シンチレーション型 RI 電池の研究

東北大学　大学院工学研究科応用化学専攻
藤本　裕

1．はじめに

現在、福島第一原発やもんじゅの廃炉作業が進められているが、取り出された核燃料物質や放射性廃棄物については恒久的に管理･保管を行っていく必要がある。放射性廃棄物の中でも、使用済燃料を再処理してウランとプルトニウムを回収したあとに、核分裂生成物を主成分とする放射能の高い廃液を高温で溶かしたガラス原料とともにステンレス鋼製の容器(キャニスタ)に入れ、冷やして固め、ガラス固化体とされたものを高レベル放射性廃棄物と呼ぶ。通常、これらの廃棄物は低レベル放射性廃棄物に比べると発生量は少ないが、超長期間にわたり人間環境から隔離し、管理・保管する必要があり、その経済的コストは莫大となる。日本においては、30～50 年程度、一時貯蔵して冷却した後、最終的に地下 300 m より深い安定した地層中に処分する方針となっている (図 1 参照)。

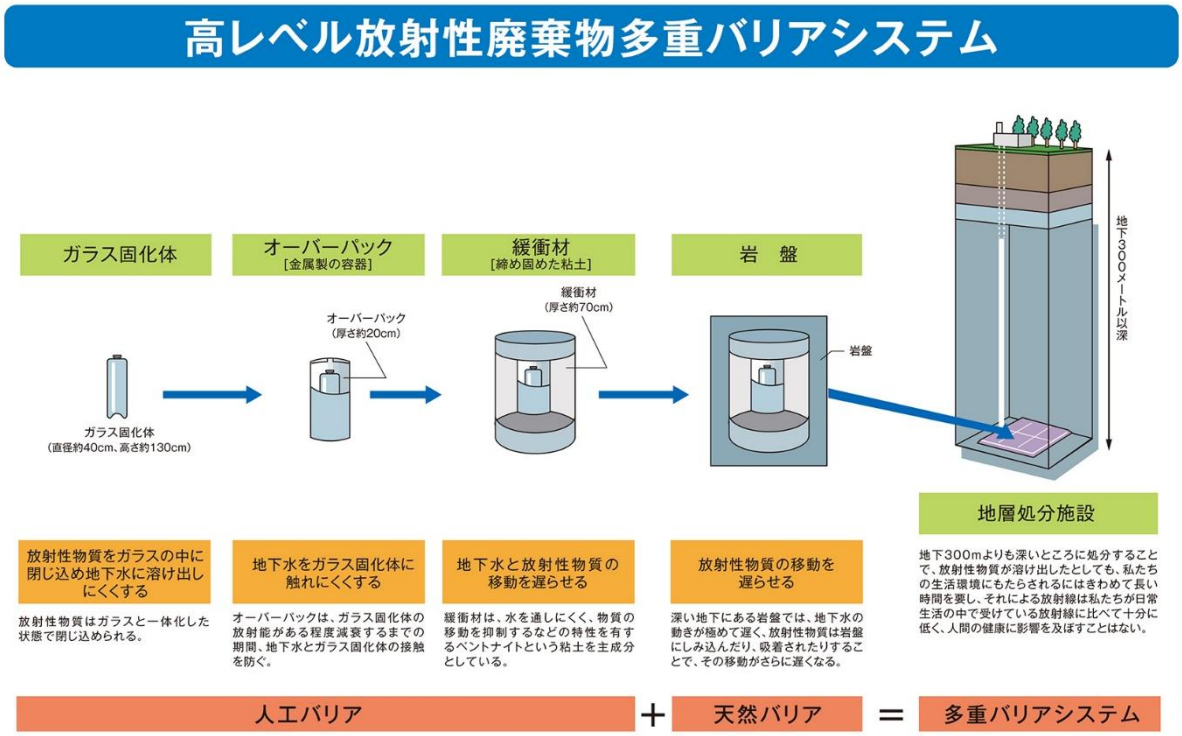

図 1. 高レベル放射性廃棄物の処理過程　エネ百科より
(https://www.ene100.jp/zumen/8-3-7)

一方、現状の技術では、これら廃棄物を短期間で無害化することは実質的には不可能である。そのため、その害を減じるために、核破砕によってより短寿命な放射性核種に変換する技術が開発されているが、膨大な量の廃棄物への適用は困難であり、現実的ではない。このような実情に対して申請者は、長期に管理・保管され、コストを生み続けるだけの存在の放射性物質に

対して、エネルギーを取得するための資源としての新たな利用価値を見出すことができれば、これまでの社会的な位置づけを根本から変えることができ、産業的・学術的な意義も大きいと考えた。

２．本研究の目的とRI電池の設計

本研究では、放射性廃棄物から発生する放射線のエネルギーを光電変換することで、同廃棄物を有用なエネルギー資源として活用することを企図し、赤色発光シンチレータと太陽電池を組み合わせたシンチレーション型 RI 電池を開発する(図 1 参照)。これにより、長期に管理・保管され、コストを生み続けるだけの存在の放射性物質に対して、エネルギーを取得するための資源としての新たな利用価値を見出す。同電池の開発に向けては、太陽電池の分光感度にマッチする蛍光波長を有したシンチレータ材料を新規に開発する必要がある。また、実際の運用にあたっては、太陽電池と組み合わせる際に大面積化が要求される。そこで本研究では、工業的に大口径化技術が確立しているガラスを母材料とした赤色-近赤外発光型のシンチレータ開発を実施する。その後、シンチレータと太陽電池を組み合わせた RI 電池を試作し、最終的に、高レベル放射性廃棄物の保管に用いられるガラス固化体の表面線量率が 1,500 Sv/h であることを踏まえ、500 Sv/h—2,000 Sv/h の線量域での動作試験を行う。

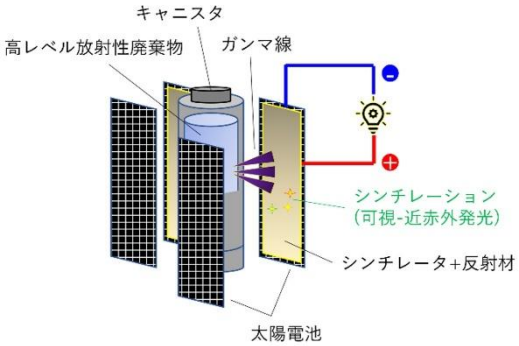

図 2. RI 電池の設計とイメージ

３．研究の方法及び内容

本研究を行うにあたり、開発する RI 電池の効率は、原理的にシンチレータの発光量と太陽電池の分光感度に対する蛍光波長とのマッチングで決まる。しかし、一般に放射線計測用に市販されるシンチレータは光電子増倍管と組み合わせることを想定しているため、多くの市販材料は紫外-可視域に発光を示し、太陽電池との波長マッチングが悪い(図 3 参照)。そのため、本研究では従来の材料設計から脱却し、新規にシンチレータを開発する必要がある。特に本研究では、応用上、太陽電池と組み合わせる際に大面積化が想定されるため、工業的に大口径化技術が確立しているガラスを母材料とした赤色-近赤外発光型のシンチレータ開発を目指す。具体的には、中性子計測用に製品化されているシリケート系ガラスや個人被ばく線量計素子に使用されるリン酸塩系ガラスなど、放射線計測用として実績のある母ガラス組成をベースとし、発光中心には、太陽電池の分光感度が高い 900-1000 nm 付近にて 4f-4f 禁制遷移を示す Nd^{3+}や Yb^{3+}を想定している。シンチレータ組成の最適化は、後述の物性評価の結果を材料パラメータに繰り返しフィードバックすることで行う。物性評価は、以下(1)及び(2)の 2 パートに分けて詳細を記述する。

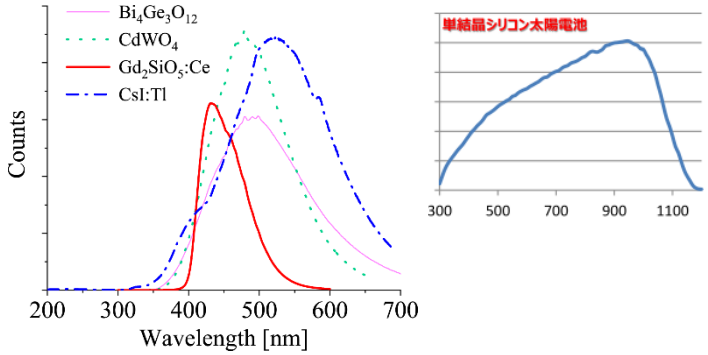

図 3. 市販されるシンチレータの発光スペクトル(a)と太陽電池の分光感度曲線(b)
(分光計器 HP より https://www.bunkoukeiki.co.jp/)

(1) 光物性評価

シンチレータの光物性評価として、拡散反射率/透過率の測定を行う。シンチレータの透過率は、太陽電池へ照射される発光の強度に影響を及ぼし、一般には、拡散透過率で 70%以上が好ましい。また、反射率測定より、シンチレータの屈折率を計算する。屈折率は、以降に行う反射材や光学接着剤などの太陽電池へのアセンブリ法を検討するうえで重要なパラメータとなる。

(2) シンチレーション特性評価

光電変換方式の RI 電池に対応可能なシンチレータか否かを見極める性能評価として、シンチレーションスペクトル及びシンチレーション波高スペクトル、シンチレーション強度の線量応答性評価を行う。シンチレーションスペクトルでは、シンチレータの蛍光波長域の評価となり、太陽電池の最大分光感度波長域とのマッチングを検証する上で重要な評価項目となる。シンチレーション波高スペクトルでは、シンチレータの発光量を定量的に求める。開発する光電変換式放射線電池の効率は、原理的にシンチレータの発光量と太陽電池の分光感度に対する蛍光波長とのマッチングで決まるため、当該評価も重要な情報源となる。また、シンチレーション強度の線量応答性評価は、最終的に放射線電池におけるダイナミックレンジや放射線耐性に直結した情報となる。スクリーニングにより特に有望なシンチレータ組成については、太陽電池と組み合わせた RI 電池を試作する。

(3) シンチレーション型 RI 電池の試作

アセンブリの際には、シンチレータの形状や反射材、光学接着剤の検討も行うことで、シンチレータから生じる赤色-近赤外光の集光効率を最大化させる。RI 電池としての動作試験には、X 線発生装置や ^{60}Co ガンマ線照射施設を利用し、照射線量に対する I-V 特性を評価することで、放射線照射における変換効率を評価する。また、同施設を用いて、放射線耐性についての評価も行う。本研究では、高レベル放射性廃棄物の保管に用いられるガラス固化体の表面線量率が 1,500 Sv/h であることを踏まえ、500 Sv/h—2,000 Sv/h の線量域で動作試験を行う。

4. 過去の類似研究

本研究のように、放射線のエネルギーを電気信号などの電気エネルギーに変換する技術としては、放射性元素の原子核崩壊の際に発生するエネルギーを利用した原子力電池が古くから知られている。原子力電池用の放射性元素には、α崩壊を起こすプルトニウム 238 やポロニウム 210 の他、長い半減期を持つストロンチウム 90 が使用され、かつて宇宙探査機や心臓ペースメーカーの電源として応用されていた。近年もロシアの TVEL により、低電力用途の長寿命小型原子力電池として「ベータボルタ電池」が発表されている。欧米企業においても、核廃棄物から抽出した放射性核種の崩壊による熱を利用した熱電変換型のダイヤモンド電池が開発されている。

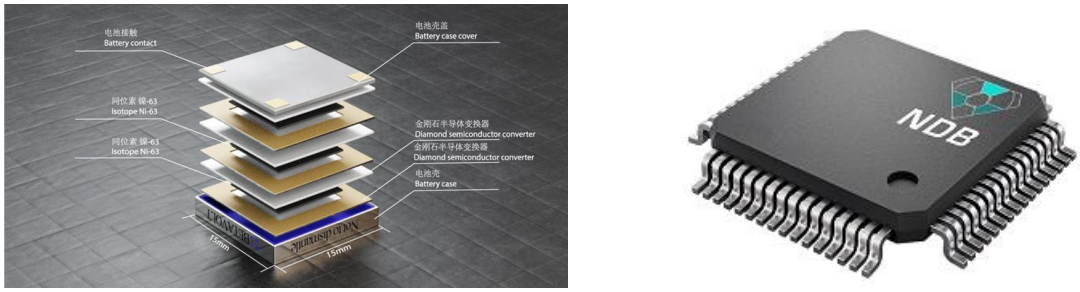

図 4. ベータボルト電池(左)及びダイヤモンド電池(右)

(https://pc.watch.impress.co.jp/img/pcw/docs/1560/440/html/2_o.png.html)
(https://www.sangyo-times.jp/article.aspx?ID=5314)

5. 研究結果

図 5(a)に試作した RI 電池を示す。当該電池はシンチレータ、鉛ガラス、太陽電池の 3 層構造となっている。鉛ガラスは太陽電池への放射線の直接入射による出力信号の抑制と劣化防止を企図している。この試作した RI 電池を用いて、図 5(b)のような実験セットアップにて動作試験を行った。照射する放射線には X 線発生装置から生じる Cu-Kα の X 線を用いた。実験では、X 線照射時の I-V 曲線測定を行い、シンチレータの有無や種類の違いにおける電流値を比較した。図 5(c)に、YAG:Nd 及び GGG:Nd シンチレータを用いた際の I-V 測定を示す。まず、シンチレータがない場合と比較して、シンチレータを設置した際に電流値が増大していることが確認された。また、シンチレータの種類においても、出力される電流値に明確な差が見られ、太陽電池の分光感度とシンチレーション光とのマッチングやシンチレータの発光収率が大きく影響していることが示唆された。

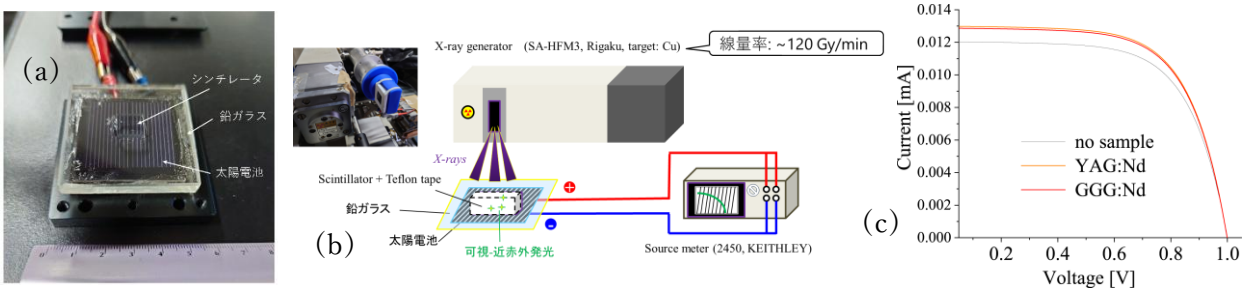

図 5. 試作した RI 電池の外観(a), I-V 曲線測定の概要 (b), YAG:Nd 及び GGG:Nd の I-V 曲線比較(c)

９．まとめ

本研究では、放射性廃棄物から発生する放射線のエネルギーを光電変換することで、同廃棄物を有用なエネルギー資源として活用することを企図し、赤色発光シンチレータと太陽電池を組み合わせたシンチレーション型 RI 電池を開発した。実験を通じて、試作した RI 電池の動作を確認し、設計指針の有用性と実用に向けた性能向上の課題が明らかとなった。特に、シンチレータの発光波長と発光収率は、RI 電池の性能に直結するため、太陽電池の分光感度域で高効率に発光する材料の開発が重要となる。また、太陽電池側も有機無機ペロブスカイト型を用いることにより、大面積且つフレキシブルな RI 電池の実現も期待できる。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、天野工業技術研究所から多大なご支援を頂きました。ここに記して謝意を示します。