

## <sup>238</sup>Pu 熱源のカロリメトリー

Calorimetric Measurement of <sup>238</sup>Pu Heat Source

佐藤 乙丸\*

Otomaru SATO

### 1. はじめに

一般に使用されている放射能測定法は、放出される放射線のエネルギーよりむしろ壊変事象の数を数えるものが大部分である。一方放射性物質は単位質量当りきわめて大きいエネルギーを持つため、エネルギー源として利用されつつあり、そのエネルギー量の測定が問題となってきている。

カロリメトリーは放射性物質から放出されるエネルギーを熱量として測定する方法で、数mCi以上の比較的放射能の大きい放射性物質の放射能の絶対測定や半減期の測定および放射線の吸収線量の測定などにも応用されている。

今回、心臓ペースメーカの電源として諸外国において、すでに千例近く人体内に植え込まれている、プルトニウム-238を熱源とするアイソトープ発電機の発熱量を測定する機会を得たので、その実験方法、結果および計算熱量について述べる。

### 2. 測定原理<sup>1)</sup>

二つの物体間の熱流束  $dQ/dt$  は両者の温度差  $T_c - T_e$  と熱伝達係数  $k$  に比例する。すなわち、

$$dQ/dt = -k(T_c - T_e)$$

ここで、 $T_c$ 、 $T_e$  はそれぞれカロリメータおよびその周囲の温度で、 $k$  は両者の距離、媒質および表面の形などによってきまる定数である。

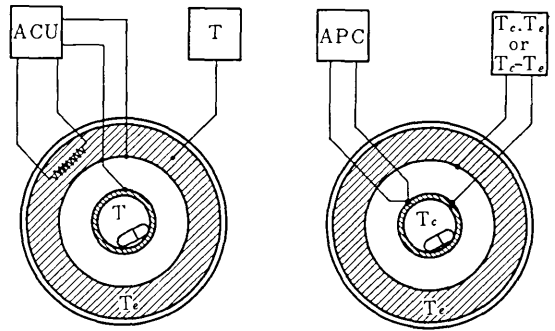
熱量測定の原理は図1のように二つに分けられる。  
aは断熱方式と称され、常に  $k=0$  すなわち  $T_e=T_c$  に保つことにより熱伝達をなくして測定する。このときのカロリメータの温度は、発熱量  $P$  が一定であれば時間  $t$  と共に直線的に上昇する。すなわち、

$$T_c(t) = T_c(0) + Pt/C$$

熱容量  $C$  も物質によって一定であるから、 $P$  は

$$P = C \times dT_c/dt$$

bは等温方式のもので、 $T_e$  が一定のときは感度を増すために  $k$  をできるだけ小さくする。いま発熱量の一定な試料をカロリメータに挿入すると図2のように温



(a) 断熱式

(b) 等温式

ACU 断熱制御装置  
T 精密温度計  
APC ペルチェ冷却調整  
Tc カロリメータ温度  
Te 周囲の温度

図1 カロリメータの原理

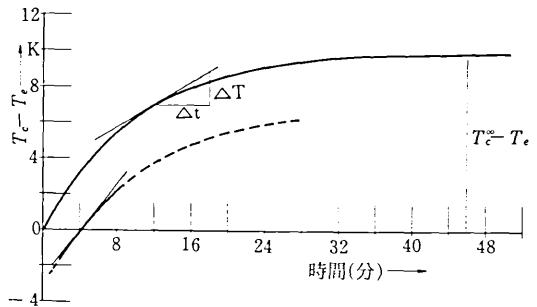


図2 等温式カロリメータの温度の上昇

度が上昇し、一定時間後に定常状態に達して  $P$  に比例した温度差を示す。このときの比例定数  $K$  は電気ヒータの発熱量を基準にして求められる。したがって次式から  $P$  を求めることができる。

\* 東京大学生産技術研究所 第4部

研究速報

$$P = K(T_c - T_e)$$

もし、時定数  $\tau = k/C$  が大きすぎ定常状態に達しにくい場合には、測定前にカロリメータ容器を冷やしておく、 $T_c = T_e$  (図2の縦軸0の位置) における曲線の傾斜と熱容量  $C$  から  $P$  が求められる。

$$P = C(dT/dt)_{T_c = T_e}$$

また、図2の曲線上の任意の点で接線を作ると、その傾斜および熱容量  $C$  と熱伝達係数  $k$  とから

$$P = C(dT/dt) + k(T_c - T_e)$$

実際の測定に際しては、a, b両方式ともに差動型で測定するが多い。すなわち、全く同一なカロリメータを2ヶ使用し、一方を電熱で発熱させ試料の発熱量と平衡させるなどして  $P$  を求める方式である。この方式は測定誤差を減らし得るという利点も持っている。

3. 測定方法と結果

発熱試料は外径5.5φ×12mmの  $Ta-w$  合金内に密封

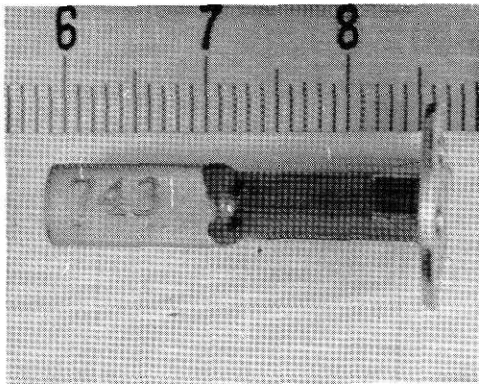


図3 プルトニウム-238熱源

されている $^{238}Pu$ 熱源で、図3の写真の数字(743)が記入されている部分である。仕様書によれば $^{238}Pu^{16}O_2$  0.18gで、その体積を試算すると0.016cm<sup>3</sup>にすぎない。熱量測定に先だち、 $\gamma$ 線による外部漏洩線量率を求めた。1"φ×1"の  $N_2K(Tl)$  シンチレーションサーベイメータの先端から10cmの距離に熱源容器を横にして置いたとき0.15mR/hであった。中性子線による漏洩線量率<sup>2)</sup>は $\gamma$ 線による値とほぼ同じ程度と考えられている。

測定に使用したカロリメータは、株式会社東京理工製の微小熱量計TCC-65型で、差動型等温式のものである。すなわち、この装置のA, B2組のカロリメータ容器を室温(20.8°C)に保ち、Aの容器を基準とし、Bの容器内に熱源を入れ、A, Bの温度差を自動記録した。

図4のように約1.5時間で記録計の指示は一定となるときに熱源を取り出し、A, B容器が平衡に達した後、B容器に50cal/Hおよび100cal/Hの熱量を加えながらA, B容器の温度差を記録した。図4から明らかなよ

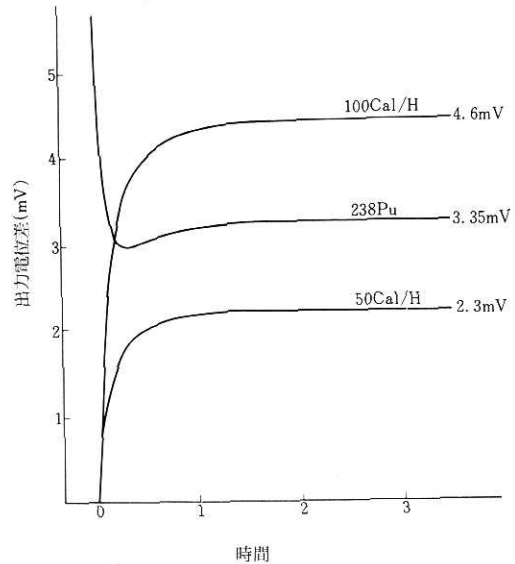


図4  $^{238}Pu$ 熱源の発熱量測定結果

うに、 $^{238}Pu$ 熱源の発熱量は50cal/Hと100cal/Hの間である。発熱量  $P$  は記録計の指示が一定となったときの熱電対の出力電圧に比例するので、図4から  $P = 84.5 \text{ mW}_{th}$  となる。

4.  $^{238}Pu$ の壊変熱量

$^{238}Pu$ は約5.4MeVの $\alpha$ 線を放射して壊変し、同時に低エネルギーの $\gamma$ 線がわずかに放射される。表1は主要な $\alpha$ 線、 $\gamma$ 線およびその変換電子のエネルギー(MeV)と一壊変あたりの放射率を%で示したものである。

表1  $^{238}Pu$ からの主な放射線のエネルギーと放射率

放射線	エネルギー (MeV)	放射率 (%)
$\alpha$ 線	5.499	72%
	5.456	28%
	5.358	0.09%
	5.214	0.005%
$\gamma$ 線	43.49	0.038% (28%変換電子)
	99.8	$8 \times 10^{-3}$ % ( $8.8 \times 10^{-2}$ %変換電子)
	153.1	$10 \times 10^{-3}$ %

研究速報

エネルギーの異なる  $n$  ケの  $\alpha$  線のそれぞれのエネルギーおよび放射率を  $E_i, h_i$ , また  $m$  ケの  $\gamma$  線のエネルギーと放射率を  $E_j, k_j$  とし, 特に  $\gamma$  線の場合カロリメータ容器を透過する成分があることを考慮して吸収される成分の割合を  $f_j$  であらわすと, カロリメータ容器内に吸収される  $^{238}\text{Pu}$  壊変あたりの平均エネルギー  $\bar{E}$  は, 次式から求められる. ただし  $M$  はこの場合 238 である.

$$\bar{E} = \frac{M}{M-4} \sum_{i=1}^n h_i E_i + \sum_{j=1}^m f_j k_j E_j$$

右辺第一項は  $\alpha$  線の平均エネルギーで, 表 1 から求めると 5.5859 MeV となる. 第二項は  $\gamma$  線の平均エネルギーであるが, 3 種の  $\gamma$  線のうち, 問題となるのは 43.5 KeV および 99.8 KeV の変換電子である. 変換電子はすべて吸収されるから  $f_j = 1$  として計算すると 0.01227 MeV となる. したがって  $\bar{E} = 5.58715 \text{ MeV}$

$^{238}\text{Pu}$  の半減期を 87.77 年<sup>4)</sup> とすると比放射能は 17.11 Ci/g となる. 一方 ACi の  $^{238}\text{Pu}$  の発熱量は 5.92 A $\bar{E}$  (mW<sub>th</sub>) となるから, 33.076 mW<sub>th</sub>/Ci. 両者から  $^{238}\text{Pu}$  の比熱出力 (W<sub>th</sub>/g) は 0.566 W<sub>th</sub>/g となる.

さて熱源には医用純度の酸化プルトニウム ( $\text{Pu}^{2+}\text{O}_2$ ) が 180 mg 封入されており,  $\text{Pu}$  の組成は表 2 のとおりである. これから  $^{238}\text{Pu}$  の質量を求めると 143.435 mg となる. したがって, 熱源中の  $^{238}\text{Pu}$  による発熱量は

$$566 \times 143.435 = 81.195 \text{ mW}_{th}$$

表 2 ベースメーカーの  $^{238}\text{Pu}$  電池に使用される  $\text{Pu}$  組成

$\text{Pu}$ 同位体	含有率 wt %
236	$< 3 \times 10^{-5}$
238	90.4
239	9.0
240	0.6
241	0.03
242	$< 0.01$

$^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  もそれぞれ 9.0, 0.6, 0.03 wt% ずつ含まれているので,  $^{238}\text{Pu}$  と同様に発熱量を計算すると総計で 0.06 mW<sub>th</sub> となる.  $^{238}\text{Pu}$  は  $3 \times 10^{-5}$  wt% 以下

しか含まれていないが, 半減期 2.85 年で  $\alpha$  壊変し,  $^{232}\text{U}$  (半減期 72 年) を経て  $^{228}\text{Tl}$ , すなわちトリウム壊変系列になる. したがって 5.3~6.7 MeV の  $\alpha$  壊変を 7 回繰返して安定な  $^{208}\text{Pb}$  となる. このため  $^{238}\text{Pu}$  壊変系列からの発熱量は次第に増大するが, 計算によれば 1  $\mu\text{W}_{th}$  を越すことはない.

### 5. 検 討

以上を総計すると  $^{238}\text{Pu}$  熱源からの  $\alpha$ ,  $\gamma$  線による発熱量は, 81.26 mW<sub>th</sub> となる. この値は実測値より 3.8% 低い.  $^{238}\text{Pu}$  の半減期を 86.4 年としても 82.55 W<sub>th</sub> にすぎず, 約 2.4% 低い. この理由は  $^{238}\text{Pu}$  熱源中の  $^{238}\text{Pu}^{2+}\text{O}_2$  の質量が 180 mg より若干多かったためと考えられる.

また熱量測定に際し, カロリメータ容器内は空気を入れたままであった. 熱損失の少ない液体を入れ, この中に熱源を浸けて測定すれば, 84.5 mW<sub>th</sub> よりさらに大きい測定値が得られるものと考えられる<sup>5)</sup>

実測値は熱源の仕様書に記載されていた発熱量 (85 mW<sub>th</sub>) より 0.5 mW<sub>th</sub> 低い値となったが, 主として  $^{238}\text{Pu}$  の減衰によるものと考えられる. しかし, 測定時点の 2~3 年前に製造されたものと推定されるだけで, 正確な製造年月日が不明なため, 減衰の補正は行なわなかった. 引きつづき 1, 2 年おきに測定することによって, この間の事情は明らかにすることができよう.

### 6. おわりに

この測定は, 48 年度原子力平和利用委託研究の一環として行なったものであり, 主任研究者堀原一氏をはじめ共同研究に参加した各位の御協力に感謝の意を表す.

(1975 年 6 月 3 日 受理)

#### 文 献

- 1) H. Ramthun; Nuclear Instruments and Methods 112, 265-272(1973)
- 2) L. J. Mullins, et al; Proc. 2nd Int. Symp. on Power from Radioisotopes, OECDNEA, 49-67(1972)
- 3) C. M. Lederer, et al; Tables of Isotopes, 6th Ed. John Wiley & Sons, 432(1972)
- 4) K. C. Jordan; J. Inorg. Nucl. Chem. 34, (1), 25-28(1972)
- 5) C. Musikas, et al; B. I. S. T. Comm. l'Energie Atomique, NO. 181, 61-66(1973)