℃以上,热量的传递方式由传导改变为辐 射,MHW-RTG中热电发电器件的热端采用大面积集 热板,而冷端以悬臂方式支撑在外壳上。相对于 SNAP系列中温PbTe材料,高温SiGe材料和器件的制 备和集成,以及系统隔热的难度大幅提升,高温温差 发电器的应用也标志着美国RTG技术的又一次突破。 1977年发射的"旅行者1号"(Voyager 1)使用了MHW-RTG,并于2012年首次穿越日球层进入星际介质,至 今仍在工作。"旅行者1号"的服役寿命已经超过43 a, 创造了空间RTG的最高纪录。随后,在MHW-RTG的 基础上,美国国家航空航天局(National Aeronautics Space and Administration, NASA)引入了通用型和模 块化的概念,设计并研制了通用热源型RTG(General Purpose Heat Source-RTG, GPHS-RTG),其最大的变 化是设计了标准规格的热源单元,并通过自由组合实 现大功率热源的模块化集成,实现了300 W<sub>e</sub>级大功率 RTG的单体设计与集成。

MMRTG采用模块化热源和模块化换能组件,并 在热电转换器件内部增加了弹簧固定机构,其承受随 机振动的强度是以往RTG最好结果的2.5倍以上。由于 电池结构可靠性的提升,MMRTG的环境适应性更 强,能够适应星际航行、行星表面着陆和巡视漫游等 不同任务的要求。目前,MMRTG的电功率约120 W<sub>e</sub>, 设计寿命17 a以上,已被成功应用于"好奇号" (Curiosity)、"毅力号"(Preseverance)火星着陆/巡 视器。

2005年后,NASA先后提出了增强型多任务同位 素温差电池计划(enhanced MMRTG, eMMRTG)和 先进同位素温差电池(Advanced RTG,ARTG)计 划,目标是电池系统的转换效率分别达到8%~10%和 13%~15%<sup>[14]</sup>。2016年10月13日,美国喷气推进实验 室(Jet Propulsion Lab,JPL)在网站公开新一代 eMMRTG将采用CoSb<sub>3</sub>基填充方钴矿材料,JPL预测 eMMRTG的转换效率(Begin Of Mission,BOM)、输 出功率(End Of Mission,EOM)较"好奇号"使用的 MMRTG分别提高24%和50%<sup>[15]</sup>,其性能参数对比结果 如表2所示。

表 2 美国JPL的MMRTG与eMMRTG主要性能参数对比<sup>[15]</sup> Table 2 Comparison of the design parameters of the MMRTG and eMMRTG systems<sup>[15]</sup>

设计参数	MMRTG	Enhanced MMRTG	
热电转换材料	PbTe/ (TAGS 85, PbSnTe)	SKD	
热电偶对数	768	768	
热功率(BOM)/W <sub>th</sub>	1 984	待定	
热电偶热面温度/℃	525	600	
热电偶冷面温度/℃	100~200	100~200	
初始电功率(BOM)/W <sub>e</sub>	约120	约145~170	
14年末电功率(EOM) /W <sub>e</sub>	60	~90~105	
电池效率(BOM)/%	6.0	7.6~8.3	
质量比功率/(W·kg <sup>-1</sup> )	2.8	~3.6~4.2	

#### 1.3 我国RTG技术发展现状

我国的第一个同位素温差电池1971年3月12日诞生

于中国科学院上海原子核所(热源是由国科学院原子 能所研制),以钋210为热源燃料,热功率35.5 W、输 出电功率为1.4 W<sub>e</sub>、转换效率4.2%,并进行了地面模 拟试验<sup>[16]</sup>。此后,RTG及其相关的热电发电技术研究 一度处于停顿状态。2000年以后,我国加大了对热电 转换技术的研究投入,热电转换材料和器件技术发展 迅速,RTG等应用系统的技术也逐渐成熟。2000年以 后,中国原子能科学研究院、中国电子科技集团、中 国科学院等分别启动了同位素温差电池的研发工作。

2006年,我国第一颗钚238同位素温差电池诞生, 输出功率约400 mW<sub>e</sub>,转换效率约3.3%,输出功率和 转换效率优于俄罗斯Angel-RTG,对比结果如表3<sup>[17]</sup>所 示。随后,我国又先后突破了瓦级和百瓦级同位素电 池的设计与集成关键技术。2018年,我国自主设计研 制的钚238同位素温差电池成功应用于"嫦娥4号"的月 球巡视器,实现我国同位素温差电池的首次空间工程 应用,标志着我国空间核电源技术领域的重大突破。 该电池总质量7.0 kg,外形尺寸230 mm×199 mm× 160 mm,输出功率约3.2~3.5 W<sub>e</sub>,至今仍正常工作<sup>[11]</sup>。

表 3 两个百毫瓦级同位素温差电池主要参数<sup>[17]</sup>

Tuble b	The periormane	
参数	Angel-RTG	<sup>238</sup> Pu同位素温差电池
电功率/W <sub>e</sub>	0.22	0.372
电压/V	15	2.99
燃料	<sup>238</sup> PuO <sub>2</sub>	<sup>238</sup> PuO <sub>2</sub>
热功率/W <sub>th</sub>	8.5	11.2
热电转换材料	Bi-Te	Bi-Te
热面温度/℃	160	153.8
效率/%	2.6	3.3
尺寸/mm	$\Phi 85  imes 125$	$\Phi$ 85×150(含散热器)
质量/kg	0.5	1.4 (含散热器)
寿命/a	10	$\geqslant 3$

### 2 热电转换材料与器件

同位素温差电池作为一个独立的电源系统,包含 了同位素热源、换能组件、隔热材料、外壳及辅件 等,如图4所示。RTG的每一部分又包含若干个结构和 功能部件,涉及热、力、电等多种关键技术。换能组 件是实现热能到电能直接转换的核心部件,因此热电 转换材料和器件技术也是RTG的关键之一。

热电材料的性能决定了器件和发电系统的理论最 大转换效率。按服役温度划分的低温、中温、高温区 代表性热电材料分别是Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>基合金、CoSb<sub>3</sub>基方钴 矿、La-Te和Si-Ge合金。近20年来,我国在新型高性 能热电转换材料、高效热电发电器件技术领域发展也 非常迅速。目前,我国自主研制的Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>基、PbTe基、 SiGe基、方钴矿、半赫斯勒等多个体系实用化热电材 料的性能优值*ZT*达到1.0以上,并实现了批量稳定制备;模块化热电发电器件的转换效率最高可达12%以上,这些都为新型高性能RTG的研发奠定了材料和器件基础。



图 4 同位素温差电池结构框架图 Fig. 4 The structural frame of RTG

### 2.1 物理机制与合成技术

温差发电技术的核心包括材料性能与器件技术两 个方面。因为热电转换效率是由材料的热电优值ZT和 工作温差决定,所以具有高ZT值的材料一直是热电领 域追求目标。近些年,随着声子晶体—电子玻璃、纳 米复合、类液态、超晶格等新物理机制和材料设计方 法的提出,大量的新型高性能热电材料不断涌现,材 料的热电性能ZT值获得了大幅度提升,部分材料的实 验室报道最高ZT值超过了2.0以上(见表4)<sup>[18]</sup>。同 时,一些制备新技术(如:熔融旋甩、感应熔炼、自 蔓延合成等)的发展加速了实用化热电材料性能的快 速提升,目前放量生产的碲化铋、方钴矿以及半赫斯 勒合金等材料的最大ZT能够稳定在1.0以上<sup>[19]</sup>。

对空间应用的RTG来说,由于受热辐射能力限

制,冷端温度显著高于地面主动冷却系统,须采用工 作温区在300~1000℃的中高温热电材料。长期以 来,美国空间RTG用高温(600~1000℃)热电材料均 为SiGe基合金,其n型和p型材料的最大ZT值分别达 1.0和0.6左右。新世纪以来,美国NASA-JPL实验室、 加州理工大学等开发了新型高温热电材料,其中n型 La<sub>3</sub>Te<sub>4</sub>和p型Yb<sub>14</sub>MnSb<sub>11</sub>的最高ZT值在1000℃时达到 了1.5以上,将替代SiGe基合金应用于新一代RTG中。 热电材料性能优值的发展历程如图5所示。目前,我国 传统SiGe基合金的热电性能已经与美国JPL相当。在 新型高温热电材料的研发方面,我国自主研发的p型 NbFeSb和n型ZrNiSn基半赫斯勒合金材料的最大ZT值 在1000℃时分别达1.5和1.2,实现了批量稳定制备, 且材料制备成本也显著低于SiGe体系(见图6),具备 了RTG应用的基本条件<sup>[20-23]</sup>。

Table 4         Performances of typical thermoelectric modules in China <sup>[19]</sup>							
性能参数	单级器件			级联器件			
材料体系	Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub>	PbTe	SKD	HH	SiGe	SKD+Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub>	HH+Bi <sub>2</sub> Te <sub>3</sub>
热面工作温度/℃	<300	<550	<600	<850	<1 000	<600	<850
最大转换效率/%	6~7	~7	10.4	10.5	~7	12	12.4
面功率密度/(W·cm <sup>-2</sup> )	0.5	0.8	1~1.5	2~3.5	0.5~1	~1.5	~1.5
功率质量比/(W·kg <sup>-1</sup> )	~120	150~200	250~300	250~350	300~350	250~350	250~350
功率体积比/(W·cm <sup>-3</sup> )	~0.5	0.5	1~2	2~3	0.6~1	~2	~2

表 4 我国现有热电器件的主要性能参数<sup>19</sup>







图 6 典型热电材料性能优值与成本 Fig. 6 Dimensionless figure of merit and cost for typical thermoelectric materials

中温区(300~600℃)材料中,传统PbTe基合金 (含TAGS等)的最大ZT值约1.0~1.2。近年来,通过 纳米复合等手段将PbTe基合金的ZT值提升至2.0左右。 但是,由于PbTe基材料的挥发速率比SiGe、半赫斯 勒、方钴矿等材料高出2~4个数量级,应用于RTG时 其功率年衰减率较大。为保证RTG的服役寿命,PbTe 基热电转换器件的高温端工作温度通常不超过550℃, 较小的温差也限制了RTG的系统效率。近年来,多原 子填充、原位复合等技术的应用使得中温CoSb<sub>3</sub>基填充 方钴矿的热电性能获得大幅提升,目前n型和p型材料 的最大ZT值在550℃时分别达1.8和1.2左右<sup>[23-25]</sup>。由于 CoSb<sub>3</sub>基填充方钴矿材料的高温稳定性比PbTe基合金 更好,其器件的高温端工作温度可以达到600℃左 右,因此空间RTG用方钴矿器件的转换效率比PbTe高 1~2个百分点。目前,我国CoSb<sub>3</sub>基填充方钴矿也实现 了批量稳定制备,具备RTG应用的基本条件。

### 2.2 热电器件结构优化设计与集成制造技术

热电器件是实现从热电材料向热电转换技术跃升 的核心环节,与迅猛发展的热电材料科学相比较,热 电器件的研究相对滞后,且大部分工作集中在材料性 能的原理性验证。热电器件集成技术涵盖了热、力、 电、物理、化学、材料等多学科交叉的科学与技术问 题,由于缺少成熟的结构设计方法与通用的集成制造 技术,长期以来实用化器件的性能没有明显提升(见 图7)。例如:美国JPL早期研制并长期使用的SiGe和 PbTe 基器件的转换效率仅分别为~7%和7.6%<sup>[9,13]</sup>; 2010年前后,随着新材料性能和多段结构宽温域器件 技术的发展,JPL元器件的转换效率达到了10%~15%。





热电器件的实际转换效率、输出功率等性能不仅 受到热电材料的物理性质和服役环境的制约,而且与 器件的拓扑结构紧密相关。过去的几十年中,热电器 件的设计虽然实现了几何结构模型的三维化,但在电 流和热流传导计算过程中仍然采用一维或准一维模 型,即:通过材料热电性能温度依存关系的线性化、 忽略汤姆孙效应(Thomson effect)、不考虑对流/辐射 等简化或假设,将器件内部三维分布的电流和热流传 导过程简化为一维关系。然而在真实器件中,复杂的 几何结构决定了器件中热流和电流分布的三维特征不 可忽视, 增加了器件优化设计的难度。基于有限元的 三维模型计算方法,不仅可以实现对器件热流、电流 等全参量的三维仿真模拟,而且在仿真计算中可以全 面考虑热电器件的拓扑结构(几何形状、尺寸、连接 方式等)、电流与热流耦合匹配、异质界面结构(电 极/热电材料、电极/绝缘基板、填充材料等)要素对器 件输出性能的影响,从而实现了复杂结构器件的优化 设计(如图8所示)<sup>[26]</sup>。通过对各个影响要素进行多参 数耦合分析,可获得实现不同目标(最大输出功率、 最大转换效率、最大质量比功率或最大功率密度等) 的最佳设计方案。

在器件设计方法突破的同时,器件高温电极的匹 配设计、界面结构与性能的演化规律、防护涂层与器 件封装等技术不断突破<sup>[27-29]</sup>。RTG可用的中温PbTe和 方钴矿器件、高温SiGe和半赫斯勒器件的电极材料、 界面材料及其连接技术<sup>[30]</sup>,中高温热电转换器件的集 成技术比较相似,通常选用高热导、高电导, 且高温 稳定、热膨胀系数与其连接的热电材料匹配的高温电 极,采用钎焊、高温焊或弹簧压接的方法进行连接和 集成。值得强调的是,为了防止在长期服役过程中高 温电极与热电材料之间的界面反应或界面扩散导致结 构损伤和功能衰减,必须引入扩散阻挡层来提高中高 温热电转换器件的可靠性和服役寿命。典型热电材料 的力学性能[18]中多数热电材料都是脆性材料,其力学 性能直接影响器件和发电系统的结构可靠性[28]。因此 在实际服役中热电材料和器件必须通过严格的空间力 学环境试验考核。此外,热电材料和器件长期处于放 射性同位素热源的强中子辐照环境,材料的抗辐照损 伤性能也是影响器件可靠性关键。





近年来,我国新型热电器件的能量转换效率等输 出性能得到快速提升。例如:在中温方钴矿(SKD) 器件方面,Zong等采用石墨烯复合的SKD材料制备的 单级器件转换效率超过8%<sup>[30]</sup>;Zhang等采用纳米复合 SKD材料制备的单级器件转换效率可达9.3%<sup>[31]</sup>;Chu等 基于反应扩散模型对电极界面的扩散阻挡层进行了优 化设计,采用Nb作为扩散阻挡层的单级SKD器件转换 效率突破了10%<sup>[32]</sup>。在高温半赫斯勒(HH)器件方 面,Fu等首次采用新型高热电性能的ZrNiSn(n型)和 FeNbSb(p型)基HH材料制备的单级器件转换效率和 功率密度分别达到6.2%和2.2 W/cm<sup>[21]</sup>;Xing等在优化 了HH材料制备工艺、并引入低能量损耗的器件集成技术后,将HH单级器件的转换效率提高至9.6%<sup>[33]</sup>。最近,在全参数模型的基础上,Xing等又提出了"双高"器件(即:同时具有高转换效率和高功率密度)的设计策略,通过功率因子优先和热导率匹配的原则指导材料成分和器件结构的优化设计,经过自上而下的设计优化,HH单级器件转换效率突破10%,且同时实现3.1 W/cm的高功率密度<sup>[34]</sup>。

目前,所有均质热电材料都只能在一定温度区间 内达到其最佳热电性能。因此,利用单一热电材料提 高器件的转换效率存在局限性。例如,填充方钴矿材 料的最佳工作温区在400~600 ℃,其最优组份材料在 此温区内ZT值超过1.0。但是,当工作温度低于400 ℃ 时,ZT值迅速下降;而当工作温度高于600 ℃时,材 料ZT值和稳定性都会明显降低。解决单一热电材料最 佳工作温区小的有效方法是构建多段(Segment)或多 层(Cascade)级联器件,即沿温度梯度方向选取具有 不同最佳工作温度的热电材料并组合使用,让不同材 料都工作在其最佳工作温区(即:实现全温区ZT值最 大化),由此形成的宽温域热电器件可以有效地提高 能量转换效率,钎焊工艺制备热电器件过程如图9所 示。近年来,宽温域热电器件已被证明能够有效提高 转换效率,例如:日本产业技术综合研究所与美国西 北大学共同设计的Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>/PbTe多段结构宽温域器件在 590 ℃温差下的最大转换效率达到11%; 上海硅酸盐所 研制的Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>/SKD多段结构宽温域器件在530 ℃温差 下转换效率达到12%<sup>[26]</sup>。Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>/HH多段结构宽温域器 件在670 ℃温差下的最大转换效率达到12.4%<sup>[33]</sup>。相对 于单级热电器件,多段结构宽温域器件中异质界面增 多,这不仅会造成界面热阻和电阻的增加、影响器件 实际转换效率,而且复杂的结构还会放大热应力、导 致器件的结构可靠性的降低。因此,多段或多层级联 热电器件的结构设计与集成技术较单级器件有更高的 要求。





## 3 我国同位素温差电池用热电材料与器 件的发展展望

经过近20 a的快速发展,我国热电材料和器件技 术取得了长足进步,转换效率、比功率等性能已经基 本满足空间工程的要求。但是,我国在热电转换器件 和系统可靠性、大功率电池的优化设计与集成、服役 环境适应性等方面的研究刚刚起步,与美、俄的差距 仍然较大。目前,我国RTG的整体技术水平尚不能满 足我国空间探测、远洋深海等领域的未来发展需求。

RTG的设计寿命一般在15 a以上,因此可靠性设 计是RTG设计和集成技术的核心。突破大功率电池的 可靠性设计和制造技术是我国RTG需要解决的首要任 务。由于我国新型热电转换材料与器件在强中子辐射 场和空间环境下的服役行为及其性能衰减机制尚不清 楚,无法建立同位素温差电池的环境适应性评价与寿 命预测的方法,进而制约了RTG应用技术的发展。因 此,我国未来需要建立热-力-电-辐射多外场耦合条件 下热电材料和器件性能衰变与失效(包括功能性和结 构性失效)的机制,建立模拟服役环境下RTG的加速 试验方法,发展RTG中热电材料和器件服役寿命的科 学预测方法,实现RTG全寿命周期的性能可预测,热 电器件失效模式逻辑框架如图10所示。

另外,提高能量转换效率是同位素温差电池长期 追求的目标,我国未来深空探测任务要求RTG的热电 能量转换效率突破15%,服役寿命突破20 a,因此必须 突破高转换效率热电器件的设计方法与集成制造技 术。我国在热电材料研究领域基础较好,发展中国特 色的热电材料和器件是切实可行的。目前,我国自主 研制方钴矿、半赫斯勒等热电材料的性能已经实现国 际领先<sup>[33]</sup>,并展现出RTG应用潜力,未来需要通过多 段梯度结构宽温域热电器件的拓扑结构精细化设计与 集成技术,进一步提升器件的能量转换效率和服役可 靠性。另外,近年来我国科研人员开发了多种新型高 热电性能的材料,未来可以遴选出一批具有RTG应用 潜力的新型高性能的热电材料,突破其器件化技术, 为我国RTG的长期持续发展提供材料支撑和技术储备 保障。



图 10 热电器件失效模式逻辑框架图 Fig. 10 Failure mode logic diagram for thermoelectric devices

### 4 结束语

本文主要总结了同位素温差电池用高效热电转换 材料与器件的研究进展,结合未来深空探测需求,提 出了同位素电池发展的思路。

月球、火星等星表基地也对先进空间电源技术提出了新的需求<sup>[36-39]</sup>。随着我国深空探测计划的不断发展,未来太阳系边际探测任务主要来自核动力,RTG 技术将在已有良好的研究基础上实现快速发展和工程 应用。

### 参考文献

- [1] 吴伟仁,刘继忠,唐玉华,等.中国探月工程[J]. 深空探测学报(中英 文),2019,6(5):405-416.
  WU W R,LIU J Z, TANG Y H, et al. China lunar exploration program[J]. Journal of Deep Space Exploration, 2019,6(5):405-416.
- [2] 叶培建,彭兢. 深空探测与我国深空探测展望[J]. 中国工程科学, 2006,8(10):13-18.
   YE P J, PENG J. Deep space exploration and its prospect in China[J]. Engineering Science, 2006,8(10):13-18.
- [3] 吴伟仁,于登云.深空探测发展与未来关键技术[J].深空探测学报 (中英文),2014,1(1):5-17.

WU W R, YU D Y. Development of deep space exploration and its future key technologies[J]. Journal of Deep Space Exploration, 2014, 1(1): 5-17.

[4] 朱安文,刘磊,马世俊,等. 空间和动力在深空探测中的应用及发展
 综述[J]. 深空探测学报(中英文),2017,4(5):397-404.
 ZHU A W,LIU L,MA S J,et al. An overview of the use and

development of nuclear power system in deep space exploration[J].

Journal of Deep Space Exploration, 2017, 4(5): 397-404.

- [5] 张建中,任保国,王泽深,等. 放射性同位素温差发电器在深空探测中的应用[J]. 宇航学报,2008,29(2):644-647. ZHANG J Z, REN B G, WANG Z S, et al. Radioisotope thermoelectric generators in deep space exploration[J]. Journal of Astronautics, 2008,
- 29(2):644-647.
  [6] 吴伟仁,刘继忠,赵小津,等. 空间核反应堆电源研究[J]. 中国科学: 技术科学,2019,49(1):1-12.
  WU W R, LIU J Z, ZHAO X J, et al. System engineering research and application foreground of space nuclear reactor power generators[J].

Science Sinica Technologica, 2019, 49(1): 1-12.

- [7] 胡古,赵守智. 空间核反应堆电源技术概览[J]. 深空探测学报(中英文),2017,4(5):430-443.
  HU G, ZHAO S Z. Overview of space nuclear reactor power technology[J]. Journal of Deep Space Exploration, 2017,4(5):430-443.
- [8] 周彪,吉宇,孙俊,等.空间核反应堆电源需求分析研究[J].原子能科 学技术,2020,54(10):1912-1923.
- [9] 陈杰,高劭伦,夏陈超,等. 空间堆核动力技术选择研究[J]. 上海航天,2019,36(6):1-10.
   CHEN J,GAO S L,XIA C C, et al. Study on space nuclear power technological option[J]. Aerospace Shanghai, 2019, 36(6):1-10.
- [10] 张建中. 温差电技术[M]. 天津: 天津科学技术出版社, 2013. ZHANG J Z. Thermoelectric technology[M]. Tianjin: Tianjin Science and Technology Press, 2013.
- [11] 宋馨,陈向东,雷英俊,等. 嫦娥四号着陆器月夜热电联供系统设计 与验证[J]. 航天器工程, 2019, 28(4): 65-69.
  SONG X, CHEN X D, LEI Y J, el al. Design and verification of heat and electricity cogeneration system in moon night of Chang'e-4 lander[J]. Spacecraft Engineering, 2019, 28(4): 65-69.
- [12] 彭磊,侯旭峰,阎勇,等. 嫦娥四号着陆器同位素温差电池设计与验证[J]. 电源技术,2020,44(4):607-612.

PENG L, HOU X F, YAN Y, et al. Design and verification of radioisotope thermoelectric generator for Chang'e-4 lander[J]. Chinese Journal of Power Sources, 2020, 44(4):607-612.

- [13] PUSTOVALOV A. Mini-RTGs on plutonium-238: development and application[C]//Proceedings of Eighteenth International Conference on Thermoelectrics. Baltimore, MD, USA: IEEE, 1999.
- [14] ROWE D M. CRC handbook of Thermoelectrics[M]. New York: CRC Press, 1995.
- [15] EL-GENK M S, SABER H H. Radioisotope power systems with skutterudite-based thermoelectric converters[J]. Space Technology and Applications International Forum-Staif, 2005, 746(1):485-494.
- [16] HOLGATE T C, BENNETT R, HAMMEL T, et al. Increasing the efficiency of the multi-mission radioisotope thermoelectric generator[J]. Journal of Electronic Materials, 2015, 44(6):1814-1821.
- [17] 蔡善钰,何舜尧. 空间放射性同位素电池发展回顾和新世纪应用前景[J]. 核科学与工程,2004,24(2):97-104.
   CAI S Y,HE S Y. Retrospection of development for radioisotope power systems in space and its prospect of application in new century[J]. Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 2004,
- [18] 侯旭峰. 百毫瓦同位素温差电池技术研究[D]. 天津: 天津大学, 2014. HOU X F. Study on technology of the hundred milli-watt radioisotope thermoelectric generator[D]. Tianjin: Tianjin University, 2014.

24(2):97-104.

- [19] SHI X L, ZOU J, CHEN Z G. Advanced thermoelectric design: from materials and structures to devices[J]. Chemical Reviews, 2020, 120(5): 7399-7515.
- [20] 陈立东,刘睿恒,史迅. 热电材料与器件[M]. 北京:科学出版社, 2017.

CHEN L D, LIU R H, SHI X. Thermoelectric materials and devices[D]. Beijing: Science Press, 2017.

- [21] ZHU T J, FU C G, XIE H H, et al. High efficiency half-Heusler thermoelectric materials for energy harvesting[J]. Advanced Energy Materials, 2015, 19(5): 1-13.
- [22] FU C G, BAI S Q, LIU Y T, et al. Realizing high figure of merit in heavy-band p-type half-Heusler thermoelectric materials[J]. Nature Communications, 2015, 8144: 1-7.
- [23] XING Y F, LIU R H, SUN Y Y, et al. Self-propagation hightemperature synthesis of half-Heusler thermoelectric materials: reaction mechanism and applicability[J]. Journal of Materials Chemistry A, 2018, 40(6): 19470-19478.
- [24] ZHAO W Y, LIU Z Y, SUN Z G, et al. Superparamagnetic enhancement of thermoelectric performance[J]. Nature, 2017, 549(7671):247-251.
- [25] SHI X, YANG J, SALVADOR J R, et al. Multiple-filled skutterudites:high thermoelectric figure of merit through separately optimizing electrical and thermal transports[J]. Journal of the American Chemical Society, 2011, 133 (20): 7837-7846.
- [26] ROGL G, GRYTSIV A, ROGL P, et al. Multifilled nanocrystalline ptype didymium - Skutterudites with ZT > 1.2[J]. Intermetallics, 2010, 18(12):2435-2444.
- [27] 张骐昊,柏胜强,陈立东. 热电发电器件与应用技术:现状、挑战与展望[J]. 无机材料学报,2019,34(3):279-293.
  ZHANG Q H, BAI S Q, CHEN L D. Technologies and applications of thermoelectric devices:current status, Challenges and prospects[J]. Journal of Inorganic Materials, 2019, 34(3):279-293.

- [28] LIU W S, BAI S Q. Thermoelectric interface materials: a perspective to the challenge of thermoelectric power generation module[J]. Journal of Materiomics, 2019, 5: 321-336.
- [29] 邵笑,刘睿恒,王亮,等. 服役条件下方钻矿基热电元件的界面应力 分析[J]. 无机材料学报,2019,35(2):225-234.
   SHAO X,LIU R H, WANG H, et al. Interfacial stress analysis on skutterudite-based thermoelectric joints under service conditions[J]. Journal of Inorganic Materials, 2019,35(2):225-234.
- [30] ZHANG Q H, LIAO J C, TANG Y S, et al. Realizing a thermoelectric conversion efficiency of 12% in bismuth telluride/skutterudite segmented modules through full-parameter optimization and energyloss minimized integration[J]. Energy & Environmental Science, 2017, 10: 956-963.
- [31] ZONG P A, HANUS R, DYLLA M, et al. Skutterudite with graphenemodified grain-boundary complexion enhances ZT enabling highefficiency thermoelectric device[J]. Energy & Environmental Science, 2017, 10(1): 183-91.
- [32] ZHANG Q, ZHOU Z, DYLLA M, et al. Realizing high-performance thermoelectric power generation through grain boundary engineering of skutterudite-based nanocomposites[J]. Nano Energy, 2017, 41: 501-510.
- [33] CHU J, HUANG J, LIU R, et al. Electrode interface optimization advances conversion efficiency and stability of thermoelectric devices[J]. Nature Communications, 2020, 11(1): 2723.
- [34] XING Y F, LIU R H, LIAO J C, et al. High-efficiency half-Heusler thermoelectric modules enabled by self-propagating synthesis and topologic structure optimization[J]. Energy & Environmental Science, 2019, 12(11): 3390-3399.
- [35] XING Y F, LIU R H, LIAO J C, et al. A device-to-material strategy guiding the "double-high" thermoelectric module[J]. Joule, 2020, 4(11):2475-2483.
- [36] 缪力威. Kilopower与KRUSTY的发展脉络及研发现状[J]. 科技创新 导报, 2020(17):65-69.
- [37] 彭磊,谢奇林,范晓强,等. 星球表面探测用核反应堆电源初步研究
   [J]. 载人航天,2015,21(3):237-242.
   PENG L,XIE Q L,FAN X Q, et al. Preliminary study on nuclear reactor power source for planetary surface explorations[J]. Manned

Spaceflight, 2015, 21(3): 237-242.

[38] 姚成志,胡古,解家春,等. 月球基地核电源系统方案研究[J]. 原子能
 科学技术,2016,50(3):464-470.
 YAO C Z,HU G,XIE J C,et al. Scheme research of nuclear reactor

power system for lunar base[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2016, 50(3): 464-470.

[39] 马季军,何小斌,乔卫新,等.载人月球任务能源系统初探[J].载人航 天,2019,25(2):143-150.

MA J J, HE X B, QIAO W X, et al. Research on energy system in manned lunar mission[J]. Manned Spaceflight, 2019, 25(2): 143-150.

作者简介:

柏胜强(1979-)男,正高级工程师,主要研究方向:热电材料、热电器件、热电转换技术。 通讯地址:上海市嘉定区和硕路585号(201899) 电话:(021)69163532

E-mail: bsq@mail.sic.ac.cn

# Research Progress of Thermoelectric Materials and Devices for Radioisotope Thermoelectric Generators

BAI Shengqiang<sup>1,2</sup>, LIAO Jingchen<sup>1,2</sup>, XIA Xugui<sup>1,2</sup>, CHEN Lidong<sup>1,2</sup>

(1. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China;

2. Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** Radioisotope Thermoelectric Generator (RTG) have been used in deep space exploration since 1960s. In this paper, the main characteristics and key technologies of the RTG battery are reviewed, and the current developments of high efficiency thermoelectric conversion materials and devices are introduced. Considering the requirements of the deep space exploration, the developments thoughts of the thermoelectric conversion and devices technologies for RTG are put forward.

Keywords: radioisotope thermoelectric generator; thermoelectric materials; thermoelectric modules

#### **Highlights:**

• The research progress of radioisotope thermoelectric generator is reviewed.

- The latest research progress of high-efficiency thermoelectric conversion materials and devices is introduced.
- Considering the requirements of future deep space exploration, the development ideas of thermoelectric conversion materials and device technologies for RTG are put forward.

[责任编辑:杨晓燕,英文审校:朱恬]

(上接第524页)

### Scientific Objectives for the Exploration of the Boundary of Solar System

WANG Chi<sup>1, 2</sup>, LI Hui<sup>1, 2</sup>, GUO Xiaocheng<sup>1, 2</sup>, XU Xinfeng<sup>3</sup>

(1. State Key Laboratory of Space Weather, National Space Science Center, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;2. University of Chinese Academg of Sciences, Beijing 100049, China;

3. General Office of Lunar and Deep Space Exploration, National Space Science Center, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

**Abstract:** The edge of Solar system is the outermost fence of the heliosphere that protects the homeland of mankind. In recent years, Voyager 1 and Voyager 2 have reached the edge, leaving some major scientific mysteries in a unresolved state because of the limits of the payload function. Therefore, a specific mission for the edge of Solar system contains huge scientific value. Here we introduce the definition of the edge of Solar system and the main detection elements, summarizes the current status of the missions for the outer heliosphere, including the scientific targets and the scientific payload for the missions. Some major scientific issues in heliophysics, interstellar space physics and Solar system evolution, have been presented, as well as the prospects for the scientific goals for our future interstellar mission.

Keywords: edge of solar system; heliophere; interstellar space; Solar system evolution

#### **Highlights:**

- By analyzing and sorting out the current international and domestic status of the mission for the edge of solar system.
- We look forward to the first Chinese mission for the edge of solar system in the future, and the related scientific issues.