

傾斜機能材料の概念を用いたラジオアイソトープ熱源の 構造最適化に関する研究

千田哲也*、大橋厚人**、植木紘太郎**、天田重庚***、遠藤 忠****

Structural Optimization of Radioisotope Heat Source Using the Concept of
Functionally Graded Materials

by

Tetsuya Senda, Atsuto Ohashi, Kohtaro Ueki, Shigeyasu Amada
and Tadashi Endo

Abstract

An energy conversion system with radioisotope (RI) heat source is promising for a maintenance-free generator for long-term uses including deep sea missions. Strontium-90, a β -decay radioisotope, is one of the most prospective heat source materials. The β -ray itself can be readily captured within the vicinity of the decaying strontium, while bremsstrahlung, generated by an interaction between the β -ray and the surrounding atomic nuclei, needs to be shielded for the protection of human bodies and electronic devices. Since the converted energy from β -ray to bremsstrahlung depends on the atomic number of the nucleus of interaction, an addition of light-element materials is expected to reduce the energy. In this study, conceptual design is made for minimizing the dose rate of strontium titanate (SrTiO_3) heat source using the concept of Functionally Graded Materials (FGM). Boron nitride (BN) is selected as the addition because it is a light ceramic and has high heat conductivity which may enhance the surface temperature of the heat source.

A cylindrical heat source of SrTiO_3 with BN addition is adopted as a simulation model. A two-layer structure of SrTiO_3 and BN for inner and outer layers, respectively, is employed as the base structure. In order to design the FGM of the minimum radiation dose with a multilayer structure, the behavior of β -ray and bremsstrahlung is estimated by a continuous-energy Monte Carlo code MCNP 4A. The optimized five-layer structure exhibits the dose rate of 78% to the base (two-layer) structure and approximately one-third of the uniformly mixed one. Surface temperature is estimated by a one-dimensional heat conduction equation. The results of the estimation reveal that the surface temperature of the five-layer structure is approximately 350°C higher than that of the base structure. Sintering studies of SrTiO_3 -BN composite ceramics are also made for investigating the possibility of manufacturing the materials.

* 材料加工部
** 原子力技術部
*** 群馬大学
**** 東北大学

原稿受付 平成9年5月6日
審査済 平成9年7月9日

目次

1. 緒言	16
2. 熱源としてのRIと組成傾斜化の意義	16
2.1 RI熱源発電システム	16
2.2 熱源用RI	18
2.3 RI熱源における組成傾斜化の意義	18
2.4 研究手法とモデルの設定	19
3. 熱源表面の放射線線量の推定と 遮蔽設計の最適化	20
3.1 β 線と制動X線の遮蔽計算	20
3.2 Naumann and Waechterの実験解析	21
3.3 中実円筒型モデルによる吸収線量の予備的 検討	22
3.4 組成の多層傾斜化による遮蔽設計の最適化	23
4. 熱源表面温度の推定と複合セラミックスの試作	25
4.1 熱伝導計算による表面温度の推定	25
4.2 複合セラミックスの試作	26
5. 結言	27
6. 研究成果の発表等	27
参考文献	28
付録 海洋分野におけるRI発電システムの 適用可能性	29
1. 海洋動力利用の形態	29
2. 海中で利用できる動力源	31
3. 適用性の評価	32
参考文献	33

1. 緒言

材料内部の組成や微細構造を連続的に変化させる(すなわち傾斜化させる)ことにより優れた機能を発現させるというアイデアが、1986年に日本で生まれ、傾斜機能材料という名前が与えられた。英語名をFunctionally Graded Materials(当初はFunctionally Gradient Materials)といい、頭文字を取ってFGMと略称される。宇宙往還機(スペース・プレーン)の機体のような大きな温度差の想定される使用条件に対して、材料の組成を傾斜化することにより材料内部に発生する熱応力を大幅に緩和できるであろうという発想であった。1987年度から1991年度までの5か年にわたり科学技術振興調整費により「熱応力緩和のための傾斜機能材料開発の基盤技術に関する研究」が進められ、試作された傾斜機能材料が耐熱衝撃特性に優れることが示されるなど、大きな成果をおさめた^{1)~3)}。

傾斜機能材料という概念の本質は、微細構造と機能・強度の関係から材料構造(組成分布等)の最適設計を行い、それに従って内部の組成・構造を制御して材料を作製するというもので、熱応力緩和だけでなく他の機能に対してもこの考え方を適用することにより大き

な効果が期待できる。1992年度に行われたフィージビリティスタディ⁴⁾に基づき、傾斜機能材料パートIIとして、1993年度から5か年計画でエネルギー変換材料に焦点を当てたプロジェクト「傾斜構造形成によるエネルギー変換材料の開発に関する研究」が科学技術振興調整費により進められることになった。

図1-1は、太陽光またはラジオアイソトープ(以下ではRIと略する)をエネルギー源とする発電システムで、随所に傾斜機能材料を適用することにより高効率を達成するという、研究目標の概念を示したものである。熱-電気の変換では、高温部分は熱電子発電、低温部分で熱電発電を行うという複合化により総合エネルギー変換効率の向上を狙う。このようなエネルギー変換システムでは多種の熱源を利用することができ、熱源にRIを用いたシステムでは、全体が静的となるため、メンテナンス不要で長時間無人運転が可能となる。用途としては、宇宙ステーションや人工衛星用の電源、航路標識や海洋観測用の電源、あるいは海中動力源などが想定されるほか、砂漠や大洋上での大規模発電システムへの応用も考えられる。本プロジェクトの第I期(1993年度~95年度)では、材料設計、材料創製、特性評価の各部門に、エネルギー変換材料を用いた素子の形成を担当する部門を加えた体制を組織し、熱電発電と熱電子発電の複合システムをおもなターゲットにして研究が進められた。本研究は、材料設計部門に属し、エネルギー変換システムのRI熱源について、放射線線量の低減と熱源表面温度向上をはかるために熱源内部の組成を傾斜化したときの最適設計法に関して考察したものである。

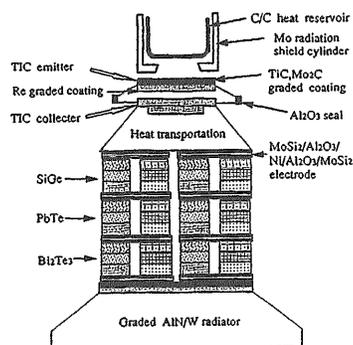


図1-1 高効率エネルギー変換システム

2. 熱源としてのRIと組成傾斜化の意義

2.1 RI熱源発電システム

RIを用いたエネルギー変換システムの熱源としての特徴は、動作が静的で安定性がよく、温度変化、圧力・真空度、加速度などの周囲の環境の影響も受けにくく、半減期の長いRIを用いれば、長期間の作動が

可能であること等である。宇宙用、深海・僻地用の電源として注目されたRI発電システムは、まず米国のSNAP計画 (System for Nuclear Auxiliary Power) で開発された⁵⁾。初期のSNAP-3では²¹⁰Poが、ついで²³⁸Puが用いられ、SNAP-7では⁹⁰Srが熱源として用いられた。1977年に打ち上げられた惑星探査機ボイジャーには、²³⁸Puを熱源とする155Wの発電システムが搭載され、10年以上稼働して木星、土星、海王星などの観測を行った。また、小型のものは心臓のペースメーカーにも利用されている⁶⁾。

RI発電システムにおける熱エネルギーから電気エネルギーへの変換には、熱電発電や熱電子発電が用いられる。物質に温度差を与えると内部に起電力が生じるという現象 (ゼーベック効果という) による変換を熱電変換⁵⁾といい、これを利用する発電を熱電発電という。熱機関と比較すると静的なエネルギー変換である。図2-1に示すように温度差のあるところでゼー

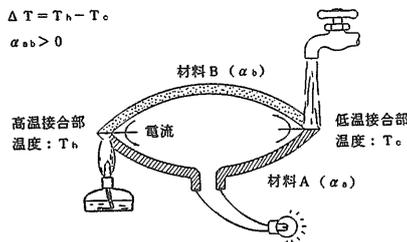


図2-1 熱電発電の原理

ベック係数 α の異なる2つの物質を接続すると、その差 α_{ab} と接点温度の差 ΔT に対応した開放電圧が発生するが、両者のゼーベック係数の差が大きいほど電圧は高くなる。特に、p形とn形の半導体のペアを用いると、ゼーベック係数の正負が逆、すなわち高温部と低温部間の電圧の正負が逆になり開放電圧を大きく取ることができる。材料のゼーベック係数は強い温度依存性を示すため、高温側から低温側へ異なる材料を組み合わせて (カスケード化) 使用される。たとえば、高温側から順に、Si-Ge系、Pb-Te系、Bi₂Te₂系のような組合せである。

現在使用される材料の組合せでは、最高温度は1000

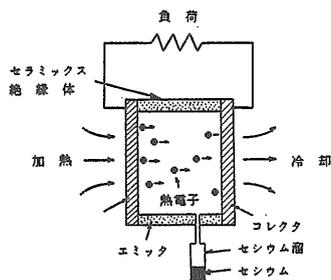
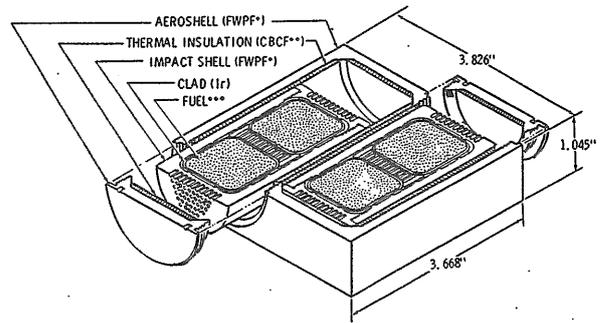


図2-2 熱電子発電の原理

℃程度で変換効率は最大10%を少し上回る程度であるが、傾斜機能材料のプロジェクトでは、熱電発電材料に傾斜構造を適用することでその変換効率を飛躍的に向上させることが目標として掲げられている。もうひとつの静的なエネルギー変換システムである熱電子発電は、図2-2に示すように、高温エミッタからの熱電子放出 (エジソン効果) を利用してコレクタとの間の電子の流れを電流として取り出すシステムで、熱電発電より高温で作動すること、及び小型で大出力が得られることが特徴である。熱電発電と比較すると技術的には成熟していないが、20%以上の効率が期待できる。図1-1のエネルギー変換システムでは、太陽光による熱源の高温化 (2000℃) と熱電子-熱電複合化等により、40%以上の変換効率を得ることを最終目標としている。



*Fine-Weave Pierced Fabric, a 90%-dense 3D carbon-carbon composite
**Carbon-Bonded Carbon Fibers, a 10%-dense high-temperature insulator
***62.5-watt²³⁸Pu₀ pellet

図2-3 GPHSの熱源モジュール (Pu熱源の例)⁷⁾

RI発電システムの例として、図2-3に、1989年10月に打ち上げられたガリレオ衛星 (木星探査機) の電源に使用された熱発電ユニット⁷⁾の構造を示す。Ir合金で被覆された²³⁸PuO₂ペレット (112gのPu、熱出力62.5W) を2個づつグラファイトのシェルに入れた構造で、多目的熱源 (GPHS=General Purpose Heat Source) とよばれる。熱電発電ユニットは、熱源2個をモジュール化してグラファイトのシェルに格納されたもので、周囲にSi-Ge系の熱電素子が配置されている。図2-4に示すガリレオ用のRI熱発電器 (RTG=

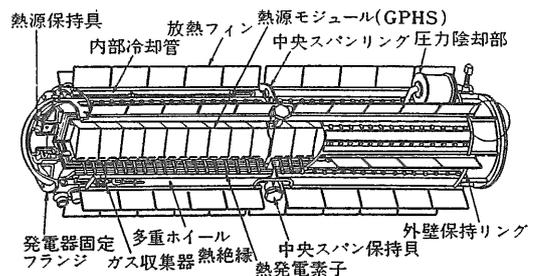


図2-4 ガリレオ衛星に搭載された熱電発電システム (RTG)

Radioisotope Thermoelectric Generator)は、18個の発電ユニットから構成されており、1台のRTGは285Wの発電を行うよう設計されている。ガリレオには2台のRTGが搭載された。

深海底での調査・開発のために必要な数百kW程度までの動力源のひとつとして、RIを熱源とする発電システムが造船研究協会で検討された^{8), 9)}。熱源のRIとしては、⁹⁰Srを想定し、熱電発電方式¹⁰⁾および熱電子発電方式¹¹⁾による発電システムの試設計が行われている。熱電発電方式では“しんかい6500”クラスを、熱電子発電方式では、フランスの“EPAULARD”をベースに7~8kW程度の出力で仕様を検討している。

2.2 熱源用RI

熱源となりうるRIの多くは、核分裂生成物等の原子炉内生成物であり、その半減期から放射性廃棄物としての長期処分が必要となる物質である。このような物質を安全に管理しつつ、かつ、その内蔵するエネルギーを有効利用することができれば、マイナスの遺産をプラスに変換することができる。熱源として使用するRIについては、①出力密度が高いこと、②半減期が長いこと、③崩壊系列中にできるだけ有害なγ線や中性子の放出核種が生じないこと、④抽出が容易であること、⑤安定で高融点の化合物をつくることおよび⑥管理が容易であること等が要求される。図2-5に、主なRIの熱出力と半減期を示す¹²⁾。出力密度と半減期

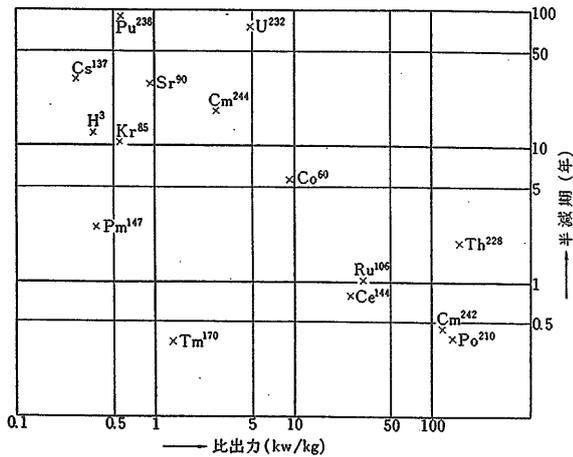


図2-5 主なRIの熱出力と半減期

から熱源として想定できるRIとしては、⁶⁰Co、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²²⁸Th、²³²U、²³⁸Pu、²⁴⁴Cmなどがあるが、⁶⁰Coと²²⁸Thは強いγ線を放出し、²⁴⁴Cmは自発核分裂により中性子を放出するため不適である。また、¹³⁷Csは出力密度が小さく、²³²Uは収率が低く必要量入手することが難しい。したがって、⁹⁰Srと²³⁸Puが熱源として利用する場合の有力RI核種になる⁸⁾。²³⁸Pu

の場合、製造過程で炉内での照射を必要とし、また法令上核燃料物質の範疇に入り取り扱いは非常にきびしい制約があること等のため、⁹⁰Srが当面の現実的な候補と考えられている⁸⁾。

⁹⁰Srは、半減期約28年であるので、海中動力源として利用される場合の耐用年数10年間は、安定した熱源となりうる^{13), 14)}。β線のみを放出し、遮蔽の困難な高エネルギーのγ線や中性子をほとんど放出しないので熱源としては適している。また、軽水炉の使用済燃料1tonから480gの⁹⁰Srが得られ、使用済燃料からゼオライトまたはチタン酸を用いたイオン交換法により回収できる¹⁵⁾。熱源としては、安定な化合物であるSrTiO₃または発熱密度の高いSrF₂の形で使用される。SrF₂と比較するとSrTiO₃は融点が約2040℃と高く、また化学的にも安定であるので高温熱源として使用可能である。これらの物質の諸性質を表2-1にまとめて示す。

表2-1 熱源物質の候補となるRI

物質名	融点	密度	発熱密度		半減期
SrF ₂	1473℃	4.3 g/cm ³	0.64 W/g	2.7 W/cm ³	28 y
SrTiO ₃	2040℃	5.1 g/cm ³	0.44 W/g	2.3 W/cm ³	

2.3 RI熱源における組成傾斜化の意義

図2-6に⁹⁰Srの崩壊図を示す¹⁶⁾。⁹⁰Yを娘核種とし

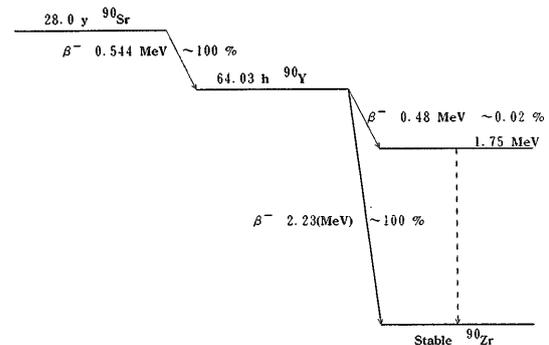


図2-6 ⁹⁰Srの崩壊図(文献16)より引用)

を持ち、⁹⁰Zrが安定核となる。⁹⁰Srと⁹⁰Yは、共にほぼ100%β崩壊を起こし、崩壊図上ほとんどγ線は放出しない核種である。図中に示した数値は文献によって異なり、例えば、文献17)では、⁹⁰Yは、100%β崩壊となっている。このため、今回はβ線のみを考慮し、γ線を放出しないとして扱った。

β線のエネルギーは、媒質との相互作用により二つの形態に消費される。一つは、原子との弾性散乱、原子の励起、電離等の相互作用により媒質の熱エネルギーの増大に消費される形態であり、これがRI発電システムの熱源となる。もう一つは、原子核のクーロン場によりβ線(電子)が制動を受け、光子(X線)として媒質外へ放出されるエネルギーである。この現象を制動放射(Bremsstrahlung)といい、発生する制動

X線により人体などが被ばくする。一方、β線自身の飛程は、⁹⁰Yの最大エネルギーでおよそ1 g/cm²であり¹⁸⁾、密封線源ではβ線の直接被ばくはほとんどない。

制動X線の強度・スペクトルは、クーロン場、つまり媒質の平均原子番号に依存し、運動エネルギーから制動X線へのエネルギーの変換率は平均原子番号の2乗に比例する¹⁹⁾。したがって、媒質の平均原子番号を下げる、つまり、平均原子番号の小さな物質を添加することは、線量低減に大きな効果がある。そこで、原子番号(Z数)の小さい物質である窒化ホウ素(BN)を第2相として複合した燃料体の作製が提案されている^{8), 10)}。造船研究協会の検討では、SrF₂とBNを1:4の体積比で混合し焼結することにより、Srから放出されるβ線をBNに吸収させ、Srの原子核との相互作用を抑制することにより制動放射のエネルギーをSrF₂単体にくらべ1/40に低減できるという推定を行っている。この検討では、SrF₂とBNは均一に混合するものとし、またX線線量の推定は、原子番号の比から求められている。しかし、燃料体内部から発生するX線は燃料体自身により遮蔽される。したがって、軽元素物質は均一に混合する必要はなく、組成の最適分布があり、それは内部はSr-rich、外周部はBN-richという傾斜構造を有すると推測される。

一方、熱源表面温度が高いほどシステムの熱効率は向上する。RI熱源では、崩壊のエネルギーが周囲の物質に吸収されて熱に変換されるものであるが、燃料体内部の最高温度が熱源構成物質の融点以下とすることが上限とされる。したがって、燃料体内部の熱伝導率が高いほど、熱源表面温度を高く設定することができることになる。BNは熱伝導率の高い物質でもあり、燃料体の内部の温度勾配を小さくできる。すなわち、BNの複合化によりに表面温度を高くできる効果が期待できる。

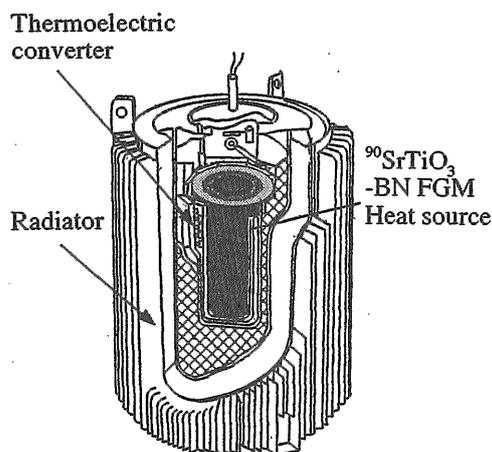


図2-7 RI熱源エネルギー変換システムのイメージ

2.4 研究手法とモデルの設定

本研究では、エネルギー変換システムの熱源として⁹⁰Srを用いる場合、制動X線抑制のために軽元素物質を添加したとき、組成傾斜化により熱源表面の放射線線量の低減と温度の向上を図ることができることを示し、組成の最適分布を推定する手法を見いだすことを目的とした。図2-7にRI熱源エネルギー変換(発電)システムのイメージを示す。熱源物質としてSrTiO₃、第2相物質としてBNを選んだ。それぞれの物質の性質を表2-2に示す。2つの物質の平均原子番号と熱

表2-2 SrTiO₃とBNの物性値

	平均原子番号	熱伝導率(W/mK)	
		25°C	1200°C
SrTiO ₃	25.3	7.41	3.28
BN	6.17	37.4	26.0

伝導率には大きな差がある。それぞれの総量と熱源の形状をあらかじめ与えたときの、内部の組成分布と遮蔽効果の関係を計算し、最適組成分布の推定とその場合の表面温度の推定により内部熱伝導の改善を評価した。ここで傾斜化の方法として、2層構造から中間組成の第3層を与えて層状構造とし、各層境界に新たな中間層を考慮することにより最大5層までの階段状の組成分布を与えた。傾斜化の概念的な定義は組成の連続的な変化であるが、実材料の作製では組成は階段状の分布をとることが多く、ここでは階段状の変化を「傾斜構造」と考えることにした。

遮蔽と熱伝導という複数の機能を評価するためには、これらを総合する評価関数を定義し、関数表現された組成分布のパラメータとの関係を調べて最適組成分布を求めるという手法がある。このために、遮蔽効率・温度効率を定義し、傾斜組成をΓ関数を用いた確率密度関数で表して、評価することも試みた(6. 研究成果の発表等の(11)に発表)。しかし、具体的な設計要件の明確でない現状では、合理的な総合評価関数の定義は難しい。また、熱電素子およびタンゲステン等の外郭構造体の重量を含めた評価が必要であるが、いまのところデータが十分ではないうえ、システム全体の詳細な仕様が必要であるため、現状では現実的ではない。そこで、軽元素物質の添加による制動X線抑制機能を重視し、熱源表面における線量低減を目的とした組成分布の最適化を行った。

まず、β崩壊で放出される電子と制動X線の物質内部での挙動シミュレーションにより放射線線量を評価し、組成傾斜により放射線線量が低減することを示し、放射線遮蔽の意味での最適構造を求めた。次に、熱源内部の温度分布を熱伝導方程式から推定し、放射線遮蔽に効果があると考えられる組成分布についての内部

熱伝導の改善効果を評価した。さらに、 $\text{SrTiO}_3\text{-BN}$ 複合セラミックスの材料を試作してその熱伝導率等の性質を評価した。あわせて、海中動力源等の海洋分野における小型動力源の現状を調査し、RI熱源利用の可能性を検討し、その結果を付録とした

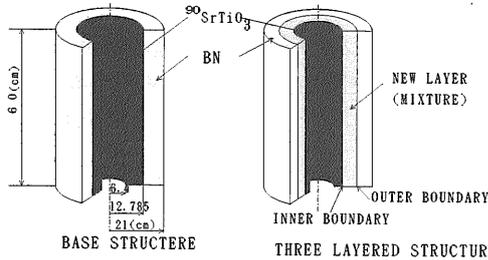


図2-8 シミュレーションに用いた中空円筒型熱源モデルの形状：2層基本構造と中間層形成による傾斜化

シミュレーションの対象としたのは、図2-8に示すような外径42cm（半径21cm）、内径12.8cm、高さ60cmの中空円筒型モデルである。 SrTiO_3 ($\rho = 5.12 \text{ g/cm}^3$) およびBN ($\rho = 2.26 \text{ g/cm}^3$) がそれぞれ50wt%ずつ（31vol%と69vol%）とした。熱源に含まれる ^{90}Sr の放射能は約 $2.9 \times 10^{17} \text{ Bq}$ 、総発熱量は52kWである。熱源の総量・寸法には格別の根拠はないが、総合変換効率を20%としたとき電気出力10kW程度と想定して決めた。組成分布の最適設計にあたっては、内側（半径6.4~12.785cm）が SrTiO_3 、外側（12.785~21cm）がBNの2層モデルを基本構造とし、与えられた組成分布に対して求められた線量と表面温度はこの基本構造の値との比較として評価した。

なお、当初は半径20cmの中実円筒型を採用したが、予備的検討（3.3節）の結果を踏まえ、表面温度向上に有利な中空型円筒に変更した。また、有限の高さの円筒型としているが、上下の端面への放射線・熱は考

慮せず、熱伝導計算においては無限長さの円筒として扱っている。また、熱源、第2相物質ともに理論密度に焼結され、複合化しても化合物は形成しないものとしている。Srは100%が ^{90}Sr であり、放射能・発生熱量は初期値（崩壊なし）を用いている。計算を過度に複雑にしないために、必ずしも現実的でない仮定も含め、これらの前提条件を採用した。したがって、計算結果の線量・温度は絶対値としてではなく、相対比較として用いることができる。

3. 熱源表面の放射線線量の推定と遮蔽設計の最適化

3.1 β 線と制動X線の遮蔽計算

β 線として放出される電子は、同時に放出されるニュートリノと崩壊エネルギーを分けあい、図3-1¹⁶⁾に示すような連続スペクトルをとる。この研究の当初には、文献19)に示されている統計的なスペクトルとフェルミ関数より計算させ、3.3節で述べる中実円筒型モデルの計算に用いた。このフェルミ関数中の Γ 関数は、

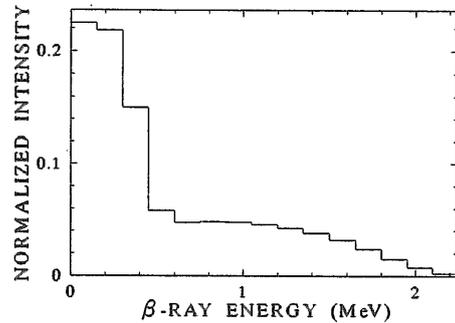


図3-1 計算用ベータ線スペクトル

文献20)を用いて数値計算し、得られたスペクトルを図3-2に示す。横軸は β 線のエネルギー、縦軸は核種毎の全発生数で規格化した各エネルギーの発生頻度

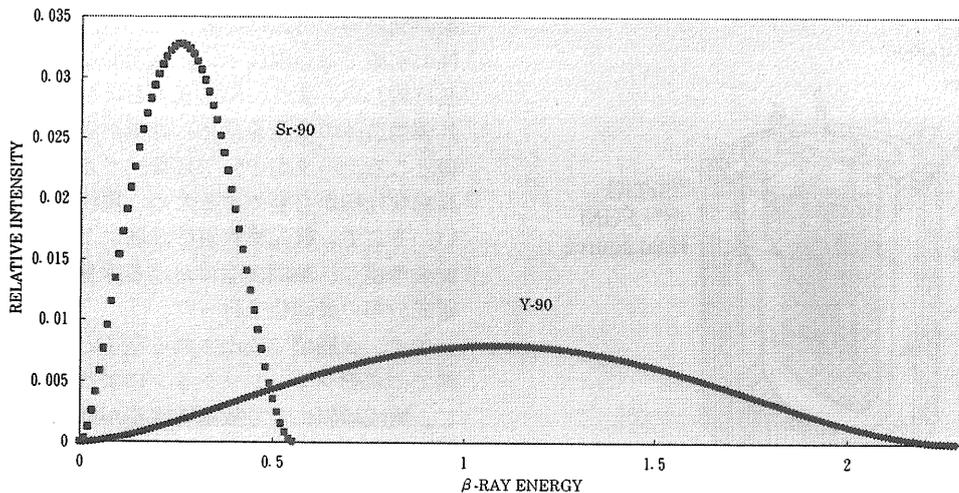


図3-2 理論計算による β 線スペクトル（中実円筒型モデルの計算で使用）

を示している。中空円筒型モデルの計算においては、 ^{90}Sr と ^{90}Y の合計を0.06MeV毎のEnergy bin (36群)に分け、そのEnergy bin内では均一な発生確率を持つステップ関数としてを入力した。

文献16)の入手によりスペクトルが得られたので、中空円筒型モデルの計算では、図3-1に示すとおり、 ^{90}Sr と ^{90}Y の合成スペクトルを0.15MeVごとのEnergy bin (15群)に分け、そのEnergy bin内では均一な発生確率を持つステップ関数としてを入力した。ここで示すスペクトルは2核種の合成スペクトルであり、計算結果は1崩壊当りの結果が出力される。この計算値を、規制値、測定値などと比較する場合は、 ^{90}Sr の放射能を2倍した値を計算結果にかけなければならない。

以下の制動X線の遮蔽計算は、米国ロスアラモス国立研究所で開発された連続エネルギーモンテカルロ計算コード MCNP 4 A²⁰⁾で行った。Version 4より、中性子、光子の輸送計算に加えて、電子の輸送計算のためのITSコード (Version 1.0)²²⁾が組み込まれ、適用できる計算範囲が一段と広がった。今回の計算では、各計算形状を入力データに組み込み、線源領域から電子を発生させ、検出点で MCNP 4A 標準の検出器を用いた。計算は、Hewlett Packard社製のワークステーション9000/755で行った。

今回取り上げた SrTiO_3 、BNに関して、どの程度制動X線の発生に差があるかを比較するため、 ^{90}Y の最大 β 線エネルギーの飛程を半径とする球体の中心に線源を置き、1cmの球表面でのフルエンスを計算した。分散低減のため、Cell importance (計算形状の部位ごとに付ける重み)、線源バイアス及びより高エネルギーの制動X線を発生させるMCNPのBBREMカードを用いた。計算時間はそれぞれ10時間かかり、計算結果を図3-3に示した。横軸が制動X線のエネルギー、縦軸が1崩壊当りのフルエンスを示している。縦軸はログスケールであり、両物質の間には大きな違いがある。

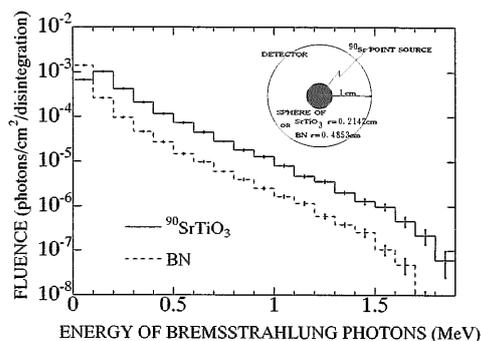


図3-3 ^{90}Y の最大 β 線エネルギーの飛程を半径とする球からの制動X線スペクトル

(電子の飛程は、文献10)の中で示されているフェザーの式より計算し、BN: 0.4853cm、 SrTiO_3 : 0.2142cmとなった)

3.2 Naumann and Waechterの実験解析

MCNP 4 Aコード及び引用した β 線スペクトル等が、どの程度信頼性をもつか確認するために、 ^{90}Sr の制動X線を用いたNaumann and Waechterの実験²⁰⁾の解析を行った。実験のダイアグラムを図3-4に示す。

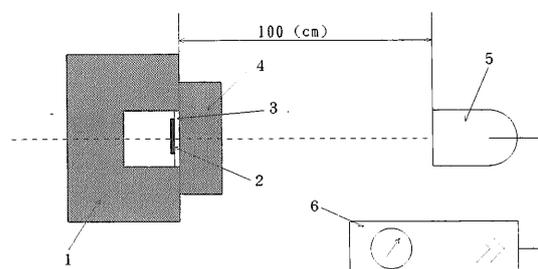


図3-4 Naumann and Waechterの実験のダイアグラム
1. 5cm×5cmの空洞のある15cm厚の鉛のブロック、2. 直径2.2cmの ^{90}Sr - ^{90}Y 線源、3. 0.3cm厚アルミニウム板、4. 鉛板、5. 電離箱、6. 振動容量型電位計

この実験では、線源から発生した制動X線の鉛板中での減衰カーブを測定しており、その結果が規格化され、減衰ファクターとして示されている。

まず、電子輸送を含む計算は非常に時間がかかるため、電子のCutoff energy (電子の輸送計算において減速により計算を打ち切る電子エネルギーの値)の設定値 (0.001MeV)を計算結果に影響を与えない範囲で引き上げることとした。図3-4のアルミニウムプレート表面に、Surface crossing estimator (ある面を横切る粒子数を測定する検出器)を設定して、フルエンス、吸収線量のCutoff energyに対する変化を調べた。その結果から、この計算では0.09MeVを電子のCutoff energyとして採用した。分散低減法として、同じく線源バイアス、電子にはCell importance、光子にはWeight window (追跡する粒子の重みのある範囲に収める)、BBREMカード、鉛板中でExponential transform (検出器方向への光子の飛程を伸ばす)を用いた。実験では、鉛板の厚さを変化させており、線源および線源の3方を囲む鉛ブロックは不変で

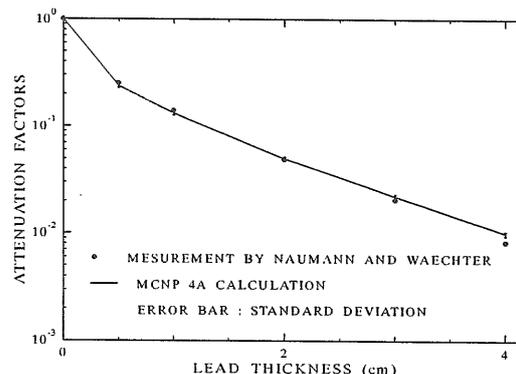


図3-5 Naumann and Waechterの実験解析結果

あるので、MCNPのSSR、SSWカードを用いて計算を2分割した。

計算結果を図3-5に示す。図に示した計算値は、電離箱に付与されたエネルギーを示している。両者は、鉛板4cmを除いて、非常に良く一致した。したがって、今回の計算系に関して、十分信頼性があることが確認できた。なお、この図の結果を得るための計算時間は33時間であった。

3.3 中実円筒型モデルによる吸収線量の予備的検討

組成傾斜化の放射線線量への影響を評価する予備的な検討を、当初採用した中実円筒型モデルで行ったので、その結果をまず述べる。図3-6に、中実円筒型モデル形状を2層基本構造と3層構造について示す。

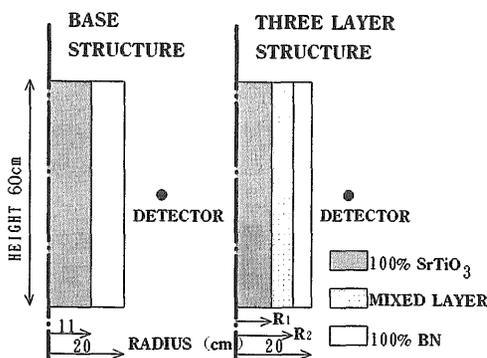


図3-6 中実円筒型モデルの基本構造と3層構造

基本構造（2層）は円柱形の熱源で、高さ60cm、半径0～11cmがSrTiO₃、半径11～20cmがBNであり、SrTiO₃とBNは同重量とした。この基本構造の⁹⁰SrTiO₃とBNの間に混合層を設け3層構造とする場合、混合層ではBNが付加され平均原子番号が小さくなり、この混合層に使われた⁹⁰SrTiO₃層からの制動X線の発生量を減らすことができる。一方、混合層が厚すぎると、

線源が外側に移ることにより逆に放射線線量をあげる原因となる。これらの要因から、適切な混合層を与えることで線量を最小とする「最適厚」が存在する可能性がある。そこで、3層構造ではどのような放射線線量低減効果が得られるか、モンテカルロ計算コードによる解析を行った。なお、この混合層の密度は、⁹⁰SrTiO₃とBNの総量を保存し、両者の間に化学反応はなく混合層の充填率を100%と仮定すると、混合層の占める半径を決めれば一義的に決定できる。

熱源部の形状をそのまま計算形状に組み込み、高さ方向の midpoint で、半径30cmの位置にRing detector（ある時点で散乱した粒子がある円周上を通過する確率を計算する検出器）を設定し、放射線線量を計算させた（図3-6参照）。分散低減法にはCell importanceを用い、1ケース当たり5時間計算させた。また、レスポンス関数は文献(24)より引用し、線量当量に換算した。図3-7に示すように、BNを混合しない場合（半径11cmの円筒）の線量は、基本構造の線量を1としたときに2.9であり、均一に混合した場合は2.1であった。ほぼBNによる単純な制動X線遮蔽効果のみである基本構造で無添加と比較して線量は約1/3になる。以下で

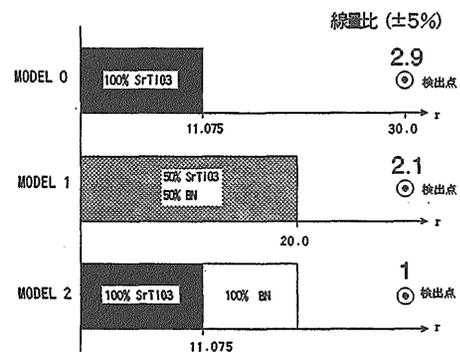


図3-7 中実円筒型モデルの線量計算結果

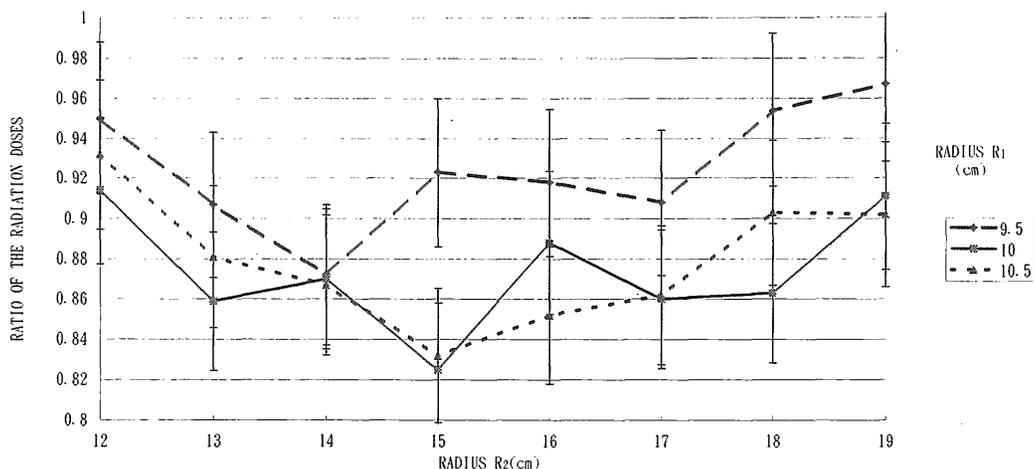


図3-8 中間層境界の最適化（R₁、R₂は中間層の内側と外側の境界、図3-6参照）

傾斜化による制動X線の発生を抑制する効果を調べた。

2層の境界に混合層を設けることにより3層化(これを「第1次傾斜化」と考える)構造について検討した。混合層の厚さをいろいろかえて計算させ、結果を基本構造の線量を1として規格化して比較した。その結果を図3-8に示す。縦軸は基本構造に対する線量の比を示し、横軸は混合層の外径(図3-6の R_2)を示している。混合層の内径(図3-6の R_1)を9.5cmから10.5cmの範囲について計算した結果を3本のグラフで示している。グラフ中の誤差はモンテカルロ計算結果の標準偏差を示しており、およそ±4%の誤差を含んでいる。混合層の外径 R_2 に関して、15cm付近で線量比が最小値を取り、グラフの両端で大きくなる傾向がある。内径 R_1 に関しては、9.5cmの計算結果は明かに他の2つより大きく、10、10.5cmについては、平均すると10cmの方が小さくなった。このうち、混合層を10cmから15cmの範囲とした時に線量が最も低くなり、基本構造の83%の線量となった。これは、2層から3層へ「傾斜化」したことによる効果である。なお、基本構造での1Ci (3.7×10^{10} Bq) の ^{90}Sr 当たりの線量は $0.057 \pm 0.002 \text{ mSv/h/Ci}$ であった。

この傾斜化の効果を、表面での線量を一定としたときの熱源重量で評価するために、内部に混合層をつかった場合、基本構造と同一の線量とするために外側のBN層をどの程度削ることができるかを調べた。計算方法は、10cmから15cmを混合層とした3層構造の表面のBNの厚さを減らして数例計算し、基本構造と同線量となる厚さを内挿により求めた。その結果、10~15cmに均一層をつかった場合、外側のBN層をおよそ1.4cm削ることができ、これはおよそ熱源部全体の10%の重量低減となった。

3.4 組成の多層傾斜化による遮蔽設計の最適化

前項により、BN添加の効果、及び中間層を設けることによる「傾斜化」の効果を確認した。しかし、同時に進めた温度計算から、中実円筒型では半径方向の厚さが大きくて内部の温度低下による表面温度低下が著しいため、中心部と外面との温度差を小さくできないことがわかった。そこで、表面温度を高くすることができる中空円筒型モデル(図2-8)を新たに採用した。高さ60cm、半径0~6.4cmは中空、6.4~12.785cmが $^{90}\text{SrTiO}_3$ 、12.785~21cmがBN、それぞれの重量は中実円筒型モデルと同じである。中実円筒型モデルで検討したように、12.785cmの境界をはさんで混合層を新たに設けると、混合層ではBNの添加により制動X線の発生量を減らすことができ、熱源表面線量を最小とする最適混合層厚が存在する。この最適な混合層の厚さを決めるため、中実円筒モデルの場合と同様に0.5cmごと層厚を変化させて線量低減効果を調べた。

熱源部の形状をそのまま計算の入力データに組み込み、このモデルでは表面でSurface crossing estimatorを設定して、熱源部表面の平均吸収線量で評価した。 β 線スペクトルは図3-1を用い、吸収線量の計算のためレスポンス関数を、ICRP Publ.21⁽²⁰⁾より引用した。分散低減法として、電子にはCell importance、光子にはWeight windowを、また、線源バイアス、BBREMカードを用いた。

電子輸送を含めた計算では時間が非常にかかるため、時間短縮のため、電子のCutoff energyと計算結果、計算効率(Figure of merit)の関係を基本構造に関して調べた(図3-9、3-10参照)。なおここで用いている計算効率は、下記の式で表わすことができる。

$$\text{(FIGURE OF MERIT)} = 1/\text{FSD}^2/T \quad (3-1)$$

(FSD: 相対標準偏差、T: 計算時間(min.))

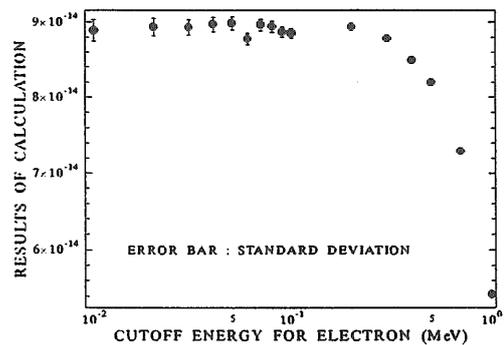


図3-9 電子のCutoff Energyと計算結果との関係

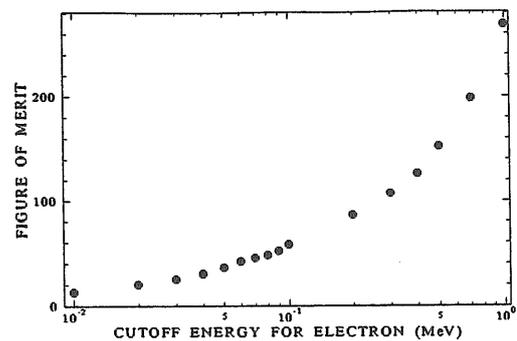


図3-10 電子のCutoff Energyと計算効率との関係

図3-9からわかる通り、Cutoff energyは、まだ光子を発生させることができる電子を除いてしまうため、計算結果を小さくしてしまう。一方、図3-10より、電子のCutoff energyをあげると計算効率がよくなる。結果に影響を及ぼさず、かつ、時間の節約ができるCutoff energy設定値として0.2MeVを採用すると、中実モデルの計算時よりも計算効率を向上させることができた。

最適混合層厚を見つけだすためには、層厚を順次変

化させるシリーズ計算が必要である。シリーズ計算の中でそれぞれの差を明確にするには、上記の設定でも膨大な時間がかかるため、まずCutoff energy を上げる一種の簡易計算を行った。この計算では、計算結果を絶対値でなくシリーズ計算の中での傾向としてとらえることで、混合層の効果のみを観察することにする。この簡易計算では、およそ1時間計算させた。つぎに簡易計算のシリーズで最小値+1 S.D. (標準偏差) 内の結果を示した層について、電子のCutoff Energyを0.2MeVに設定した詳細計算 (計算時間は約5時間) を実施し、この計算結果の中の最小値を最適混合層厚での線量として採用した。

簡易計算の結果を図3-11に示す。横軸は混合層の

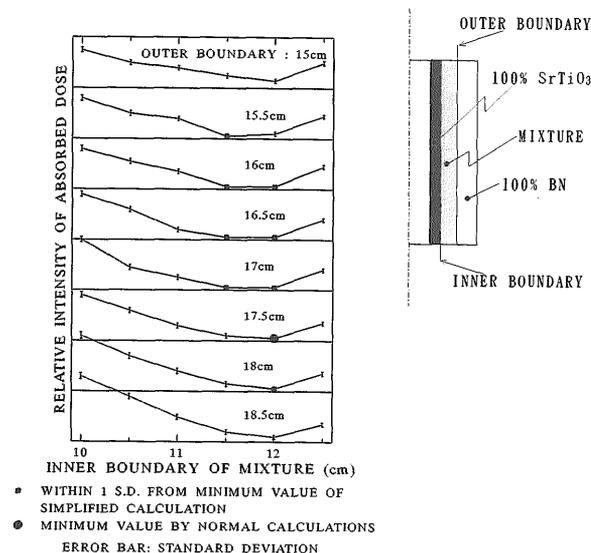


図3-11 簡易計算によるシリーズ計算結果

内径、各実線は混合層の外径に対応した計算結果を示している。比較のために、8つのグラフを縦軸を同一にして、平行に示した。図中の誤差棒はおよそ0.5%で、モンテカルロ計算に付随する標準偏差 (S.D.) である。各グラフは、両端で線量が増大する傾向をいづれも示し、11.5~12.0cmに各グラフで最小値が観察された。外径についても16~17cmを中心として、そこから離れると線量が増大する傾向を示した。

簡易計算のシリーズの最小値+1 S.D.内の結果を示した混合層を同じ図中に■で示す。これらについてCutoff energyを0.2MeVに設定した詳細計算を行った。結果はおよそ0.9%の相対標準偏差を含むが、同じ図中の● (混合層: 12.0~17.5cm) が最小値となり、基本構造の83±1%の吸収線量であった。今回の計算では0.5cm毎に層厚を変化させたが、さらに小さな厚さに区切って計算すると線量をさらに下げることができ可能性があるが、その効果は計算誤差と比較して大きくないと思われる。その差を明確にするためには、さらに相対標準偏差を小さくする必要があり、それは

(166)

計算の前提としているいくつかの仮定 (焼結密度を100%と考えること、及び100%放射性同位体とすること等) の不確かさを考慮すると有意義ではない。

つぎに、「第1次傾斜化」の3層構造から4層、5層と傾斜化を進めたときの効果を評価するために、混合層の内外径に同じ手法で新たな層を作る場合の線量の計算を行った。その結果、第4層は、17.5cmの境界に新たな混合層を加えるより、12.0cmの境界に混合層を加える方が低減効果が大きいことがわかった。上と同じ手法で第4層を決定し、その結果を表3-1に示す。4層構造での最小値は基本構造の81%の線量とな

表3-1 中空モデルでの線量計算結果を最小にした3、4、5層構造と線量比

Structure	Boundary radius(cm)	Weight % of $^{90}\text{SrTiO}_3$	Weight % of BN	Density (g/cm ³)	Dose ratio	Standard deviation
Homogeneous	6.4 ~ 21.0	50.	50.	3.14	2.38	±0.03
Base	6.4 ~ 12.785	100.	0.	5.12		
	12.785 ~ 21.0	0.	100.	2.26	1.00	±0.008
3 layers	6.4 ~ 12.0	100.	0.	5.12		
	12.0 ~ 17.5	23.6	76.4	2.60		
	17.5 ~ 21.0	0.	100.	2.26	0.83	±0.01
4 layers	6.4 ~ 11.5	100.	0.	5.12		
	11.5 ~ 14.5	43.4	56.6	2.98		
	14.5 ~ 17.5	23.6	76.4	2.60		
	17.5 ~ 21.0	0.	100.	2.26	0.81	±0.01
5 layers	6.4 ~ 9.5	100.	0.	5.12		
	9.5 ~ 12.0	92.1	7.9	4.65		
	12.0 ~ 14.5	43.4	56.6	2.98		
	14.5 ~ 17.5	23.6	76.4	2.60		
	17.5 ~ 21.0	0.	100.	2.26	0.78	±0.01

り、傾斜化を進めることの効果が示された。5層構造では、この4層の3つの境界、11.5, 14.5, 17.5cmに混合層をつくりそれぞれの最小値を求め、そのなかの最も低い線量を与える構造を5層の最適構造とした。その結果、5層では、4層の時と同様に最も内側に境界層を設定したときが最小となり78%の線量となった。今回計算した多層化では、内側の境界に混合層をつくる方が線量低減効果が大きくなった (表3-1)。制動放射によるβ線のエネルギー損失が平均原子番号の2乗に比例するため、今回の傾向は、平均原子番号の2乗の差が一番大きな境界層に、新たに混合層を加えると低減効果が大きいことを示唆している。2層から5層への最適化の流れを図3-12に示す。

表3-1には、均一構造の計算結果も合わせて示した。ラジオアイソトープ電池の概念設計を行なった伊東ら¹⁰⁾は、 $^{90}\text{SrF}_2$ とBNを均一に混ぜた構造を採用している。今回の結果から、組成傾斜化を適用することにより、一様組成分布構造の場合よりも線量を低減することが可能であることが示された。

図3-13は、表3-1に示した5層構造の外側にタングステン遮蔽をつけた場合の吸収線量の減衰効果を示す。実際のシステムでは、熱電素子自身もX線遮蔽効果を有するが、ここではタングステンのみで規定の線量に減衰させると仮定している。規準として水平の破線で示すSP-100無人プロジェクト²⁰⁾の半導体に対する

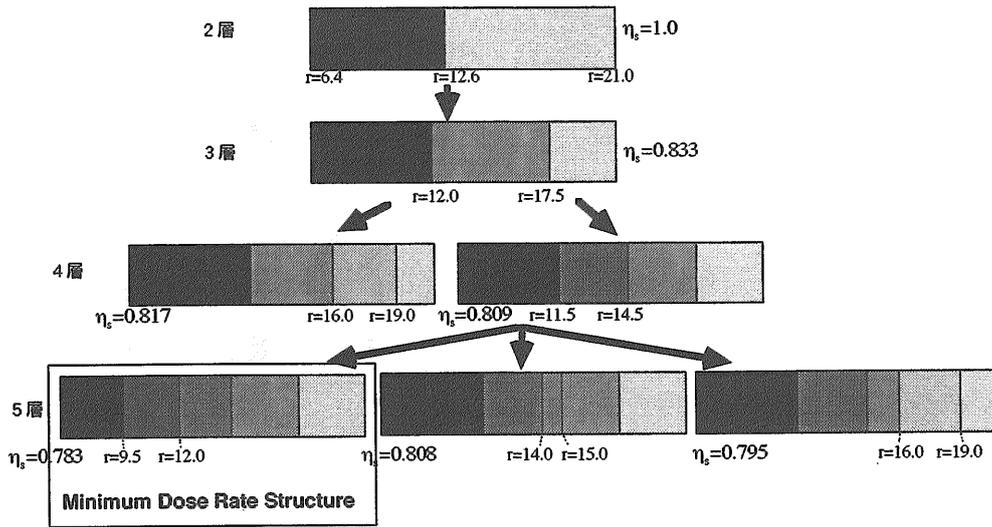


図3-12 5層までの計算結果 (最適化の流れ)

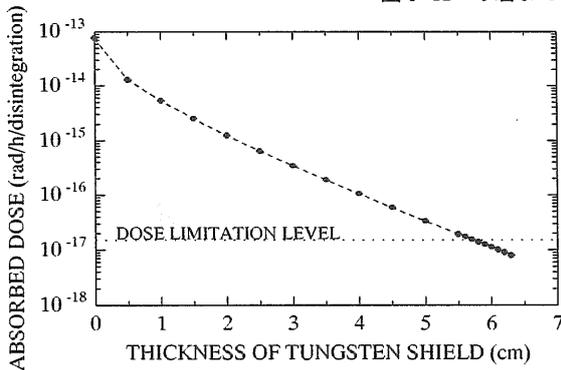


図3-13 タングステン遮蔽による吸収線量の減衰 (遮蔽厚 0 cm は、表3-1の5層構造の表面に相当)

線量限度を採用すると、タングステン遮蔽殻は厚さ約5.7cm必要であることがわかった。

4. 熱源表面温度の推定と複合セラミックスの試作

4.1 熱伝導計算による表面温度の推定

円筒型の熱源の上下の端面が断熱されている (あるいは無限長さの円筒) と仮定すると、熱流は半径 r 方向の1次元のみの熱伝導方程式となり、内部発熱を含めると、

$$\frac{1}{\lambda} \cdot \frac{d\lambda}{dr} \cdot \frac{dT}{dr} + \frac{1}{r} \cdot \frac{dT}{dr} + \frac{d^2T}{dr^2} + \frac{g(r)}{\lambda} = 0 \quad (4.1)$$

と書ける。ここで、 T は温度、 λ は温度依存性を考慮した熱伝導率、 $g(r)$ は半径 r における発熱密度である。高温化の限度として、内表面 ($r=r_1$) で融点を超えないという条件を与えると、境界条件は、

$$\frac{dT}{dr} = 0, T=T_m \text{ at } r=r_1 \quad (4.2)$$

となる。ここで、 T_m は熱源物質の融点である。この微分方程式を有限差分式で近似し、緩和法 (relaxation method) により温度分布を求めた。Sr自身が発熱すると考えた分布熱源を想定し、発熱密度の値としては表2-1に示す発熱量を用いた。遮蔽計算で得られた組成分布に対して、外表面 ($r_2=21\text{cm}$) の温度を任意に与えて温度分布を計算して内表面 ($r_1=6.4\text{cm}$) 温度を求めた。求めた値が SrTiO_3 の融点 (2040°C) となる場合の外表面 ($r=21\text{cm}$) の温度を、その組成に対応する「表面温度」と定義した。

熱伝導計算にあたって、熱伝導率の温度依存性を考慮した。熱伝導率を求めるために、 SrTiO_3 と BN の焼結体の熱伝導率 λ を室温、 600°C 、 900°C および 1200°C でレーザーフラッシュ法により計測した。試料は市販の焼結体で、焼結密度はそれぞれ $4.89\text{g}/\text{cm}^3$ 、 $1.94\text{g}/\text{cm}^3$ であった。図4-1に示すように、室温から 2040°C の範囲で指数関数で近似して、式(4.1)の計算に用いた。混合組成の場合については、BNをマトリックスとす

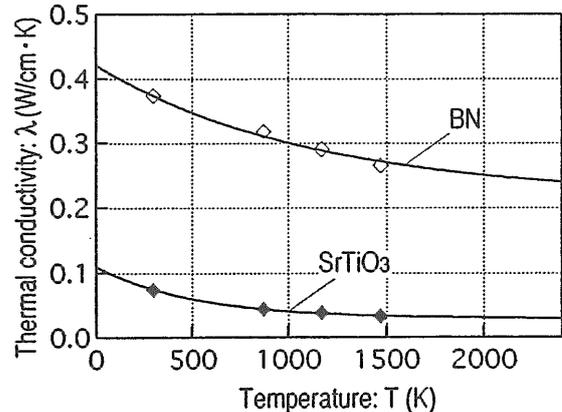


図4-1 熱伝導率の温度依存性

る粒子混合モデル²⁰⁾による混合則を適用して熱伝導率を与えた。すなわち、

$$\lambda = \frac{\lambda_m(1+2\nu P_a)}{1-\nu_p A} \quad (4.3)$$

ここで、

$$A = \frac{1-\lambda_m/\lambda_p}{2\lambda_m/\lambda_p+1} \quad (4.4)$$

λ は熱伝導率、 ν は体積含有率、添字pとmはそれぞれ粒子(SrTiO₃)とマトリックス(BN)を表す。

計算結果を図4-2に示す。2層構造の層界面の温

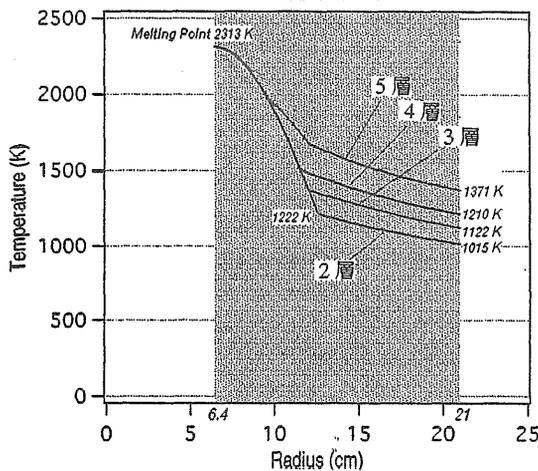


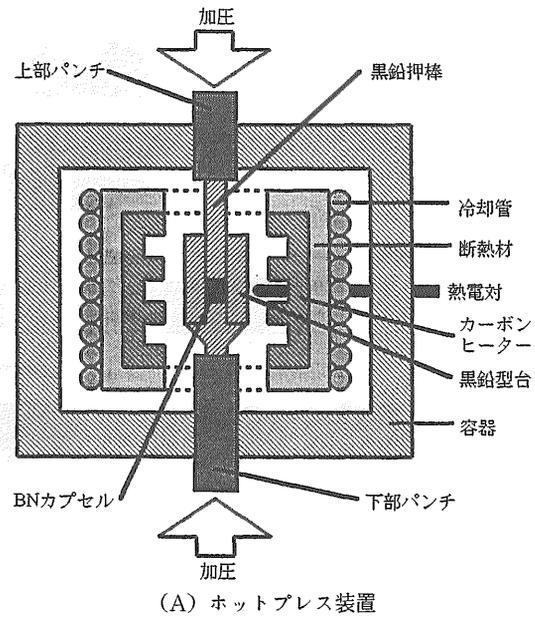
図4-2 遮蔽計算モデルの温度分布の計算結果

度(1222K)は、BNを混合しないSrTiO₃単味の場合の表面温度に相当する。2層では、外側のBN層内の温度低下により1015Kまで低下するが、層数を増やしたがい表面温度は向上し、5層では1371Kとなった。おもに、熱伝導率の高いBNが内部に分布することで熱伝導率を向上させるためである。5層の最適構造では、表面温度は2層に比較して約350K向上し、BNを複合しない場合と比較しても150Kの向上がみられ、組成傾斜化の効果が確認できた。

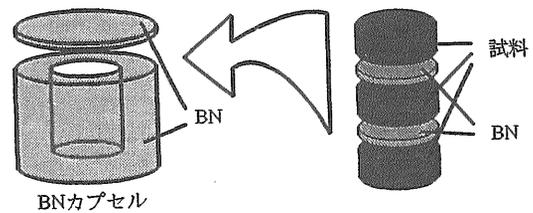
4.2 複合セラミックスの試作

熱源物質と第2相物質はともにセラミックスであり、熱源体の製作は焼結法による。焼結条件は、それぞれの物質により異なるのが普通であり、複合セラミックスの焼結の可能性を調べておく必要があると思われる。そこで、SrTiO₃-BN複合セラミックスの焼結の可能性を調べるために、ホットプレス法による試作を行った。

SrTiO₃とBNの粉末をモル比で8:2、5:5および2:8の割合に混合した成形体及びBN100%の成形体を、直径10mmの円板形状のBN製カプセルに入れて電気炉中で800℃~1200℃の各温度で加圧力25MPaでホットプレスした。装置と試料カプセルを図4-3に示す。



(A) ホットプレス装置



(B) 試料カプセル

図4-3 複合セラミックス焼結に用いた装置

得られた試料の密度を測定し、X線回折による相同定を行った。また、レーザーフラッシュ法により熱伝導率を測定した。

図4-4に焼結密度の測定結果を、混合体の理論密度を基準とする相対密度で表す。各組成ともに1200℃、5hの焼成で十分ち密化する。相対密度が100%を超えているのは化学反応が起きているためである。X線回折の結果からは、本来のSrTiO₃、BNのほかに、B₂O₃、SrTiO_{3-x}、SrB₂O₄、TiO₂等の存在の可能性が示唆された。特に、1000℃以上の焼結ではBNは残らないことが確認された。900℃と1200℃でホットプレス焼成した試料の熱伝導率を室温から1000℃の範囲でレーザーフラッシュ法を用いて測定した結果を図4-5に示す。SrTiO₃とBNの値から混合則を適用して推定した値と比較すると熱伝導率はやや低いものの、BNの混合比率が高いほど熱伝導率が高くなっている。

以上の結果からは、BNの割合が高い領域で焼結密度を向上させることは容易ではないものの、複合セラミックスの焼結による作製は可能であることが確認できる。化学反応が起きて第3相が生成することは、軽元素であるBとSrの間に原子レベルでのミクロな混合が行われることになるため、制動X線の抑制の観点か

らは望ましいことである。

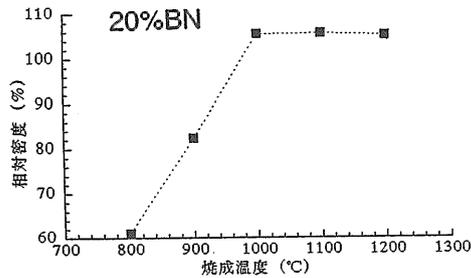
5. 結言

熱電変換システムの ${}^{90}\text{SrTiO}_3$ 熱源について、熱源物質への軽元素セラミックス(BN)の複合化とその組成分布について、内部に SrTiO_3 -rich、外部にBN-richの傾斜構造を与えたときの効果の検討を行った。まず、MCNP 4Aコードを用いて ${}^{90}\text{Sr}$ ラジオアイソトープ熱源の線量計算を行った。はじめに、Naumann and Waechterの実験の解析を行い、計算コード、入力データなどの信頼性を確認した。中実円筒型モデルでBN添加と組成傾斜の効果を検討した後、表面温度向上に有利な中空円筒型モデルに変更して5層構造まで計算した。層数を増すと最小線量は低下し、5層の最適分布では基本構造の線量の78%(BNを複合しない場合と比較すると27%程度)となった。熱源内部の発熱を考慮した熱伝導計算プログラムによる計算で、5層構造で2層基本構造に比較して約350°C向上するという結果が得られた。また、 SrTiO_3 -BN複合セラミックスの焼結が可能であることを確認した。試作したセラミックスの密度・物性値を用いてシミュレーションの精度の向上も可能である。RI物質の精製や取り扱い等の基本的な技術を含む開発課題は多く残されているが、RI熱源自体の組成傾斜化(FGM化)の意義は示されたと考えられる。

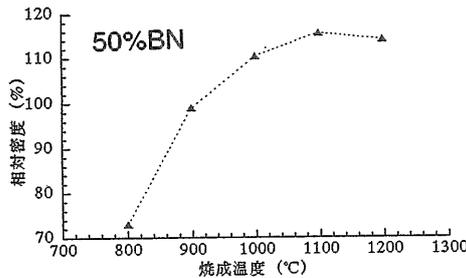
最後に、熱電素子によるエネルギー変換システムとしての簡単な検討結果を付け加える。ガリレオ衛星搭載の熱電発電システムの熱電変換部は変換効率9.4%、35kg/kWとされる⁷⁾。ここで検討した熱源は熱出力52kW、重量236kgである。高効率素子の開発を前提に変換効率を15%程度に見込むと、熱源自体と熱電変換部を合わせて65kg/kW程度と予想される。数kW程度の小型海中動力源として有望なシステムである酸化銀・亜鉛電池(9h運用として)では90kg/kW、燃料電池(SPEFC、燃料・酸化剤系を除く)では25kg/kW程度と考えられる^{28, 29)}。比重量としては必ずしも優れているとはいえないが、熱電子発電³⁰⁾等の比出力(対重量、対容積)の高いデバイスの応用による重量軽減は可能であり、燃料不要でメンテナンスフリーで信頼性の高いシステムとして、検討に値するものと思われる。

6. 研究成果の発表等

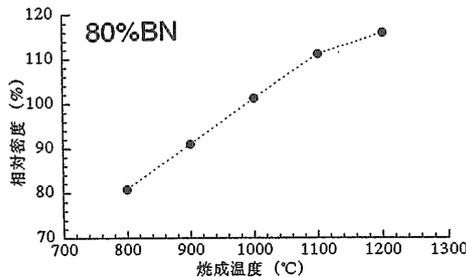
- (1)千田哲也：傾斜機能材料の新展開—エネルギー変換材料への応用—、日本船用機関学会誌、28 [9] 614-620 (1993)。
- (2)大橋厚人、植木紘太郎、千田哲也： ${}^{90}\text{Sr}$ RI電池の3層遮蔽構造について、第7回傾斜機能材料論文集、143-146 (1995)。
- (3)天田重庚、寺内淳一郎、渡辺 亨、千田哲也：傾斜



(A) 80% SrTiO_3 -20%BN



(B) 50% SrTiO_3 -50%BN



(C) 20% SrTiO_3 -80%BN

図4-4 焼結密度

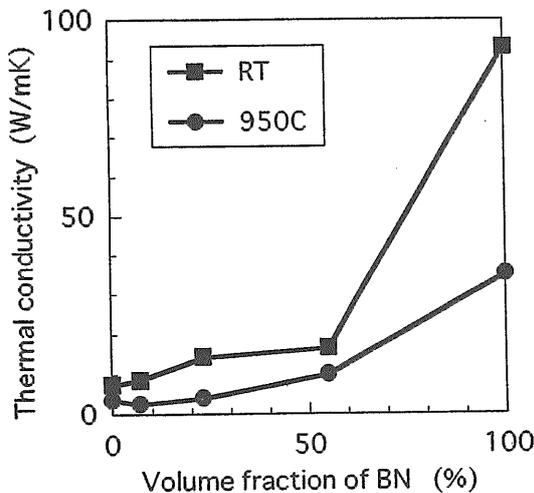


図4-5 熱伝導率とBN添加量の関係 (室温と950°Cでの測定結果)

- 構造をした熱電変換用RI円筒体の温度分布、第7回傾斜機能材料論文集、241-246 (1995).
- (4)天田重庚、寺内淳一郎、千田哲也、金井康二：熱電変換用RI円筒熱源の複合傾斜構造の設計、第8回傾斜機能材料論文集、77-82 (1996).
- (5)大橋厚人、植木紘太郎、千田哲也：RI電池熱源部の傾斜構造化による線量低減化、第67回船舶技術研究所研究発表会、35-38 (1996年).
- (6)大橋厚人、植木紘太郎、千田哲也、天田重庚、遠藤忠：RI (ラジオアイソトープ) 熱源を利用した小型発電システムの検討、第56回日本船用機関学会学術講演会、18-23 (1996年)
- (7)A. Ohashi, K. Ueki and T. Senda : Calculation Using MCNP Code for Bremsstrahlung Photons Emitted from Radioisotope Battery, Proceedings of the 6th EGS4 Users' Meeting in Japan, KEK, Tsukuba, Japan, pp. 17-23 (1996).
- (8)A. Ohashi, K. Ueki and T. Senda: Radiation Dose Reduction by Graded Structures in the Heat Source of a ^{90}Sr Radioisotope Battery, Proceedings of the International Symposium on Functionally Graded Materials, AIST Tsukuba Research Center, Tsukuba, Japan, (印刷中).
- (9)S. Amada, J. Terauchi and T. Senda: Design of Composite Functionally Grade Structure of Cylindrical RI Heat Source for Energy Conversion System, Proceedings of the International Symposium on Functionally Graded Materials, AIST Tsukuba Research Center, Tsukuba, Japan, (印刷中).
- (10)A. Ohashi and K. Ueki: Improvement of a ^{90}Sr Radioisotope Battery, Proc. 7th International Symposium on Radiation Physics (1997).
- (11)天田重庚、寺内淳一郎、千田哲也、金井康二：熱電変換用RI円筒熱源の複合傾斜構造の設計、日本機械学会論文集B編、63 [612] 2848-2853 (1997).
- (12)千田哲也、大橋厚人、植木紘太郎、天田重庚、遠藤忠：傾斜化による耐高エネルギー粒子構造の最適設計に関する研究、科学技術振興調整費「傾斜構造形成によるエネルギー変換材料の開発に関する研究」(第I期 平成5年度～平成7年度) 成果報告書、科学技術庁研究開発局、pp.115-130 (1997).
- 成果報告書、(1993).
- 3) 未踏科学技術協会・傾斜機能材料研究会編：傾斜機能材料、工業調査会、1993.
- 4) 科学技術庁研究開発局：傾斜構造形成による機能変換材料の開発に関する調査報告書、(1993).
- 5) 上村欣一、西田勲夫：熱電半導体とその応用、日刊工業新聞社、126 (1988).
- 6) A.A. Pustovalov, et al.: Radioisotope Thermoelectric Generators for Implanted Pacemakers, Soviet Atomic Energy, Vol. 60, No. 2, 155 (1986).
- 7) A. Schock, Modular Isotopic Thermoelectric Generator, Proc. 16th Intersoc. Energy Conv. Eng. Conf., 327-342 (1981).
- 8) 日本造船研究協会第212研究部会報告書 (1991).
- 9) 三浦 敏：海中動力源についてー深海開発の武器の一つとしてー、造船研究、23巻、3号、3 (1992).
- 10) 伊東尚武、藤原誠、渡部正治、豊田真彦、神島吉郎：ラジオアイソトープ熱電発電システムの開発、三菱重工技報、29巻、6号、531 (1992).
- 11) 森本清水、門元之郎、橋本雅方：熱電子発電装置の研究ー概念設計と熱電子発電素子の要素試験ー三井造船技報、150号、14-21 (1993).
- 12) 日本機械学会第2企画部会宇宙動力分科会報告書「宇宙における動力利用」、132 (1975).
- 13) T. Hammel, J. Himes, A. Lieberman, J. McGrew, D. Owings and F. Schumann: Specification for Strontium-90 500-Watt(e) Radioisotopic Thermoelectric Generator, US DOE Rep., No. DOE-AL-22028-T-2, 96p. (1983).
- 14) J.R. Dovore, K.W. Haff and J.A. Tompkins: Fabrication of Three 2500-Watt (thermal) Strontium-90 Heat Sources, US DOE Rep., No. CONF-860810-29, 9 p. (1986).
- 15) 近藤康雄、久保田益充、阿部忠、長渡甲太郎：群分離法の開発：使用済燃料中に含まれる有用元素の回収及び利用法 (文献調査)、日本原子力研究所 JAERI-M 91-147 (1992).
- 16) A.B. Brodsky (ed): "CRC Handbook of Radiation Measurement and Protection," CRC Press (1978).
- 17) アイソトープ手帳、(株)アイソトープ協会、(1986).
- 18) 兵藤知典：放射線遮蔽入門 (第2版)、産業図書、(1979).
- 19) 山田勝美、森田正人、藤井昭彦：ベータ崩壊と弱い相互作用、培風館、(1974).
- 20) IMSL MATH / LIBRARY Special Function (Version 2.0), User's Manual, (1991).
- 21) J. F. Briesmeister (ed): MCNP-A General

参考文献

- 1) 科学技術庁研究開発局：熱応力緩和のための傾斜機能材料開発の基盤技術に関する研究 (第I期) 成果報告書、(1991).
- 2) 科学技術庁研究開発局：熱応力緩和のための傾斜機能材料開発の基盤技術に関する研究 (第II期)

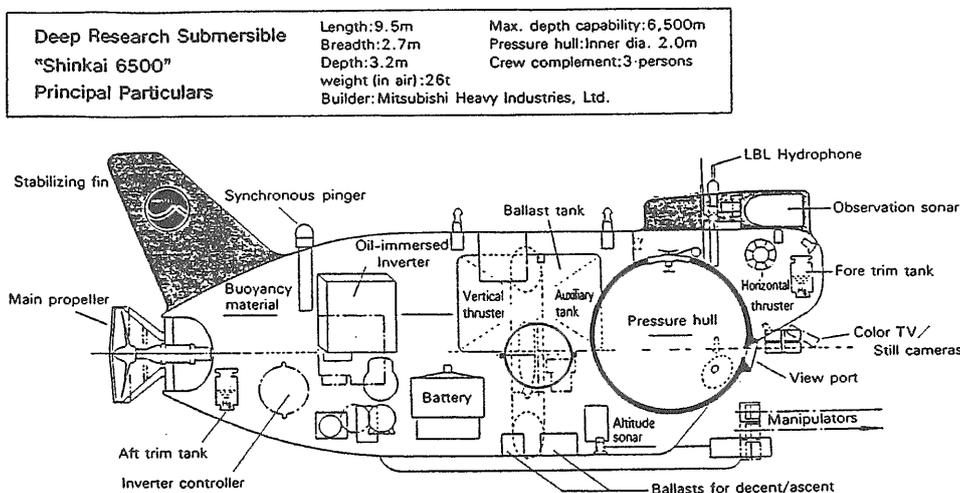
- Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4 A, LA-12625 (1993).
- 22) J. Halbleib: Structure and Operation of the ITS Code System, in Monte Carlo Transport of Electrons and Photons, Edited by T. M. Jenkins, W. R. Nelson, and A. Rindi, Plenum Press, 153 (1988).
- 23) H. H. Naumann and K. H. Waechter: Shielding for Radioisotope Bremsstrahlung Source Sr90 + Y90, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 16, 613-615 (1965).
- 24) 体外放射線に対する防護のためのデータ (ICRP Publication 51)、(株)日本アイソトープ協会、(1988).
- 25) 体外線源からの電離放射線にたいする防護データ: ICRP Publication 15の補遺 (ICRP Publication 21)、(株)日本アイソトープ協会、(1974).
- 26) V. Keshishian, L. Gay and R. D. Meyer: Space Reactor Shield Technology, Proc. 23rd Intersoc. Energy Conv. Eng. Conf., 219-223 (1988).
- 27) 前園明一: セラミックス, 29 [5] 421 (1994).
- 28) 浦 環、高川真一: 海中ロボット総覧、成山堂書店、(1994)
- 29) 「海洋新動力システムの調査研究」調査報告書、日本深海技術協会、(1992)
- 30) Y. Nikolaev, Thermionic and Thermoelectric Methods of Conversion of Thermal Power into Electrical One, (1993).

アのひとつであり、科学的な研究対象として魅力的であるだけでなく、工業的な開発の可能性も秘めている。観測・調査では、海流や海水温度の分布等の海洋物理の分野での調査、プレート運動の解明のための大洋底の調査等の地球物理分野の観測、深海生物や回遊魚の生態などの水産分野での調査等がある。地球のプレート運動の主要な活動地点である海底の調査は今後ますます重要性が強く認識されるであろう。また、気象観測においても、大気-海洋結合モデルによる数値予報技術の開発のためには、海洋の観測がきわめて重要である。さらに、資源探査としては、4000mから6000mの大洋底のマングン団塊や、1200mから3500mの海底熱水鉱床、800mから2400m程度の海底のコバルト・リッチ・クラストなどが対象となる。大洋底は、豊富な資源を有する未開発の領域であり、調査段階から実用に移行するに従い、大規模なプラントが必要となる。海底における工事としては、海底ケーブルや資源輸送用パイプラインの敷設・保守等が挙げられる。また、沈船や海に墜落した航空機の救難・捜索・回収等の作業も必要である。沿岸の浅水域の用途として、港湾工事のほか、観光・レクリエーションのための潜水船も実用になっている。これらの活動に伴い、海中での作業の飛躍的な質的・量的拡大が見込まれる。そのためには、高効率で信頼性の高い海中動力源の開発が必要である。

海洋は、陸上からの電力等の供給が容易でない場合が多く、独立した動力源を有するシステムが用いられる。海洋における動力利用のシステムとしては、大型のものとして、船舶、石油掘削リグ等の海洋プラントがあるほか、観測や資源採取のための海中基地の構想もある。また、小型のシステムでは、海洋科学技術センターの「しんかい6500」等に代表される海中調査船や、気象や海洋物理関係の観測を行う海洋観測機器等

[付録] 海洋分野におけるRI発電システムの適用可能性

海洋は宇宙、大深度地下とならぶ現代のフロンティ



付図1 しんかい6500の概念図

がある。このなかで、大型のシステムでは、動力源としてはディーゼル機関、原子力等の動力プラントが検討されている。ここでは、現在使用または検討されている各種動力システムの特性を調査し、RI熱源エネルギー変換システムの適用可能性の検討を行った。

1. 海洋動力利用の形態

(1) 海中調査船¹⁾

海中調査船は、現在おもに観測用のものがいくつか就航している。その規模・形態により小型有人潜水船、大型有人潜水船、無人無索潜水船に分類される。海上の母船からケーブルを介して電力の供給を受けるタイプでは、独立した動力源を必要としない。しかし、母船からのケーブルは、潜水船の行動範囲を母船の近くに制限するほか、海上の天候により行動が制約される。またケーブルの安全性の確保などの新たな問題も生じる。このため、機動性の向上や長期間の観測のためには、独立した動力源が必要となる。

小型有人潜水船は母船に支援された潜水船で、海洋科学技術センターの「しんかい6500」はこのタイプである。付図1にしんかい6500の概念図を示す。乗員3名で最大潜航深度は6500mである。観測地点へは母船に載せて運び、水中では自航する。動力源として酸化銀-亜鉛電池を搭載する。ケーブルの接続はないものの、母船が潜水海域に留まる必要があることから、潜水船の行動範囲が限定され、また海上の天候に左右される欠点はある。しかし、多量のエネルギー源を内蔵する必要がなく、活動が1日単位であることから、潜水船は小型ですむ。

大型有人潜水船は、母港から自力で目的地に航海し潜水調査を行う。1回の航行は10日から20日と長くなり、その間の生活に要する資材を積み込むため大型になる。しかし、母船との連携が必要でなく、行動範囲は自由に設定できる。フランス国立海洋研究所 (IFR

EMER) とコメックス社 (COMEX Industry) が共同運航する調査船で1991年に就航した「SAGA 1」の概念図を付図2に、主要目を付表1にそれぞれ示す。

付表1 SAGA 1の水中動力源の主要目

船体寸法	全長	28.06 m
	全巾	7.40 m
	高さ	8.50 m
排水量	水上	303 ton
	水中	545 ton
喫水	水	3.65 m
	水	6.00 m
最大潜航深度		600 m
ダイバーロックアウト深度		~ 450 m
動力源	水上	ディーゼルエンジン (HISANO-SUIZA) 175kw × 1基
	水中	スターリングエンジン (V4-275MKI) 75kw × 2基
燃料酸化剤	燃料	7500 l
	液体酸素	6500 kg
	高圧酸素	5600 m ³ (400 bar)
全貯蔵エネルギー		10500 kWh (内蓄電池 700kwh)
連続潜航期間		10 日
航続力		150 nm
乗員数		操船員 6名 + ダイバー 6名
運力	水上	7 kt
	水中	最大 6 kt
ライフサポート		22 日

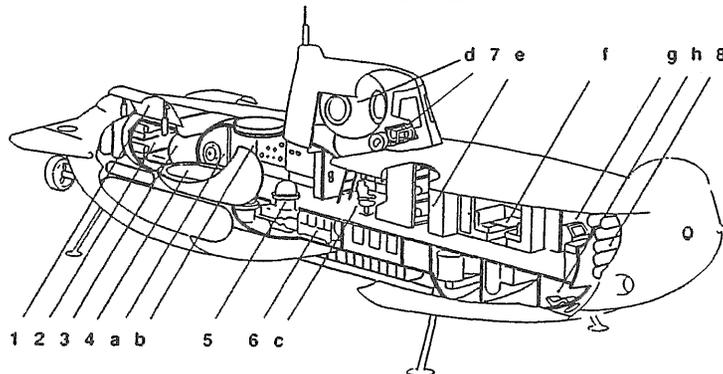
母船の支援を必要とせず港から観測現場まで自航し、最大潜水深度600m、連続潜航期間は10日の能力を有する有人潜水船である。海上の航行にはディーゼル機関が用いられ、水中動力源としては75kWのスターリング機関を2基搭載する。

海水温度の3次元分布測定などのような、広範囲の必ずしも有人で行う必要のない観測のためには、無人で独立航行する潜水船が適している。たとえば、フランスのCNEXO (国立海洋開発センター、現フランス国立海洋研究所) が1979年に製作した無索無人の潜水船「Epaulard」があり、1カ月程度の長期にわたる観測 (海底の静止写真を撮影等) を行う目的で製作された。超音波リンクにより遠隔操縦され、最大潜航深度は6000mで、鉛蓄電池を電源とする。

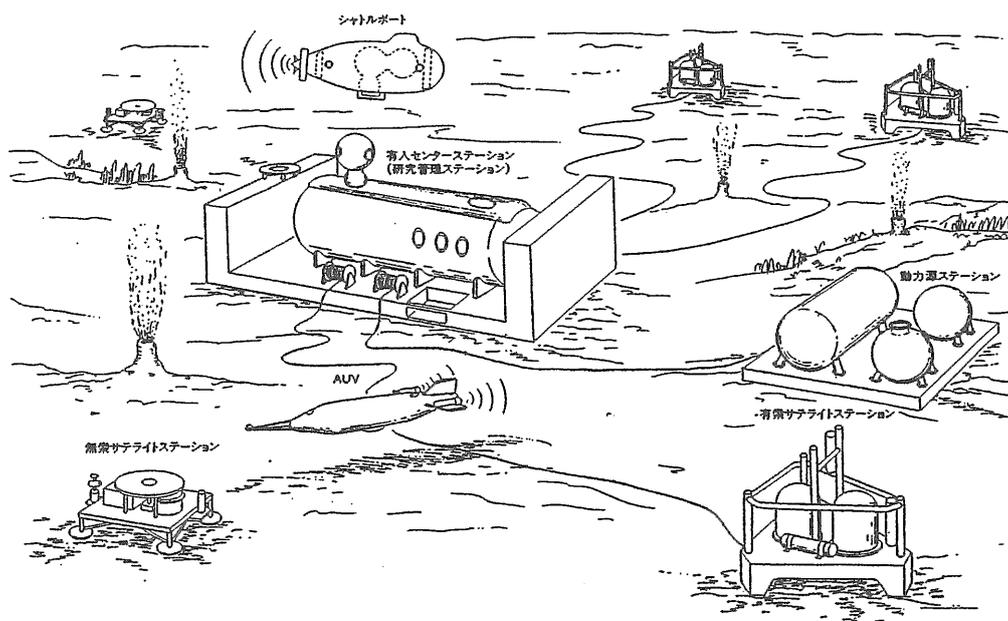
(2) 観測機器

気象、海象の観測や海洋物理の調査等のために洋上に浮遊するブイが用いられる。ブイには漂流ブイと係留ブイがあり、後者は浮遊するブイをアンカーで海底

- (1) 135m³ 1atm 区画、20m飽和潜水区画 : (2) 6人のダイバー用設備 : (3) diving locks 2基 : (4) 6トン酸素低温貯蔵 : (5) 75kWスターリングエンジン2基 : (6) 176kWディーゼルエンジン : (7) robot : (8) 5000m³ ガス貯蔵 : (a) 潜水制御室 : (b) 機関室 : (c) 球形上部室付き指令室 : (d) 乗組員救助用脱出区画 : (e) 居住区画 : (f) 厨房 : (g) 電気・技術工場/研究室 : (h) 全部観測席



付図2 SAGA 1の概念図



付図3 海洋観測基地の概念図

に係留する。これらのブイには、観測機器とデータを伝送する通信システムが搭載され、それらを運転する電源が必要である。気象庁の海洋ブイでは、風向、風速、気温、湿球温度、気圧、水温、有義波高、波周期、日射、方位、位置が計測される。また、異常気象の原因ともいわれるエルニーニョ現象の解明等のために海洋大循環の国際的な観測ネットワークの構築の計画もある。また、海底地震計等のように海底に設置される観測機器もある。観測ブイなどの無人のシステムの電源としては、長期間安定して作動する動力源が必要である。

(3) 海中基地構想²⁾

プレート運動の持続的観測が必要であることなどから、10年程度の長期間の観測を行うための大規模な深海底総合観測基地の構想が示された。動力源を有するセンター基地を中心に観測機能を有するサブ観測基地を配置する。センター基地とサブ基地間はケーブルにより動力供給とデータ伝送を行う。また、センター基地からは海上に浮遊するブイを配置し、地上との通信を行う。さらに、サブ観測基地の保守管理と海中データ観測等のために、自立航行の潜水艇 (AUV) を運航する。このような大規模基地の動力源としては、数十kWから数MW程度の大容量の発電設備が必要で、

10年程度の長期間稼働する動力源として原子炉が想定されている。同様の大型基地は、海洋観測 (付図3) や深海での資源採取のためのものの構想もある。このような大型施設では、RI熱源エネルギー変換システムは、信頼性の高い補助動力または緊急用動力源として利用されると考えられる。

2. 海中で利用できる動力源

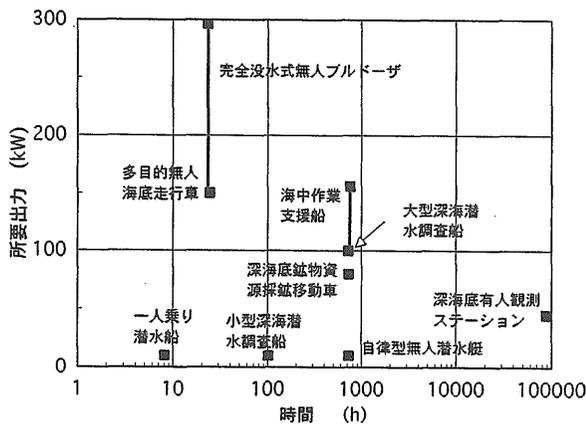
潜水調査船や観測機器に用いられている動力源は、現在はほとんどが2次電池である。しかしながら、活動の長期化や自由化のために電池にかわる動力源が期待されている。動力源の仕様を付表2に、各ミッションの出力と時間の関係でプロットしたものを付図4に示す。これらのほかに、前節で述べた海中基地構想では、数MW程度の大規模動力源を想定している。本節では、各動力源の特徴を述べる。

(1) 2次電池³⁾

正極、負極および電解液からなり、充電により繰り返し使用が可能である。電池は種類により充放電特性が異なるほか、重量当りもしくは体積当りの容量や寿命 (繰り返し充放電可能な回数) 等の性能も異なる。メンテナンス・フリーであり、部分負荷に対する制御性もよく静粛である。一方、容量に比例して重量が増

付表2 想定される潜水艦・海中施設の動力源の仕様

	出力	深度	航続時間	例
小型 (母船支援) 有人潜水船	10~20 kW	6500m	7 日	しんかい6500
大型 (独立型) 有人潜水船	50~100 kW	500~3000m	10~20 日	SAGA 1
無人無索潜水船	20~30 kW	500~6000m	1カ月	Epaulard
海中ステーション	50 kW以上	2000~6000	1~10 年	構想段階



付図4 海洋開発での所要動力と時間の関係

加することが大容量化の場合の問題となる。

鉛電池は、使用実績が豊富で、工業的には現在でも最も広く利用されている。酸化鉛と鉛を正負極に、硫酸を電解液に使用する。エネルギー密度は 25Wh/kg と小さいが、長寿命（充放電1000サイクル）で安価である。ニッケル・カドミウム電池は、正極にNi、負極にCdを用いる。エネルギー密度は 23Wh/kg でかつ高価であるが、寿命は2000サイクルと長く、機械的電氣的に堅牢である。ニッケル・水素電池は、ニッケル・カドミウム電池と放電特性等は同程度であるが、エネルギー密度が1.5～2倍程度高い。酸化銀・亜鉛電池は、高価で寿命は200サイクル程度と低いが、現状ではエネルギー密度が 100Wh/kg と最も高いのが特徴である。このため、「しんかい6500」やロケット等で使用されている。「しんかい6500」では、72セル×2群の電池で構成し、出力108V、800Ah、エネルギー密度 103Wh/kg 、 232Wh/l （初期容量）となっている。

(2) 燃料電池⁴⁾

電解質を通したイオン伝導により、燃料の化学エネルギーを熱を経ずに直接電気エネルギーに変換するシステムである燃料電池は、産業用の新しい発電方式として注目されている。また、動作が静的であり小型の装置が可能であることから、宇宙船や潜水船の動力源としても期待される。電解質に用いる物質により分類され、それぞれに固有の動作温度と燃料物質が決まっている。潜水船の動力としては日本深海技術協会の検討例がある。現在最も適していると考えられるのは固体高分子型（SPEFC）であるが、将来型としては固体酸化物型（SOFC）も有力である。

固体高分子型燃料電池（SPEFC）は、電解質として固体高分子膜（イオン交換膜）を用いる燃料電池で、水素イオン伝導により発電する。水素と空気をそれぞれ燃料と酸化剤とする 5kW のシステムで、 $0.037\text{m}^3/\text{kW}$ 及び $25\text{kg}/\text{kW}$ というデータがある。固体酸化物型燃料電池（SOFC）は、電解質として酸素イオン伝

導性の安定化ジルコニアを用いる燃料電池である。高い熱効率が期待されて開発が進められているが、動作温度が高く 1000°C 程度に保持する必要がある。無人無索潜水船への適用検討で、メタノールと液体酸素を使用し、出力 30kW 、 $0.04\text{m}^3/\text{kW}$ 、 $67\text{kg}/\text{kW}$ という試算がある。

(3) 熱機関^{1), 4)}

潜水船動力用としては、スターリング機関と密閉サイクルディーゼル機関（CCDE, Closed Cycle Diesel Engine）の利用または検討例がある。スターリング機関は、燃料の多様性や静粛性などから海中動力源として適すると考えられている。SAGA 1に搭載されているコッカムス社のエンジンは、燃料油と液体酸素の燃焼で、 75kW の軸出力が得られる。SAGA 1の最大潜水深度は600mであるが、この深度では排気（2 MPa）は水圧（6 MPa）より低圧であるため加圧して排出する。CCDEは、宇宙や海中のように大気の供給ができないところで、排気を循環させることで運転するディーゼル機関である。窒素やアルゴンを作動流体として燃料油と酸素を供給し、排気から炭酸ガスを分離除去して循環させる。潜水艇への応用も研究されている。

(4) 原子炉

日本原子力研究所で深海動力用として検討されている原子炉（DRX=Deep-sea Reactor X）は、深海科学調査船を想定した出力 150kW の加圧水型動力炉（PWR）である¹⁾。蒸気発生器を原子炉容器内に内蔵し、タービンと発電機を耐圧殻内に設置する。プラントのサイズは高さ5.5m、幅2.2m、重量は40トンとされている。原子炉の熱出力は 750kW であり、燃料は 56kg を装荷する。動力炉・核燃料開発事業団では、海中基地動力として 2MW の熱出力をもつ高速炉-密閉ブレイトンサイクル（作動流体：He-Xeガス）のシステムを検討した⁵⁾。小型潜水船（ 20kW 、7日程度）の動力源では、燃料電池システムと比較して重量が倍程度になるが、大型潜水船（ 100kW 、20日）や深海基地（ 50kW 、1年）でははるかに軽量になるという見通しを示している⁶⁾。

3. 適用性の評価

動力源としての各システムを比較すると、まず2次電池は、実績があり高い信頼性があるといえる。また、制御性が優れているが、充電が必要であり時間に比例して重量・容積が増大し、長期間の使用の場合には不利である。燃料電池はほぼ実用化が達成されるようになった。変換効率が高く、他の熱機関にくらべると静粛性や部分負荷時の効率などで優れている。しかし、燃料と酸化剤が必要であり、長期間の連続使用のためにはタンクの重量・容積が増大するとともに、排気を

付表3 海中動力源の適用性の比較

比較項目	酸化銀亜鉛電池	燃料電池(SPEFC)	RI熱電(造研)	複合変換システム
比重量	90 kg/kW (9h運用として) (100Wh/kg)	25 kg/kW (除 燃料・酸化剤)	155 kg/kW (遮蔽体を除く)	40~60 kg/kW (遮蔽体を除く)
比体積	0.039 m ³ /kW (9h運用として)	0.037 m ³ /kW	0.98 m ³ /kW	0.3 m ³ /kW
静粛性	良	良	良	良
メンテナンス	不要	要	不要	不要
作動時間	短期	中期 燃料/酸化剤補給	長期	長期
制御性(部分 負荷特性)	優	良	一定出力(排熱 必要)	一定出力(排熱 必要)
インシャルコスト	低	中	高	高
ランニングコスト	高	中	低	低

出す必要が生じ、深海での使用の場合にはロスとなる。

一方、RI熱電変換システムは未だ検討段階である。多量のRIを扱う技術はわが国ではほとんど未知である。また、一定出力となり、短期的な過大負荷の補助動力や低負荷時の排熱などの対策も必要である。しかしながら、一度設置すると10年以上の長期にわたりメンテナンスフリーで作動することはガリレオ衛星などで実証されている。

付表3の比較では、出力当りの重量と容積が他のシステムに比較して大きい。高効率複合変換システムでは、RI熱源部や変換素子に傾斜構造(FGM)化を取り入れることにより、システムの変換効率の向上をはかるもので、比重量と比容積が大幅に改善されることが期待される。RI熱電発電をベースに、変換効率8%が20%に向上するとすると比重量は約60kg/kWになる。また、ガリレオ衛星に搭載されたPuO₂熱源(GPHS)と、宇宙用として検討された2.5kW級のエネルギー変換部重量(20kg)をもとに推定すると40kg/kW程度となる。また、RIシステムの特徴として、均圧構造とすることでシステムを耐圧殻に格納する必要がなくなることが挙げられる。これを考慮すると、

重量の面での欠点は小さくなる。RI熱源のエネルギー変換システムは、システムの重量・容積・コストが出力のみに依存し、作動時間に依存しないため、長期間メンテナンスフリーでの運用には最適のシステムといえる。

[参考文献]

- 1)「水中動力源」講演会講演要旨集、日本深海技術協会、(1994)
- 2)「深海底基地概念検討」動力炉・核燃料開発事業団資料
- 3)浦 環、高川真一：海中ロボット総覧、成山堂書店、(1994)
- 4)「海洋新動力システムの調査研究」調査報告書、日本深海技術協会、(1992)
- 5)大坪 章、羽賀一男：高速炉を用いた深海用動力源の成立性、日本原子力学会誌、34 [10] 940-947 (1992)。
- 6)大坪 章、羽賀一男、関口信忠：高速炉ガスタービン発電概念検討、動燃技報、89, 30-41 (1994)