

放射性同位素电池的研究进展

周毅¹, 张世旭^{1,2}, 李公平^{1,2*}

1. 兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000;

2. 兰州大学核能与核技术研究所, 兰州 730000

* 联系人, E-mail: ligp@lzu.edu.cn

2016-07-15 收稿, 2016-10-08 修回, 2016-10-09 接受, 2017-01-22 网络版发表

秦惠君-李政道中国大学生科研见习进修基金(兰州大学)(JZSL20150005)资助

摘要 放射性同位素电池因其巨大的应用前景而受到学术界与工业界的广泛重视. 本文简述了放射性同位素电池的历史背景、发展历程及现存的关键技术瓶颈; 简单介绍了放射性同位素电池的基本原理与设计要求, 讨论了目前国内外研究的不同换能方式同位素电池的技术方案, 具体介绍了静态型热电式同位素电池、辐射伏特效应同位素电池、动态换能方式同位素电池、压电换能机制同位素电池的实验原理与研究进展; 最后, 对上述几种技术方案进行了分类总结与对比分析, 并结合放射性同位素电池未来发展趋势、发展要求和用于放射性同位素电池燃料的同位素来源, 展望了放射性同位素电池未来发展前景与潜在应用.

关键词 放射性同位素电池, 静态型热电式, 辐射伏特效应, 动态换能方式, 压电换能机制

放射性同位素电池(radioisotope batteries, RIB)简称同位素电池, 它是利用换能器件将放射性同位素衰变时释放出射线的能量转换成电能的一种新型电池. 与传统的干电池、化学电池、燃料电池、太阳能电池相比, 放射性同位素电池具有服役寿命长、环境适应性强、工作稳定性好、无需维护、小型化等优点, 在军事国防、航天航海、极地探测、生物医疗、电子工业等重要领域有着潜在的实用价值, 并已经引起国内外学术界与工业界的高度重视^[1,2]. 目前, 放射性同位素电池已成功应用于军事卫星、空间探测器、水下监听器、航标灯、心脏起搏器、微型电动机械等方面^[3~5].

自英国物理学家Moseley^[6]于1913年提出 β 电池概念至今, 放射性同位素电池的换能方式已经发展为十余种. 在放射性同位素温差发电器(radioisotope thermoelectric generator, RTG)方面, 美国于1956年率先制定了核动力辅助计划SNAP(systems for nuclear

auxiliary power)^[7], 旨在为军用导航卫星等空间应用提供动力, 并在1961年成功发射了载有SNAP-3B₇型²³⁸Pu放射性同位素温差发电器(RTG)的导航卫星^[8], 首次将同位素电池成功应用于空间探测领域. 1965年, 苏联首次实现了²¹⁰Po同位素温差发电器(RTG)为“宇宙”系列军事卫星供电^[9]. 此外, 中国科学院上海应用物理所(原子核所)^[10]在同一时期也研制成功了热电转换效率为4.2%的实验室原型核电池. 在辐射伏特效应同位素电池(radiation voltaic isotope batteries, RVIB)方面, Rappaport^[11]于1953年首次公开了基于⁹⁰Sr/⁹⁰Y放射源释放的 β 粒子轰击Si型p-n结产生电子伏特效应设计的辐射伏特效应同位素电池, 其转换效率为0.2%. 随着半导体材料与器件制备工艺的发展, 同位素电池换能单元得到了很大的改进. 2005年, Sun等人^[12]以氟化非晶态硅为放射源, 利用三维深多孔结构的单晶硅p-n结型器件为换能单元, 对辐射伏特效应同位素电池进行了研究, 实验测得电池

引用格式: 周毅, 张世旭, 李公平. 放射性同位素电池的研究进展. 科学通报, 2017, 62: 1831–1845

Zhou Y, Zhang S X, Li G P. A review of radioisotope batteries (in Chinese). Chin Sci Bull, 2017, 62: 1831–1845, doi: 10.1360/N972016-00793

的能量转换效率为0.22%，几乎是同条件下以平面单晶硅 p-n 结型器件同位素电池能量转换效率(0.023%)^[10]的10倍，这一结果在学术界引起了广泛关注^[13,14]。此外，第三代宽禁带半导体的应用，使得辐射伏特效应同位素电池的转换效率得到了很大提升。2008年，用于生产和销售氚电池的City Labs公司注册成立，该氚电池采用SiC为换能材料，可实现10%的转换效率^[2]。2011年，中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所Lu等人^[15]将第三代宽禁带半导体GaN作为换能单元材料应用在 β 辐射伏特同位素电池上，使得电池电荷收集效率达到了29%。2014年，Missouri大学Kwon课题组^[16]以硒半导体材料胶囊包裹的液态³⁵S为放射源，对传统型 β 辐射伏特同位素电池存在的严重能量损耗进行了改善研究，并得到了7.05%的能量转换效率。

进入21世纪，伴随传统换能机制的优化与新型换能机制的提出，同位素电池的输出功率与换能效率得到了很大提升。1995年，美国轨道科技公司Schock等人^[17,18]设计、分析和优化了同位素热光伏(radioisotope thermophotovoltaic, RTPV)发电机，与相同工作条件下的同位素温差发电机(RTG)相比，该同位素热光伏发电器将同位素热源质量减少了67%，发电机质量减少了50%，并将输出电功率和能量转换效率分别增加到了RTG的3倍和4倍。2008年，Cornell大学Lal课题组^[19,20]设计了高换能效率的压电悬臂梁机制同位素电池，该电池采用⁶³Ni为放射源，利用压电悬臂梁往复式机电转换器对 β 粒子的动能与电能进行收集，得到了750 μ W的电学输出功率和5%的能量转换效率，其可用于无线电传感器微系统中正常工作100年。2015年，兰州大学Zhou等人^[21]利用同位素放射源衰变加热惰性气体，在耐高温管道中形成高速气流并穿越活动式尖端喷嘴作用于压电材料形变，实现电能输出，以此对布雷顿(Brayton)循环发电系统进行了优化设计，该设计方案有效突破了动态型放射性同位素电池局限于涡轮机转动产生的惯性矢量影响系统稳定性与转动部件润滑困难等关键技术瓶颈。

自20世纪中叶以来，国内外学者从换能方式、换能结构和换能材料方面对同位素电池进行了系统的研究，使同位素电池的输出功率和能量转换效率得到了较大的提升，但目前同位素电池的实用化效率仍然较低，限制了同位素电池的发展。近年来，国内

外学者就空间放射性同位素电池^[22]、MMRTG (multi-mission radioisotope thermoelectric generator)^[23]、ASRG (advanced Stirling radioisotope generator)^[24~26]、RPSs (radioisotope power systems)^[27]、辐射伏特效应同位素电池(RVIB)^[28]、同位素电池材料^[29,30]与同位素电池应用^[2~5]等方面进行了评述，但就不同换能方式下同位素电池的研发历程、应用现状、转换效率、存在问题及未来发展趋势的横纵向对比与综合化系统性评述不足。因此，本文在简单介绍同位素电池的应用现状、研究历程、基本原理与设计要求的之后，详细介绍了静态型热电式同位素电池、辐射伏特效应同位素电池、动态换能方式同位素电池、压电换能机制同位素电池和特殊换能机理同位素电池的原理、研究进展及存在问题，通过横纵向对比分析上述几种换能方式下同位素电池的能量转换效率和工作特点，对未来同位素电池的发展前景和潜在应用进行了展望。

1 放射性同位素电池的基本原理与设计要求

放射性同位素电池的基本原理是利用换能器件将同位素放射源衰变时释放出射线的能量转换为电能并将其输出，从而达到供电目的。放射性同位素电池主要由同位素放射源和换能器件构成。一般而言，用于放射性同位素电池的同位素放射源需满足以下条件：单位质量放射性同位素核衰变时放出的能量(功率密度) $E_p > 0.1$ W/g，半衰期：100天 $< T_{1/2} < 100$ 年(确保电池的长寿命)，有良好的物理、化学性能与加工性能，毒性小，放射性危险小，放射源与燃料盒相适应，有害杂质少且易于屏蔽，同时应考虑经济性与可获得性^[3~5,20,28,31,32]。表1给出了可用于放射性同位素电池常用的部分放射性同位素的主要性质(某些同位素不完全满足上述选择原则，但其在某些方面有一定优势)。实际设计中，具体放射性同位素电池放射源的选用需综合考虑上述条件及外部因素。对于换能器件，由于放射性同位素电池不同的换能机制，而有不同要求。虽然不同种类放射性同位素的衰变类型和释放出的射线(如 α 射线、 β 射线和 γ 射线)不尽相同，但其遵循相同的衰变规律。简化同位素放射源内核物理模型，假设同位素放射源内放射性原子核只发生一级衰变且分布均匀，则可将同位素放射源放射性原子核衰变规律的时间微分形式表示为

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N_0 e^{-\lambda t}. \quad (1)$$

对(1)式进行时间积分, 可得单位质量放射性同位素完全衰变释放的能量

$$E_0 = \frac{\rho \omega E_r N_A}{M} \lambda e^{-\lambda t}, \quad (2)$$

其中 ρ 为放射性核素的密度; ω 为同位素放射源中放射性核素的质量浓度; N_A 为阿伏伽德罗常数; M 为放射性同位素的原子量; e 为自然常数;衰变常数 λ 表示单位时间内放射性原子核发生衰变的几率。

由于不同换能方式放射性同位素电池利用放射源衰变释放出的射线种类不同, 致使其理论换能效率计算方式也不尽相同。一般而言, 在求解放射性同位素电池换能效率时, 需要首先结合电池结构与工作原理建立数学模型或等效电路模型, 其次给出有助于简化计算、优化模型的假设, 最后结合(1)和(2)式确定电池换能效率。对于放射性同位素电池换能效率的计算主要有两个途径: (1) 直接参阅对应换能方式下该类型放射性同位素电池换能效率计算方式的相关文献^[3~5,33,34]。所述换能方式技术成熟, 研究资料较为详实, 例如, RTG、RVIB、RTPV、直接收集式、压电悬臂梁机制、斯特林(Stirling)循环同位素发电系统等。(2) 结合放射性同位素电池的结构设计与工作原理, 设计等效电路模型, 在已有假设的基础上参阅相关文献确定电池效率^[20]。该途径主要用于新型/特殊换能方式同位素电池的效率计算。通常, 可结合放射性同位素电池电学输出参数与放射源衰变能, 将一般意义上放射性同位素电池的能量

转换效率定义为

$$\eta = \frac{TFFI_{sc} V_{OC}}{mE_0} \times 100\%, \quad (3)$$

其中 T 为放射性同位素已衰变的时间, FF 为放射性同位素电池的填充因子(可由电池的 I - V 曲线得到), I_{sc} 为短路电流, V_{OC} 为开路电压, m 为同位素放射源质量。

对于放射性同位素电池的初步设计, 应主要考虑工作环境、放射源与换能单元等方面因素。放射性同位素电池的外部工作环境与目标性能指标很大程度上决定了它的换能方式与放射源。例如, 空间探测领域主要用到长寿命、大功率、稳定性高、无需维护的RTG或MMRTG^[3,4,22,23], 而微机电系统^[35](microelectromechanical system, MEMS, 是在微电子技术基础上发展起来的集微电源微能源、微传感器、微执行器、微机械结构、信号处理和控制电路、高性能电子集成器件、接口、通信等于一体的微型器件或系统)与低功耗/超低功耗器件^[36]上则用到小型化、集成性显著的RVIB或压电悬臂梁机制同位素电池^[2,4,20,28]。其次, 放射源与换能单元是放射性同位素电池的核心部件, 在满足放射源需求条件的基础上, 要尽可能减小甚至避免换能单元的辐照损伤, 并追求更为高效、系统的换能单元材料选取与结构设计。最后, 需要综合考虑放射性同位素电池工作环境、放射源与换能单元等方面因素的协调统一。

2 放射性同位素电池的研究进展

通过对比不同换能方式下放射性同位素电池的

表1 常用的部分放射性同位素主要性质^[3~5,20,28,31,32]

Table 1 Properties of primary candidate radioisotopes^[3~5,20,28,31,32]

放射性同位素	射线类型	平均能量 (MeV)	半衰期 (a)	单位活度质量 (g/mCi)	单位体积活度 (mCi/cm ³)	比功率 (W/g)	备注
²¹⁰ Po	α	5.41×10^0	3.79×10^{-1}	2.20×10^{-1}	7.80×10^{-1}	1.41×10^2	伴有弱 γ
²³⁸ Pu	α	5.59×10^0	8.77×10^1	5.81×10^1	3.38×10^{-3}	5.50×10^{-1}	—
²⁴² Cm	α	6.22×10^0	4.46×10^{-1}	3.00×10^1	4.60×10^{-1}	1.21×10^2	伴有弱 γ 和X
²⁴⁴ Cm	α	5.90×10^0	1.81×10^1	1.24×10^1	7.98×10^{-3}	2.80×10^0	伴有弱 γ 和X
⁶³ Ni	β	1.74×10^{-2}	1.00×10^2	1.76×10^{-5}	5.06×10^{-7}	5.87×10^{-3}	—
⁹⁰ Sr	β	2.00×10^{-1}	2.88×10^1	7.25×10^{-6}	8.93×10^{-4}	9.30×10^{-1}	产物伴有强 β
¹³⁷ Cs	β	1.95×10^{-1}	3.00×10^1	1.15×10^1	8.70×10^{-2}	4.20×10^{-1}	伴有弱 γ
¹⁴⁴ Ce	β	8.10×10^{-2}	6.80×10^{-1}	3.10×10^{-1}	3.25×10^0	2.56×10^1	伴有弱 γ
¹⁴⁷ Pm	β	6.20×10^{-2}	2.67×10^0	1.08×10^0	1.70×10^{-1}	3.30×10^{-1}	伴有弱 β 和 γ

换能效率高与输出功率大小,可将目前研究的放射性同位素电池的换能方式分为静态型热电式、辐射伏特效应、动态换能方式、压电换能机制与特殊换能机理五部分,如图1所示放射性同位素电池换能方式分布图。下面对这五部分换能方式下放射性同位素电池的原理、研究进展、目前存在的不足及未来的发展趋势分别进行详细介绍。

2.1 静态型热电式同位素电池

静态型热电式同位素电池的基本原理是将放射性同位素发生衰变释放出的射线进行直接收集,或基于Seebeck效应、热致发光效应、热电子发射现象,通过换能器件将其转化为电能形式输出^[4]。静态型热电式同位素电池的换能方式主要包括温差热电式、碱金属热电转换方式(alkali metal thermal to electric conversion, AMTEC)^[37]、同位素热致光伏效应(RTPV)^[38]、直接收集方式(direct charge)^[39]和同位素热离子发射机制(radioisotope thermionic emission generators, RTIGs)^[40],其中以温差热电式为换能方式的放射性同位素温差发电机(RTG)的研发最为成熟^[41]。

1954年, Jordan和Birden^[42]首次公开了热电式同位素电池,该电池采用²¹⁰Po为放射源,碲化铋为热电偶材料,测得了电池的能量转换效率为0.2%。此后,国内外学者从放射源加载方式、热电偶材料与换能单元设计、模块化组合等方面对静态型热电式同位

素电池进行了研究。20世纪中叶,以同位素温差发电机(RTG)为代表的静态型热电式同位素电池普遍采用金属²³⁸Pu为放射源,并被广泛应用于航天探测^[4,22]。然而,由于金属²³⁸Pu熔点低、自发衰变导致晶体结构疲劳,在高温工作条件下物理性能变差,降低了同位素电池的服役寿命。随着材料科学与制备工艺的发展,²³⁸PuO₂微球、²³⁸PuO₂陶瓷与²³⁸PuO₂-Mo陶瓷以其高熔点、辐照稳定、与金属互熔以及容易制备等特点而作为静态型热电式同位素电池的新一代放射源并被广泛应用至今^[22,29,31]。2006年,中国原子能科学研究院联合协作单位研制了百毫瓦级钚-238同位素电池^[43],实验测得电池安全性能达标,输出性能稳定。2008年, Sandia国家实验室Whalen等人^[34]采用²³⁸PuO₂为放射源,碲化铋为热电材料,将组配成的22个马车车轮形部件(11个p-n结热电偶)作为换能组件(图2),对小型化热电偶阵列同位素电池电学输出参数进行了数值模拟与实验测试。数值模拟结果显示,电池输出电功率1.4 mW,功率密度329 μW/cm³,输出电压362 mV;实验结果表明,电池的功率密度为105 μW/cm³,接近数值模拟结果的1/3。同年, Freiburg大学Huesgen课题组^[44]设计了多类型平台装配式的热电偶阵列同位素电池,该电池将热电偶装配在具有高集成密度晶片的表面,利用高导热系数器件将放射源发生衰变产生的热量导入垂直于垫片表面的热流通道,单个热电偶通过金属条同热源相连接以实现电能输出。仿真结果显示,电池上部接近95%

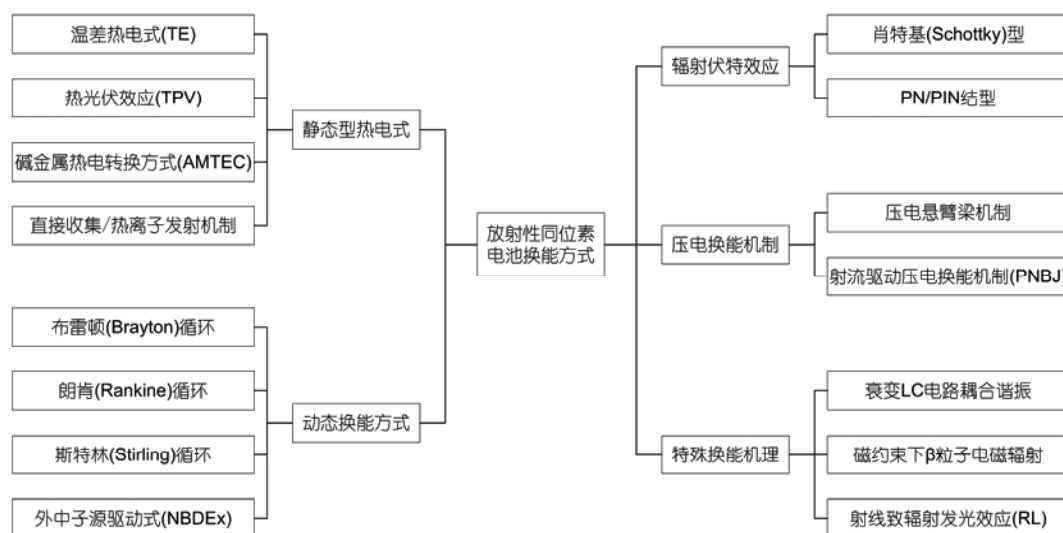


图1 放射性同位素电池换能方式分布图

Figure 1 Energy conversion distribution graph of radioisotope batteries

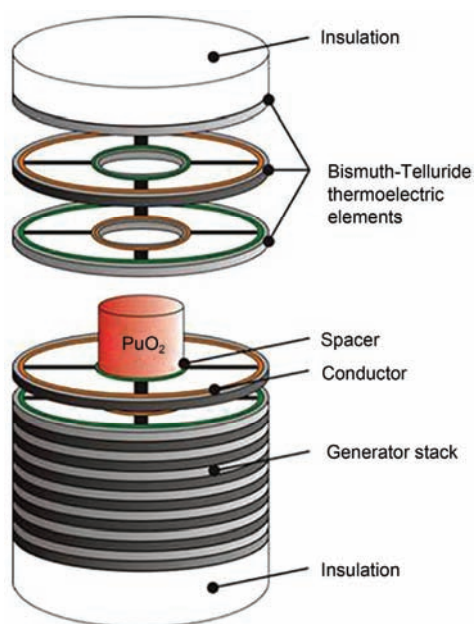


图2 (网络版彩色)微型化RTG概念设计图^[34]

Figure 2 (Color online) Conceptual design of miniature RTG^[34]

的整体温差沉积在两个热电偶之间,并由实验测得单个热电偶的线性输出电压为 $76.08 \mu\text{V/K}$ 。在模块化组合方面,华侨大学林比宏课题组^[45]对热离子-温差混合发电模块进行了优化研究,该小组应用非平衡热力学理论,建立了热离子-半导体温差热电混合发电模块(图3),并结合理论计算与数值模拟结果给出了具体混合发电模块的输出功率、效率、热离子发电模块的功函数和电流密度、半导体温差热电模块的电流和负载等重要性能参数的优化区域,实现了能源的梯级利用,上述结果为其他热离子发电模块的设计提供了理论借鉴。2012年,Leicester大学Williams等人^[46]将输出功率相差较大的RTG与RHU (radioisotope heater unit)相结合设计了输出功率合适的RTHU (Radioisotope thermoelectric and heating unit),其可用于深空探测与行星表面大气探测领域。2015年,Cambridge大学Arias和Parks^[47]对静电感应被用于提升同位素热源的功率方面进行了研究,并设计了一种静电感应式同位素增强器,其在 β 放射源作用下可产生10%的额外输出功率,因此该装置可用于仪器供暖、热电发生器输出电能、提高RTG的能量转换效率与太空探索。

目前,温差式同位素电池(RTG)的研发在美国已日趋成熟,其已经开始了先进同位素发电体系APRS (advanced radioisotope power system)^[27]与MMRTG开

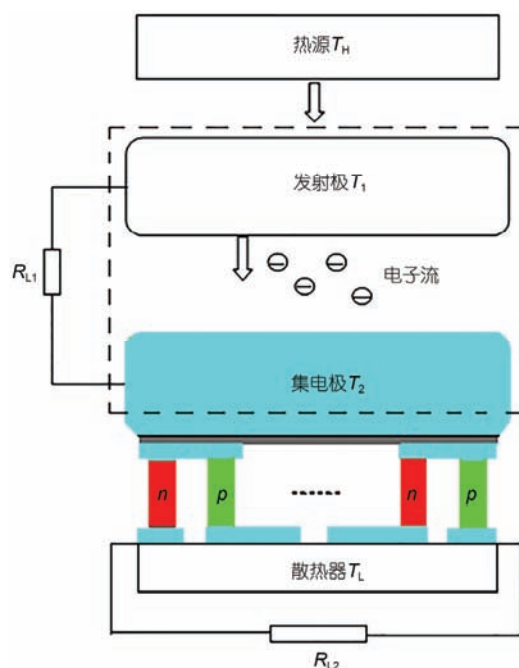


图3 (网络版彩色)热离子-温差混合发电模块原理图^[45]

Figure 3 (Color online) Schematic diagram of thermionic-thermoelectric hybrid power generation device^[45]

发计划^[48~50]。然而,静态型热电式同位素电池局限于传统热电材料热电优值 ZT 较小,电池结构漏热较大,使得电池能量转换效率较低。未来新型热电材料的研发与多结构换能单元的组配有望进一步提升静态型热电式同位素电池的换能效率与输出功率。

2.2 辐射伏特效应同位素电池

辐射伏特效应同位素电池(radiation voltaic isotope batteries, RVIB)的基本特征是利用放射性同位素发生衰变释放出的射线来轰击半导体材料使其内部产生大量电子空穴对,电子空穴对在半导体材料内建电场的作用下实现分离,并通过外接电路将电能输出^[4,51]。因此,辐射伏特效应同位素电池可以实现小型化与紧凑化,并在以IC和MEMS为基础的微系统领域有着潜在的应用价值^[2,4]。

辐射伏特效应同位素电池的研究最早可以追溯到20世纪50年代。1953年,Rappaport^[11]首次公开了基于 β 粒子轰击p-n结产生电子伏特效应设计的发电机即辐射伏特效应同位素电池,该电池以50 mCi的 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 为放射源,以Si型p-n结为换能元件,实验测得了电池最大开路电压为250 mV,短路电流为 2×10^{-5} A,能量转换效率为0.2%。然而,局限于半导体

材料与换能器件制备工艺发展滞后, 辐射伏特效应同位素电池未能取得显著的研究成果. 近年来, 随着MEMS的应用日趋广泛, 其对于能源需求的微型、稳定、集中等特点, 大力推动了辐射伏特效应同位素电池的研发. 一方面, 基于肖特基(接触电势差)易于控制制备、性能稳定等特点来实现辐射伏特效应同位素电池能量转换效率与工作稳定性的提高. 2008年, Pittsburgh大学Liu等人^[52]分别利用Cu和Pt与Sc的接触电势差, 制备了无定形硅肖特基器件, 并加载氟化铀进行了研究, 最高获得了开路电压为0.5 V, 短路电流密度为2.7 nA/cm², 最大功率为0.4 nW, 电流收集率为40%. 2011年, 西北工业大学Qiao等人^[53]采用⁶³Ni为放射源、4H-SiC为半导体材料, 基于MEMS设计了肖特基型 β 伏特电池, 得到的开路电压为0.27 V, 短路电流密度25.57 nA/cm², 最大输出功率密度4.08 nW/cm², 转换效率为1.01%. 2014年, 北京大学Chang等人^[54]设计了一种基于本征p型半导体单壁碳纳米管(semiconductive single-walled carbon nanotubes, s-SWCNTs)的微型核电池(图4), 该电池以⁶³Ni为放射源, 将Au和Ti组成的不对称电极对放置于s-SWCNTs上并形成欧姆接触, 以此得到了电池开路电压为26 mV, 短路电流密度为2.19 nA/cm², 能量转换效率为5.2%.

另一方面, 第三代宽禁带半导体作为换能单元材料的应用促进了辐射伏特效应同位素电池电学输出性能的提升. 2011年, 中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所Lu等人^[15]采用GaN作为 β 辐射伏特电池的换能材料, ⁶³Ni为放射源设计了GaN型 β 辐射伏特电池(Gallium Nitride Schottky betavoltaic nuclear batteries, GNBB). 实验测得GNBB的短路电流密度为1.2 nA/cm², 开路电压为0.1 V, 能量转换效率仅为0.32%, 电荷收集效率达到29%. 此外, SiC因具有耐辐射性能优异、热膨胀系数小、导热系数高、化学性能稳定、电子输运性能良好等特点而被广泛地应用于新型电源器件^[55,56]. Chandrashekar等人^[57]最先对SiC辐射伏特效应同位素电池进行了研究, 该小组采用⁶³Ni为放射源, 4H-SiC为p-n结制作了 β 电池, 并得到了6%的能量转换效率和12 nW/cm²的功率密度. 近年来, 由于³H具有更为低廉的价格(约3.5美元/居里, 为⁶³Ni(约4000美元/居里)的千分之一), 其结合SiC为换能材料制成的“Nano Tritium™ Battery”在City Labs公司^[2]已投入产业化, 其可实现10%的转换

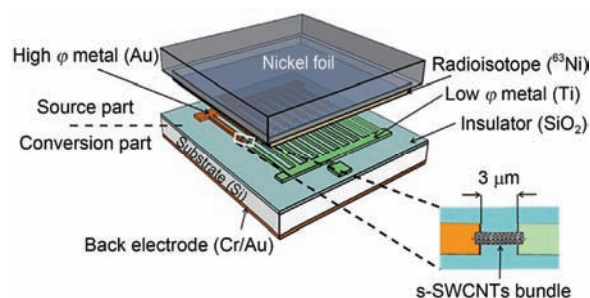


图4 (网络版彩色)s-SWCNTs微型核电池三维结构示意图^[54]

Figure 4 (Color online) A three-dimension schematic view of the single-walled carbon nanotubes (SWCNTs) betavoltaic (BV) microcell^[54]

效率, 40~840 nW的电学输出功率.

目前, 辐射伏特同位素电池换能材料与结构设计方面的研究已取得较为显著的成效, 中国工程物理研究院核物理与化学研究所罗顺忠课题组^[58,59]分别对氚电池、肖特基型 β 电池的辐照损伤方面也进行了新的研究. 但是, 辐射伏特效应同位素电池所存在的射线辐照下半导体退化现象不可避免, 很大程度上缩短了电池的服役寿命. 在基于将液态半导体用于³⁵S肖特基型RVIB研究的基础上^[16,60], 2014年, Missouri大学Kwon课题组^[61]报道了一种水性核电池. 该水性核电池以⁹⁰Sr/⁹⁰Y为放射源, KOH水溶液为水基材料, Pt金属薄膜包覆于TiO₂纳米多孔半导体上形成金属-半导体结实现对水的分解. 实验结果表明, 在电池电压为-0.9 V时, 输出功率密度达到75.02 μ W/cm². 由于水性核电池的水基材料在 β 射线作用下可以不断产生自由基并且能够作为射线屏蔽材料吸收 β 射线动能(图5), 其有效避免半导体材料辐照退化现象, 为新一代辐照化学电池输出能量的收集与提升提供了借鉴之处.

2.3 动态换能方式同位素电池

动态换能方式同位素电池具有输出功率稳定、换能效率高的特点, 它是利用放射性同位素发生衰变产生的热量加热管道中的流体运动并推动热机或涡轮机工作来实现电能输出的装置, 其换能方式主要包括斯特林(Stirling)循环、布雷顿(Brayton)循环和朗肯(Rankine)循环, 国内外研究较多的为斯特林循环和布雷顿循环^[25,62]. 由于动态换能方式同位素电池的输出热功率相对较高, 其对核燃料的选择有着特殊的要求. ²³⁸Pu因具有较长的半衰期(88.7年)、较高的功率密度、较纯的自发衰变射线而被用作动态换能

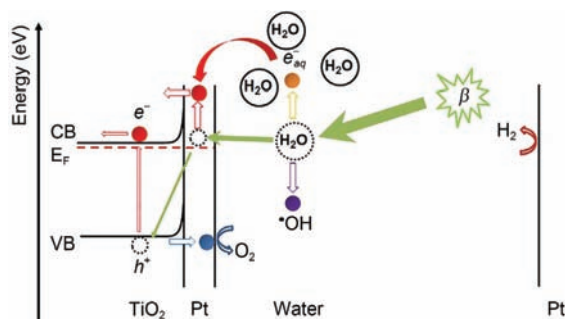


图5 (网络版彩色)水基材料分解出自由基的原理图^[61]

Figure 5 (Color online) Mechanism of the plasmon-assisted radiolytic water splitter^[61]

方式同位素电池的优选燃料。2005年, Zagarola课题组^[62,63]基于空间制冷机技术, 采用同位素热源、涡轮机、压缩机、复位器、交流发电机等部件设计了布雷顿循环同位素发电系统。该系统具有安全、长寿命、无需维护、可靠性强、振动幅度小的特点, 其能量转换效率高达21%, 可稳定工作14年。2011年, 美国国家航空航天局(national aeronautics and space administration, NASA)Glenn 研究中心 Lewandowski 和 Schreiber^[64]对 ASRG(图6)工程单元性能测试的结果进行了概述, 并对用于太空条件下 ASRG 的设计运行策略进行了阐释, 以使得 ASRG 更好地用于长时间的深空探测供能。

目前, 对于动态换能方式同位素电池的研究主要得益于核反应堆向核电池转化的模型设计与基于传统动态热电发电系统(斯特林循环、布雷顿循环、朗肯循环)发电机理的革新。2014年, 西安交通大学 Wang 和 He^[65]采用次临界裂变模块与同位素中子源, 基于加速器驱动次临界反应堆(accelerator driven subcritical reactor, ADS)原理对动态换能方式同位素

电池进行了研究, 并提出了一种外中子源驱动式核电池(nuclear battery driven by external neutron source, NBDEx)(图7)。该方案以²⁵²Cf为放射源, 用MCNP软件模拟了电池的功率影响因素, 结果表明, NBDEx的功率与功率密度是温差式同位素电池(GPHS-RTG)的6倍, 且NBDEx具有很好的安全性, 其使用寿命主要取决于同位素中子源的半衰期, 可正常工作2.96年。

2.4 压电换能机制同位素电池

压电换能机制同位素电池的换能方式主要包括压电悬臂梁机制与射流驱动压电换能机制。压电悬臂梁机制同位素电池通过采用压电悬臂梁对放射性同位素薄膜发生衰变释放出的带电粒子进行收集, 由于压电悬臂梁与同位素薄膜的带电极性相反, 使得压电悬臂梁在库仑引力的作用下弯曲形变直至与同位素薄膜相接触释放电荷, 以此往复循环实现电能的输出。2002年, Cornell大学Lal课题组^[5,20]首次公开了一种被放射性同位素衰变释放出的带电粒子所驱动的静电悬臂梁同位素发电机, 即压电悬臂梁机制同位素电池, 该电池采用Cu片为悬臂梁, 1 mCi的⁶³Ni为放射源, 测得电池总的输出能量为0.91 nJ, 能量密度为 5.0×10^{-2} J/cm², 能量转换效率 4×10^{-6} 。单一方面的压电悬臂梁收集放射性同位素衰变释放出带电粒子能量的转换效率很低, 因此Lal课题组^[5,19]对其进行了改进并于2008年设计了通过压电悬臂梁往复机电转换器对 β 同位素放射源衰变释放出粒子的动能与电能收集转换输出电能的高换能效率装置(图8)。该方案采用9 mCi的⁶³Ni为放射源, 基于压电悬臂梁换能器对 β 射线粒子的动能与电能进行收集, 实现了750 μ W的电学输出功率和5%的能量转换效

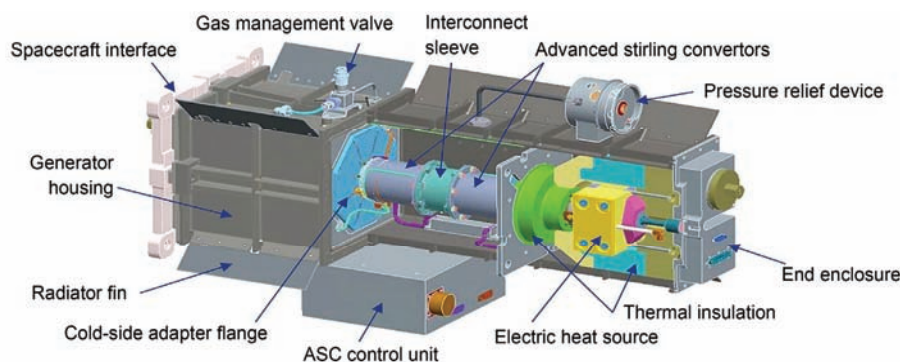


图6 (网络版彩色)ASRG EU切面模型图^[64]

Figure 6 (Color online) ASRG EU cutaway model^[64]

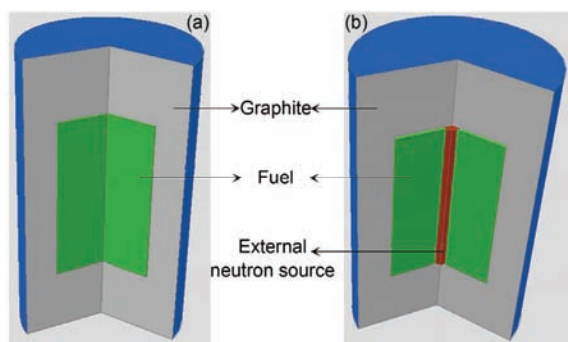


图7 (网络版彩色) 电池模型图. (a) GPHS; (b) 外中子源核电池^[65]

Figure 7 (Color online) The detailed schematics of fuel cell model. (a) GPHS; (b) nuclear battery fuel cell^[65]

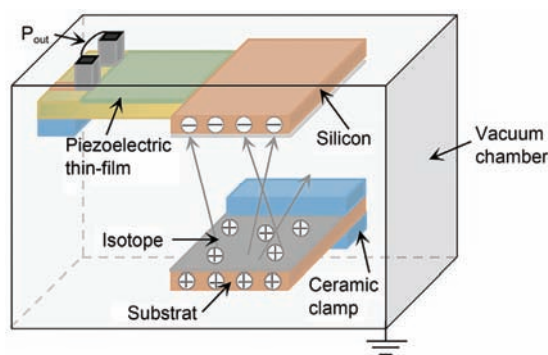


图8 (网络版彩色) 压电悬臂梁机制同位素电池原理图^[20]

Figure 8 (Color online) Schematic of piezoelectric cantilever mode radioisotope battery^[20]

率, 它可用于无线电传感器微系统正常工作100年. 此外, 2015年, 兰州大学Li课题组^[66]通过对布雷顿循环同位素发电系统进行优化设计得到了一种新型压电换能机制同位素电池, 即射流驱动压电换能机制同位素电池(图9). 该设计方案利用放射性同位素热源衰变加热惰性气体在耐高温管道中形成高速气流并穿越活动式尖端喷嘴作用于压电材料形变实现电能输出, 气流被散热器降温并经过单向气动阀回流到热源腔再次加热形成闭式循环. 由于采用压电材料替代涡轮机实现能量转换, 其有效突破布雷顿循环同位素发电系统所存在的高速运转部件润滑困难、高速转动产生的惯性矢量影响系统稳定性等关键技术瓶颈. 此外, 采用空气压力驱动压电材料工作的技术方案成熟可靠^[67], 特别是在布雷顿循环同位素发电系统管道气路中应用压电材料, 其对气流稳定性要求较高、而对气流流量大小要求较低(同压电材料共振频率匹配即可), 很大程度上减小了同位素放射源的加载活度, 降低了同位素电池的设计成本, 同时

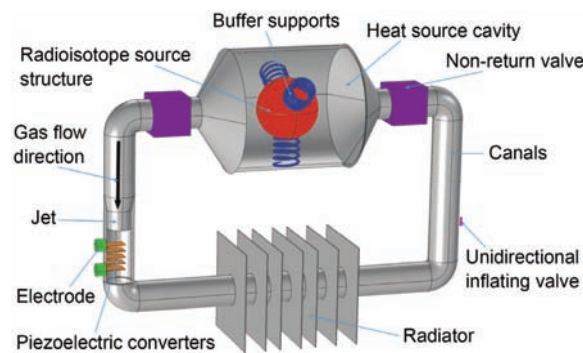


图9 (网络版彩色) 射流驱动压电换能机制同位素电池原理图^[66]

Figure 9 (Color online) Schematic of piezoelectric nuclear battery driven the jet-flow^[66]

电池的微型化、集成性甚至应用于MEMS成为可能.

目前, 压电换能机制同位素电池以其绿色环保、稳定高效的换能特点已成为放射性同位素电池的重要研究方向, 但此种换能方式依赖于压电材料的正压电效应, 而压电材料高电压、低电流的交变电学输出特性决定了电池输出功率较低, 适用性较差. 未来通过结合纳米压电材料与自驱动式纳米发电机的研发, 并将压电材料的正压电效应与同位素电池的传统换能方式相结合设计新型的换能方式^[68,69], 有望推动压电换能机制同位素电池的快速发展.

2.5 特殊换能机理同位素电池

特殊换能机理同位素电池的换能方式主要包括衰变LC电路耦合谐振、磁约束下 β 粒子电磁辐射、射线致辐射发光(荧光)效应等方面. 1987年, 美国纽赛尔公司的Polu^[70]公开了衰变LC电路耦合谐振同位素电池, 它是一种直接将放射性衰变能量转换为电能的装置. 该装置将电感器通过多次绕组的方式固定于 α 放射源芯体的外围, 电感器、电容器、与电力变压器一次绕组串联连接的线圈三者相连组成闭合回路, 放射源衰变产生的能量用于维持和加强高Q值的LC谐振电路振荡并通过变压器为用电器供电. 磁约束下 β 粒子电磁辐射同位素电池最早由Robert Ginell提出^[4], 它是一种通过调制被限制于封闭空间的带电粒子云密度而提供电力的装置, 即将 β 放射源置于内表面镀有良导体的空心球中央, 球体置于一块永磁体的两极之间, 由放射源发生衰变释放出的高速带电粒子不断切割磁场实现带电粒子动能向电能的转化, 但此类电池发电效率较低, 输出功率量级很小, 实用性不强. 射线致辐射发光(荧光)效应同位素电池

是利用放射源发生衰变释放出的射线来照射荧光材料使其发光,进而通过光电转换实现电能输出的装置。

近年来,南京航空航天大学Tang课题组^[71,72]从发光剂材料($\text{ZnS}:\text{Cu}$, $\text{ZnS}:\text{Ag}$, $\text{SrAl}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{2+}$, Dy^{2+} , $\text{Y}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Eu}$)、 β 放射源(^{63}Ni , ^{147}Pm)、电池结构设计(平面型、V型沟槽)、温度因素等方面对射线致辐射发光同位素电池进行了系统地研究,实现了电池的模型设计与电学输出参数测试。2015年,吉林大学Lu等人^[73]公开了一种磁分离电子式核电池,该核电池将放射源衰变产生的载能粒子(α 粒子或 β 粒子)作用于金属板电离出自由电子和正离子,通过外加磁场使得金属板中的自由电子偏转出被另一金属板收集,由于两金属板间绝缘,因此可实现自由电子与正离子的分离与收集,外接负载即可形成稳定的直流电流。

目前,以射线致辐射发光(荧光)效应同位素电池为代表的特殊换能机理同位素电池取得了一系列研究突破,但多次换能使得电池能量转化效率较低,实用性不强^[4]。通过对射线致发光材料与新型换能方式的研究,在推动特殊换能机理同位素电池电学输出性能提升的同时,也有助于促进放射性同位素电池换能方式的多样性与实用化。

3 讨论与展望

放射性同位素电池,从本质而言,都是利用放射性同位素衰变产生的射线作用于换能器件输出电能,但不同换能方式的放射性同位素电池,具有其自身特征。静态型热电式同位素电池通过对射线进行直接收集或将射线作用于热转换材料(热电材料、热致发光材料、低逸出功材料)实现能量转换,其换能方式主要集中在RTG, RTPV, AMTEC, RTIGs和直接收集等方面。静态型热电式同位素电池具有输出功率范围大、输出电压高、工作稳定的特点。对于静态型热电式同位素电池的发展,其需要突破的共同技术瓶颈主要包括3个方面:超高活度同位素放射源的制备加载与防护、导热材料的辐照损伤、电池组件的抗震加固。此外,对于具体换能方式静态型热电式同位素电池,其存在不同的尚需解决的问题。例如,RTG所存在的换能材料热效率较低与电池能量损耗较大、RTPV中的热致发光与光电单元匹配性设计、直接收集式同位素电池的高真空环境维持与韧致辐射屏蔽等问题。鉴于上述原因,静态型热电式同位素电池的能量转化效率不足10%^[74],下一步静态型热

电式同位素电池的研究将从半导体能带理论、量子理论、机械应力等方面计算设计优化转换效率更高的纳米材料与超晶格材料^[75,76],以及采用梯级换能方式(RTG和RTPV, RTG和RTIGs),有望进一步提高电池输出功率与换能效率。

辐射伏特效应同位素电池基于射线轰击半导体材料产生电子空穴对并在内建电场下进行分离,通过外加电路而直接输出电能。辐射伏特效应同位素电池具有几何尺寸小、易于集成、运行安静、直流输出的特点。实验上通常采用厚度为微米级的 α 或 β 放射性同位素薄膜,以“三明治”夹层结构做成级联式电源,并对其进行内灌装与外封装固化处理。作为辐射伏特效应同位素电池的核心组件,换能材料的选用与换能单元的设计对于电池电学输出性能优化起着决定性作用。一方面,辐射伏特效应同位素电池的转换效率同半导体材料的禁带宽度有着显著的依赖关系(图10)^[51],选用第三代宽禁带、第四代超宽禁带等耐辐射性能半导体对于提高辐射伏特效应同位素电池转换效率具有重要意义,其已在学术界与工业界得到了广泛关注^[2,4,15,28,51,53~55,57]。然而,半导体材料的长期辐照损伤依旧不可忽视,通过采用液态半导体或水基溶液作为换能材料^[16,60,61],减小射线辐照损伤、提高转换效率已成为辐射伏特效应同位素电池的新型研究方向。另一方面,换能单元的结构参数设计对辐射伏特效应同位素电池的电学输出性能影响很大。选择合适的半导体掺杂浓度、增大射线轰击半导体材料面积(多维深孔结构设计)、结合辐射伏特理

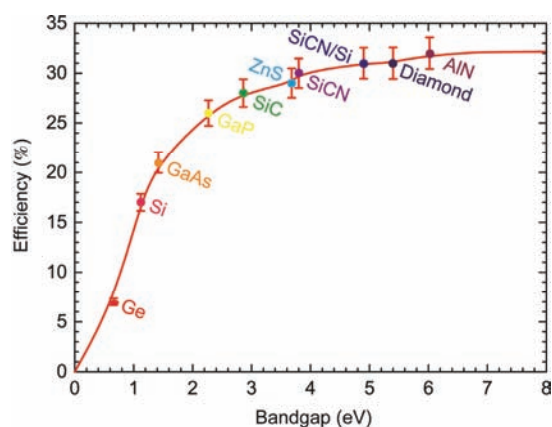


图 10 (网络版彩色)半导体材料禁带宽度对辐射伏特效率的限制曲线^[51]

Figure 10 (Color online) Limiting betavoltaic efficiency versus semiconductor bandgap^[51]

论设计新型的换能结构有助于进一步提升辐射伏特效应同位素电池的转换效率. 此外, 采用微纳电子集成工艺、电源管理技术、换能方式耦合(辐射伏特/辐射荧光)将有效扩大辐射伏特效应同位素电池在超低功耗电子器件、IC和MEMS等方面的应用.

动态换能方式同位素电池的设计原理同反应堆蒸汽发电机理相似,旨在利用同位素热源加热惰性流体在闭合管路中高速运动以驱动换能器件工作输出电能。动态换能方式同位素电池除了具有能量转换效率高、输出功率密度大、输出功率稳定性高的特点之外,其热源部件亦可作为推进装置加热流体获得巨大动能。动态换能方式同位素电池的发展主要存在3个技术瓶颈:涡轮机或热机的高速运转部件润滑困难与高速转动产生的惯性矢量影响系统稳定性、高活度同位素放射源的制备加载与防护、管道部件的装配与密封。下一步动态换能方式同位素电池的研究重点将是结合新型反应堆堆型、新型换能方式、乏燃料衰变热利用等方面,从小型化、紧凑性方向提高电池的电学输出性能与工作稳定性,发展成为航天航海领域实用性较强的模块化小型电源。

压电换能机制同位素电池利用压电材料的正压电效应来实现放射源衰变能量向电能的间接转换。与RIB相比,绿色经济、集成高效、交变电学输出是

压电换能机制同位素电池的突出特点. 实现压电换能机制同位素电池能量高效转化的关键之处在于高机电耦合系数、合适共振频率、抗老化压电材料的选择与制备, 以及微纳电子产品加工工艺的应用, 这将有助于推动压电换能机制同位素电池走向微型化、集成化. 随着纳米压电材料与器件的发展, 压电换能机制同位素电池的微型化与集成化成为可能, 并将在 MEMS、低功耗电子器件方面得到重要应用. 此外, 学界还对衰变 LC 电路耦合谐振^[70]、磁约束下 β 粒子电磁辐射^[77]、射线致辐射发光^[78,79] 等换能机理下放射性同位素电池进行了研究, 实现了特殊换能机理下电池的结构设计与性能测试.

半个世纪以来,得益于放射源制备与加载技术、换能材料发展、换能结构设计、新型换能方式的提出以及多个应用领域的需求,不同换能方式下放射性同位素电池的能量转换效率均已得到大幅提升^[4,6,7,10~12,19,20,27,40,42,47,51,62,64,72,80~100],特别是静态型热电式同位素电池中的RTG与辐射伏特效应同位素电池的转换效率均已接近10%^[4,47,80];同时,动态换能方式同位素电池的转换效率已高于23%^[64],成为高效率同位素电池,如图11所示不同类型放射性同位素电池的转换效率.目前,传统型温差式同位素电池的研发与制备在美国已日趋完备,并在深空探测

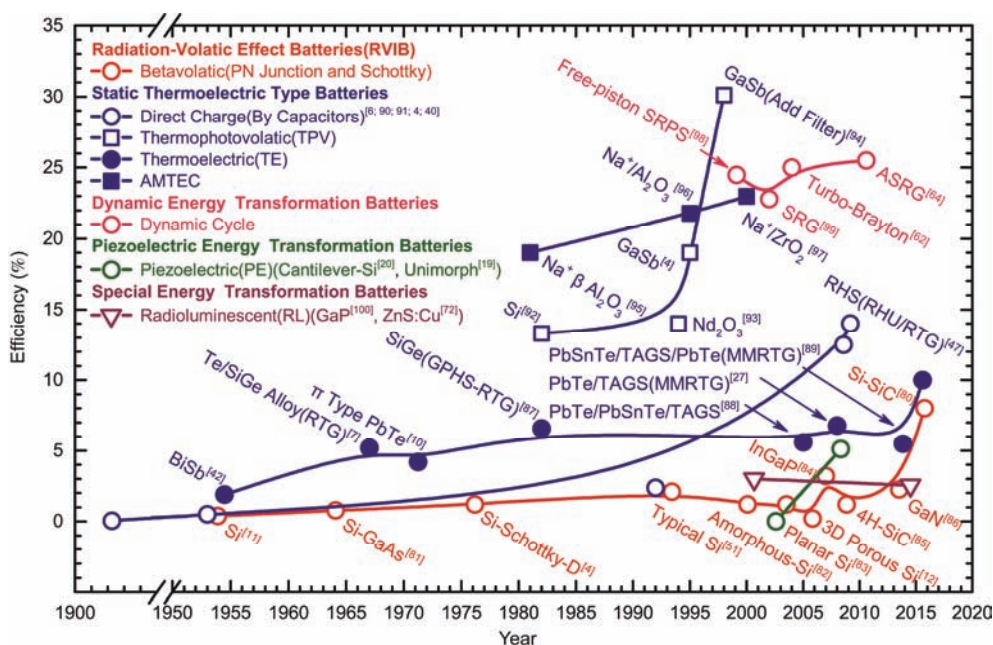


图 11 (网络版彩色) 不同类型放射性同位素电池的转换效率

Figure 11 (Color online) Power conversion efficiencies (PCEs) of different radioisotope batteries

领域得到了重要应用; 辐射伏特效应同位素电池的换能单元辐照损伤与电学输出性能温度效应得到了学术界的具体关注, 其集成工艺与产品研制在工业界已初具规模. 下一步放射性同位素电池的发展趋势将主要集中在4个方面: 更好的安全性与稳定性; 更高的换能效率与功率匹配; 电池结构的微纳集成与模块组配; 放射性同位素电池燃料的生产制备. 放射性同位素电池的安全性、稳定性保证是其研究和应用的前提. 此外, 放射性同位素电池的工业化发展之路畅通与否, 很大程度上取决于外部负载(MEMS、低功耗/超低功耗器件、探测器等)同电池功率匹配性差异大小和放射性同位素电池燃料生产成本的高低. 一方面, 结合纳米发电机、射流发电机等新型高效供电设备对纳米换能材料、换能器件进行级联重组, 结合电池结构多导向优化设计将进一步提升放射性同位素电池的电学输出性能. 另一方面, 不断提高放射性同位素电池换能组件集成的微纳加工工艺与换能材料表征的皮米测试水平, 同时有效装配电源管理器件, 最大化满足目标负载的参数匹配. 此外, 由核电站运行所产生乏燃料中 ^{237}Np , ^{90}Sr 的提纯与处理,

加之Th元素的开发与利用, 为放射性同位素电池燃料的生产制备提供了巨大契机, 其将促进放射性同位素电池的实验研究与实际应用. 基于此, 放射性同位素电池燃料的发展是大势所趋, 其将成为放射性同位素电池广泛性应用进程的直接推力.

放眼未来, 无论放射性同位素电池如何发展, 高环境适应性、高工作稳定性、高功率匹配性是其相比于其他传统型电池被用作能源装置的首选要素, 而能量转换效率高达20%~40%的动态型热电转换机制同位素电池局限于高速运转部件润滑困难、高速转动产生的惯性矢量影响系统稳定性等关键技术瓶颈未能得以有效突破. 通过采用新型发电机理, 尤其是基于管道绒毛式纳米线压电材料与纳米热电材料耦合阵列的动态型放射性同位素电池, 除了实现一种新型放射性同位素电池之外, 其依靠管道射流冲击压电材料发生形变、依靠管道热流作用热电材料工作输出电能, 电池同位素放射源加载活度低、能量转换效率高、输出功率稳定、技术加工可靠、微纳集成可行, 为未来放射性同位素电池的发展提供了先行导向与借鉴之处, 从而推动先进微纳核能发电系统的进步.

致谢 本文得到了中国工程物理研究院核物理与化学研究所罗顺忠、刘业兵教授等人的帮助, 在此表示衷心感谢.

参考文献

- Bradley D. Water-based batteries go nuclear. *Mater Today*, 2014, 17: 424–425
- Olsen L C, Cabauy P, Elkind B J. Betavoltaic power sources. *Phys Today*, 2012, 65: 35–38
- Liang D Y, Du G T, Si H Z, et al. Radioisotope Batteries (in Chinese). Beijing: Atomic Energy Press, 1978 [梁代骅, 杜光天, 斯厚智, 等. 放射性同位素电池. 北京: 原子能出版社, 1978]
- Bower K E, Barbanel Y A, Shreter Y G, et al. Polymers, Phosphors, and Voltaics for Radioisotope Microbatteries. Boca Raton: CRC Press LLC, 2002
- Duggirala R, Lal A, Radhakrishnan S. Radioisotope Thin-film Powered Microsystems. Berlin: Springer, 2010
- Moseley H G J. The attainment of high potentials by the use of radium. *Proc R Soc London Ser A*, 1913, 88: 471–476
- Tonelli A D, Secord T C. Auxiliary power generating system for a large space laboratory. *Procgr Astronaut Aeronaut*, 1966, 16: 299–322
- Richard R F, Earl J W. US space mission using radioisotope power system. *Nucl News*, 1999, 42: 26–35
- Pustovalov A A. Nuclear thermoelectric power units in Russia, USA and European space agency research programs. In: *Proceedings of ICT'97. XVI International Conference on Thermoelectrics*. Dresden: IEEE, 1997. 559–562
- Dai Y Z. A ^{210}Po radioisotope power generator (in Chinese). *Nucl Tech*, 1980, 5: 8–13 [黛莽祖. ^{210}Po 放射性同位素电池. 核技术, 1980, 5: 8–13]
- Rappaport P. The electron-voltaic effect in p-n junctions induced by beta-particle bombardment. *Phys Rev*, 1953, 93: 246–247
- Sun W, Kherani N P, Hirschman K D, et al. A three-dimensional porous silicon p-n diode for betavoltaics and photovoltaics. *Adv Mater*, 2005, 17: 1230–1233
- Clarkson J P, Sun W, Hirschman K D, et al. Betavoltaic and photovoltaic energy conversion in three-dimensional macroporous silicon diodes. *Phys Status Solid A*, 2007, 204: 1536–1540
- Liu B J, Chen K P, Kherani N P, et al. Power-scaling performance of a three-dimensional tritium betavoltaic diode. *Appl Phys Lett*, 2009,

95: 2331121

- 15 Lu M, Zhang G G, Fu K, et al. Gallium Nitride Schottky betavoltaic nuclear batteries. *Energy Convers Manage*, 2011, 52: 1955–1958
- 16 Wacharasindhu T, Nullmeyer B R, Kwon J W, et al. Mechanisms leading to losses in conventional betavoltaics and evolution: Utilizing composite semiconductor with infused radioisotope for efficiency improvement. *J Microelectromech Syst*, 2014, 23: 56–65
- 17 Schock A, Mulcunda M, Or C, et al. Design, analysis, and optimization of a radioisotope thermophotovoltaic (RTPV) generator, and its applicability to an illustrative space mission. *Acta Astronaut*, 1995, 37: 21–57
- 18 Schock A, Mukunda M, Or C, et al. Analysis, optimization, and assessment of radioisotope thermophotovoltaic system design for an illustrative space mission. *AIP Conf Publ*, 1995, 321: 331–356
- 19 Duggirala R, Li H, Lal A. High efficiency β radioisotope energy conversion using reciprocating electromechanical converters with integrated betavoltaics. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 1541041
- 20 Li H, Lal A, Blanchard J, et al. Self-reciprocating radioisotope-powered cantilever. *J Appl Phys*, 2002, 92: 1122–1127
- 21 Zhou Y, Zhang S X, Li G P. A radioisotope battery based on the mechanism of dynamic thermoelectric conversion under PZT. PRC Patent, CN205302969U, 2016-06-08
- 22 Cai S Y, He S Y. Retrospection of development for radioisotope power systems in space and its prospect of application in new century (in Chinese). *Chin J Nucl Sci Tech*, 2004, 24: 97–104 [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. *核科学与工程*, 2004, 24: 97–104]
- 23 Ritz F, Peterson C E. Multi-mission radioisotope thermoelectric generator (MMRTG) program overview. In: *Proceedings of Aerospace Conference. Big Sky: IEEE*, 2004
- 24 Wong W A. Status of NASA's advanced radioisotope power conversion technology research and development. Technical Report. Albuquerque: NASA, 2006. NASA/TM-2006-214243
- 25 Wood J G, Carroll C. Advanced Stirling convertor program update. AIAA Paper No. 2004–5522, 2004
- 26 Wood J G, Carroll C, Penswick L B. Advanced 80 W_e Stirling convertor development progress. *AIP Conf Proc*, 2005, 746: 688–697
- 27 Lange R G, Carroll W P. Review of recent advances of radioisotope power systems. *Energy Convers Manage*, 2008, 49: 393–401
- 28 Luo S Z, Wang G Q, Zhang H M. Advance in radiation-voltaic isotope battery (in Chinese). *J Isotopes*, 2011, 24: 1–11 [罗顺忠, 王关全, 张华明. 辐射伏特效应同位素电池研究进展. *同位素*, 2011, 24: 1–11]
- 29 Hao S C, Lu Z M, Fu X M, et al. Nuclear battery materials and application of nuclear batteries (in Chinese). *Nucl Phys Rev*, 2006, 23: 353–358 [郝少昌, 卢振明, 符晓铭, 等. 核电池材料及核电池的应用. *原子核物理评论*, 2006, 23: 353–358]
- 30 Wang J H, Mulligan P, Brillson L, et al. Review of using gallium nitride for ionizing radiation detection. *Appl Phys Rev*, 2015, 2: 323–331
- 31 Ma C Z. Radioisotope Handbook (in Chinese). Beijing: Science Press, 1979. 296–317 [马崇智. 放射性同位素手册. 北京: 科学出版社, 1979. 296–317]
- 32 Xiao L. Radioisotope Technology (in Chinese). Beijing: Atomic Energy Press, 2000 [肖伦. 放射性同位素技术. 北京: 原子能出版社, 2000]
- 33 Yang Y Q, Wang G Q, Hu R, et al. Preliminary design of an energy-conversion unit of radiation-voltaic battery (in Chinese). *Nucl Tech*, 2010, 33: 197–200 [杨玉青, 王关全, 胡睿, 等. 辐射伏特效应同位素电池换能单元的初步设计. *核技术*, 2010, 33: 197–200]
- 34 Whalen S A, Apblett C A, Aselage T L. Improving power density and efficiency of miniature radioisotopic thermoelectric generators. *J Power Sources*, 2008, 180: 657–663
- 35 Gad-el-Hak M. *The MEMS Handbook*. Boca Raton: CRC Press LLC, 2001. 5–6
- 36 Meindl J D. Low power microelectronics: Retrospect and prospect. *Proc IEEE*, 1995, 83: 619–635
- 37 Cole T. Thermoelectric energy conversion with solid electrolytes. *Science*, 1983, 221: 915–920
- 38 Chubb D L. *Fundamentals of Thermophotovoltaic Energy Conversion*. London: Elsevier Science, 2007. 17–20
- 39 Kavetskiy A, Yakubova G, Lin Q, et al. Promethium-147 capacitor. *Appl Radiat Isot*, 2009, 67: 1057–1062
- 40 Duzik A J, Choi S H. Investigation of miniaturized radioisotope thermionic power generation for general use. *SPIE Smart Structures and Materials+Nondestructive Evaluation and Health Monitoring*. In: *Proceedings of International Society for Optics and Photonics. Las Vegas: SPIE*, 2016
- 41 Anderson D J, Wong W A, Tuttle K L. An overview and status of NASA's radioisotope power conversion technology NRA. AIAA Paper No. 2005-5713, 2005
- 42 Jordan K C, Birden J H. Thermal Batteries Using Polonium-210. *MLM-984*, 1954, 2: 1–17
- 43 Luo Z F, Cai S Y, He S Z, et al. Preparing of hundred scale ²³⁸Pu radioisotope batteries (in Chinese). *Annu Rep China Inst Atomic Energy*, 2006, (00): 261 [罗志福, 蔡善钰, 何舜尧, 等. 百毫瓦级钚-238 放射性同位素电池的研制. *中国原子能科学研究院年报*, 2006, (00): 261]

- 44 Huesgen T, Wolias P, Kockmann N. Design and fabrication of MEMS thermoelectric generators with high temperature efficiency. *Sens Actuators A*, 2008, 145: 423–429
- 45 Liao T J, Yang Z M, Lin B H. Investigation on the optimal performance of the thermionic-thermoelectric hybrid power generation device (in Chinese). *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2014, 44: 125–133 [廖天军, 杨智敏, 林比宏. 热离子-温差热电混合发电模块的优化性能研究. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2014, 44: 125–133]
- 46 Williams H R, Ambrosi R M, Bannister N P, et al. A conceptual spacecraft radioisotope thermoelectric and heating unit (RTHU). *Int J Energy Res*, 2012, 36: 1192–1200
- 47 Arias F J, Parks T G. Self-induced electrostatic-boosted radioisotope heat sources. *Prog Nucl Energy*, 2015, 85: 291–296
- 48 Ryschkewitsch M. NASA space flight program and project management handbook. Technical Report. Washington: NASA, 2014. NASA/SP-2014-3705
- 49 Felicione F S. Mass properties testing and evaluation for the multi-mission radioisotope thermoelectric generator. Technical Report. Idaho National Laboratory: Thermoelectric Generators NESDPS Office of Nuclear Energy Space and Defense Power Systems, 2009
- 50 Hammel T E, Bennett R, Otting W, et al. Multi-mission radioisotope thermoelectric generator (MMRTG) and performance prediction model. In: *Proceedings of International Energy Conversion Engineering Conference*. Denver: AIAA, 2009. 2–5
- 51 Olsen L C. Review of betavoltaic energy conversion. In: *Proceedings of the 12th Space Photovoltaic Research and Technology Conference*. Washington: NASA, 1993
- 52 Liu B J, Chen K P, Kherani N P, et al. Betavoltaics using scandium tritide and contact potential difference. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 083511
- 53 Qiao D Y, Chen X J, Ren Y, et al. A micro nuclear battery based on SiC Schottky barrier diode. *J Microelectromech Syst*, 2011, 20: 685–690
- 54 Chang Y Y, Chen C C, Liu P, et al. A betavoltaic microcell based on Au/s-SWCNTs/Ti Schottky junction. *Sens Actuators A*, 2014, 215: 17–21
- 55 Bhatnagar M, Baliga B J. Comparison of 6H-SiC, 3C-SiC, and Si for power devices. *IEEE T Electron Dev*, 1993, 40: 645–655
- 56 Nakamura D, Gunjishima I, Yamaguchi S, et al. Ultrahigh-quality silicon carbide single crystals. *Nature*, 2004, 430: 1009–1012
- 57 Chandrashekhar M V S, Thomas C I, Li H, et al. Demonstration of a 4H SiC betavoltaic cell. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 0335061
- 58 Lei Y S, Yang Y Q, Liu Y B, et al. The radiation damage of crystalline silicon PN diode in tritium beta-voltaic battery. *Appl Radiat Isot*, 2014, 90: 165–169
- 59 Liu Y B, Hu R, Yang Y Q, et al. Investigation on a radiation tolerant betavoltaic battery based on Schottky barrier diode. *Appl Radiat Isot*, 2012, 70: 438–441
- 60 Wacharasindhu T, Kwon J W, Meier D E, et al. Radioisotope microbattery based on liquid semiconductor. *Appl Phys Lett*, 2009, 95: 4103
- 61 Kim B H, Kwon J W. Plasmon-assisted radiolytic energy conversion in aqueous solutions. *Sci Rep*, 2014, 4: 52491
- 62 Zagarola M V, Izenson M G, Breedlove J J, et al. An advanced Turbo-Brayton converter for radioisotope power systems. *AIP Conf Proc*, 2005, 746: 632–640
- 63 Breedlove J J, Zagarola M V, Nellis G F, et al. Life and reliability characteristics of turbo-Brayton coolers. In: *Cryocoolers 11*. Berlin: Springer, 2002. 489–497
- 64 Lewandowski E J, Schreiber J G. Testing to characterize the advanced Stirling radioisotope generator engineering unit. In: *Proceedings of the Eighth International Energy Conversion Engineering Conference*. Nashville, 2010
- 65 Wang S B, He C H. Design and analysis of nuclear battery driven by the external neutron source. *Ann Nucl Energy*, 2014, 72: 455–460
- 66 Zhou Y, Zhang S X, Li G P. A kind of dynamic radioisotope batteries based on PZT and its preparing method. *PRC Patent*, CN105427913A, 2016-03-29
- 67 Li Z T, Wang Z L. Air/liquid-pressure and heartbeat-driven flexible fiber nanogenerators as a micro/nano-power source or diagnostic sensor. *Adv Mater*, 2011, 23: 84–89
- 68 Han M D, Zhang X S, Liu W, et al. Low-frequency wide-band hybrid energy harvester based on piezoelectric and triboelectric mechanism. *Sci China Tech Sci*, 2013, 56: 1835–1841
- 69 Zhou Y, Zhang S X, Li G P. A kind of composit and dynamic radioisotope batteries based on nano materials and its preparing method. *PRC Patent*, CN105575453A, 2016-05-11
- 70 Polu M B. Direct conversion from radioisotope energy to electric energy device. *PRC Patent*, CN 87103077A, 1987-11-04
- 71 Xu Z H, Tang X B, Hong L, et al. Development of a beta radioluminescence nuclear battery. *Nucl Sci Tech*, 2014, 25: 0406031
- 72 Hong L, Tang X B, Xu Z H, et al. Radioluminescent nuclear batteries with different phosphor layers. *Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B*, 2014, 338: 112–118

- 73 Lu J B, Xu X, Liu Y M. Magnetic separate electric nuclear batteries. PRC Patent, CN105223626A, 2015-11-04
- 74 Tritt T M, Subramanian M A. Thermoelectric materials, phenomena, and applications: A bird's eye view. *MRS Bull*, 2006, 31: 188–198
- 75 Zhang X, Zhao L D. Thermoelectric materials energy conversion between heat and electricity. *J Materiom*, 2015, 1: 92–105
- 76 Chen L D, Xiong Z, Bai S Q. Recent progress of thermoelectric nano-composites (in Chinese). *J Inorg Mater*, 2010, 25: 561–568 [陈立东, 熊震, 柏胜强. 纳米复合热电材料研究进展. *无机材料学报*, 2010, 25: 561–568]
- 77 Wang T S, Zhang B G. States and future trend of the studies of radioisotopic batteries (in Chinese). *J Isot*, 1996, 9: 41–46 [王铁山, 张保国. 同位素电池发电机制的研究与发展. *同位素*, 1996, 9: 41–46]
- 78 Xu Z H, Tang X B, Hong L, et al. Structural effects of ZnS:Cu phosphor layers on beta radioluminescence nuclear battery. *J Radioanal Nucl Chem*, 2014, 303: 2313–2320
- 79 Cress C D, Redino C S, Landi B J, et al. Alpha-particle-induced luminescence of rare-earth-doped Y_2O_3 nanophosphors. *J Solid State Chem*, 2008, 181: 2041–2045
- 80 Sachenko A V, Shkrebti A I, Korkishko R M, et al. Efficiency analysis of betavoltaic elements. *Solid-State Electron*, 2015, 111: 147–152
- 81 Flicker N, Loferski J J, Elleman T S. Construction of a Promethium-147 atomic. *IEEE T Electron Dev*, 1964, 2: 2–8
- 82 Deus S. Tritium-powered betavoltaic cells based on amorphous silicon. In: *Proceedings of Photovoltaic Specialists Conference*. Anchorage: IEEE, 2000. 1246–1249
- 83 Guo H, Lal A. Nanopower betavoltaic microbatteries. In: *Proceedings of 12th International Conference on Transducers, Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems*. IEEE, 2003. 36–39
- 84 Cress C D, Landi B J, Raffaele R P, et al. InGaP alpha voltaic batteries: Synthesis, modeling, and radiation tolerance. *J Appl Phys*, 2006, 100: 114519
- 85 Qiao D Y, Yuan J Z, Gao P, et al. Demonstration of a 4H SiC betavoltaic nuclear battery based on Schottky. *Chin Phys Lett*, 2008, 35: 3798–3800
- 86 San H S, Yao S L, Wang X, et al. Design and simulation of GaN based Schottky betavoltaic nuclear micro-battery. *Appl Radiat Isot*, 2013, 80: 17–22
- 87 Kelly C E, Ambrose G R. Testing of the GPHS electrically heated thermoelectric converter. In: *Proceedings of Intersociety Energy Conversion Engineering Conference*. Los Angeles, 1982
- 88 Drinker R W, Reddy A, Heshmatpour B, et al. Advanced superlattice BiTe-PbTe/TAGS milliwatt radioisotope power system. *AIP Conf Proc*, 2005, 746: 410–420
- 89 Bechtel R. Multi-mission radioisotope thermoelectric generator (MMRTG). *NASA Facts*, 2013
- 90 Linder E G, Christian S M. The use of radioactive material for the generation of high voltage. *J Appl Phys*, 1952, 23: 1213–1216
- 91 Yakubova G N. Nuclear Batteries with Tritium and Promethium-147 Radioactive Sources. Dissertation for Doctoral Degree. Illinois: University of Illinois at Urbana-Champaign, 2010
- 92 Horne W E, Day A C. Improved thermophotovoltaic power system. In: *Proceedings of 17th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference*. Los Angeles: Institute of Electrical and Electronics Engineers, 1982. 119–124
- 93 Chubb D L, Flood D J. High efficiency direct thermal to electric energy conversion form radioisotope decay using selective emitters and spectrally. Technical Report. Cleveland: NASA, 1994. NASA-TM-106227
- 94 Horne W E, Morgan M D, Saban S B. Performance tuned radioisotope thermophotovoltaic space power system. *Space technology and applications international forum-1998*. AIP Publish, 1998, 420: 1385–1393
- 95 Hunt T K, Weber N, Cole T. High efficiency thermoelectric conversion with β'' -alumina electrolytes, the sodium heat engine. *Solid State Ionics*, 1981, 5: 263–265
- 96 Onda K, Masuda T, Nagata S, et al. Cycle analyses of thermoelectric power generation and heat pumps using the β'' -alumina electrolyte. *J Power Sources*, 1995, 55: 231–236
- 97 Lodhi M A K, Daloglu A. Performance parameters of material studies for AMTEC cell. *J Power Sources*, 2000, 85: 203–211
- 98 White M A, Qiu S, Olan R W, et al. Technology demonstration of a free-piston Stirling advanced radioisotope space power system. *Space technology and applications international forum-1999*. AIP Publish, 1999, 458: 1413–1419
- 99 Cockfield R D, Chan T S. Stirling radioisotope generator for Mars surface and deep space missions. In: *Proceedings of 37th Intersociety Energy Conversion Engineering Conference*. Washington: IEEE, 2004. 134–139
- 100 Andreev V M, Kevetsky A G, Kaiinovskiy V S, et al. Tritium-powered betacells based on $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. In: *Proceedings of Photovoltaic Specialists Conference*. Anchorage: IEEE, 2000. 1253–1256

Summary for “放射性同位素电池的研究进展”

A review of radioisotope batteries

ZHOU Yi¹, ZHANG ShiXu^{1,2} & LI GongPing^{1,2*}

¹ School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China;

² Institute of Nuclear Energy and Nuclear Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China

* Corresponding author, E-mail: ligp@lzu.edu.cn

As an important kind of energy source, radioisotope batteries are attracting more and more academic researchers and people from industry due to the high power density, long lifetime (equal to half life of the radioisotope source), outstanding reliability, without maintenance, miniaturization and wide application compared with traditional dry batteries, chemical batteries, fuel batteries and solar batteries. Based on the optimization of functional materials and energy conversion types, radioisotope batteries have been developed for more than 15 species since the first β battery invented by Henry Mosley in 1913. This review describes historical background and development, limitations of key techniques in radioisotope batteries. The radioisotope source loading methods and thermocouple materials of radioisotope thermoelectric generator (RTG), the semiconductor materials and energy conversion units of radiation voltaic isotope batteries (RVIB) are analysed in detail. After an introduction of the basic principles and design requirements of radioisotope batteries, we discuss the technical proposals of different energy conversions for radioisotope batteries. Then, the most recent experimental results for several configurations and experimental set-ups of radioisotope batteries are introduced detailedly, including static thermoelectric type radioisotope batteries, radiation voltaic effect radioisotope batteries, dynamic energy transformation radioisotope batteries and piezoelectric energy transformation radioisotope batteries. The figure for PCEs (Power Conversion Efficiencies) in different radioisotope batteries from 1913 to 2015 is first demonstrated in the end, which illustrates the PCEs of RTG, RVIB are close to 10% and DIPS (Dynamic Isotope Power System) is higher than 23%. Thus, the PCEs of radioisotope batteries will increase effectively if some various high efficient energy conversion types like RTG, RTPV (Radioisotope thermophotovoltaic) and RTIGs (Radioisotope Thermionic emission Generators) are assembled. In the future, four main trends for radioisotope batteries include the better safety and reliability, the higher output power and power matching, the micro/nano integration and module combination of battery structure, the production of radioisotope source. We believe that the research and application of radioisotope batteries will be much attractive with the break through of these aspects made by academic and industrial world.

radioisotope batteries, static thermoelectric type, radiation-voltaic effect, dynamic energy transformation, piezoelectric energy transformation

doi: 10.1360/N972016-00793