



ラドン娘核種連続測定器の開発

古田 定昭 伊藤 公雄 石森 有

人形峠事業所安全管理課

資料番号：93-5

Development of Continuous Monitor for Radon Progeny

Sadaaki Furuta Kimio Ito Yu Ishimori
(Health and Safety Section, Ningyo-toge Works)

大気中のラドンに起因する被ばくは、自然放射線による被ばくの半分以上を占めるといわれている。被ばくに直接寄与するのは主にラドンの短半減期の娘核種であり、我が国の基準では娘核種濃度に相当する平衡等価ラドン濃度として規制されている。ラドン娘核種濃度は、気象条件等により変動することが知られており、連続測定によりその変動を把握することは、娘核種の挙動を推定し、被ばく評価を行う上で非常に重要である。そのため、野外環境レベルの娘核種の個別濃度を、連続ロール紙、真空容器内での α 線スペクトル測定により精度良く連続測定する装置を開発した。

1. はじめに

自然放射線による被ばくのうち、大気中のラドンに起因する内部被ばくが、半分以上を占めると評価されている¹⁾。このような状況の中で、特に米国、英国、ドイツ、スウェーデン等では、地質的な条件に加えて、気密性の良い居住環境によりラドンが高濃度となり、国家プロジェクトとして測定を実施し、かつ被ばく低減のための啓蒙活動も行われている²⁾。近年、我が国でも屋内ラドンの全国調査³⁾が実施されつつあり、国民の関心も急速に高まりつつある。

ラドンは自然界に存在するウラン系列の²²⁶Raが壊変して生成され、表1に示すように²¹⁸Po、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi、²¹⁴Poという短半減期の娘核種を生成する。しかしラドンそのものは希ガスであるため被ばくへの寄与はきわめて小さく、これら短半減期の娘核種の影響が大きなものとなっている。そのためICRP Publication 32⁴⁾では、ラドンガスに対する基準ではなく、娘核種が将来放出する α 線エネルギーで重み付けした娘核種濃度を意味する平衡等価ラドン濃度や、ワーキングレベル(WL)、ポテンシャル α エネルギー等の単位で記載されている。なお、これらの短半減期娘核種は歴史的に、

それぞれRaA、RaB、RaC、RaC'と呼ばれている。

このように、ラドン娘核種濃度は、自然放射線による被ばくに大きく関与するとともに、気象条件等により変動することが知られており、娘核種の挙動を調査し、かつ被ばく量を推定するために、連続測定装置を開発した。なお、本報告ではラドンはウラン系列の²²²Rnを意味する。

2. 測定装置

2.1 開発目標

一般野外環境においてラドン娘核種濃度（平衡

表1 ²²²Rnとその短寿命娘核種⁴⁾

核種	半減期	主な放射線エネルギー(MeV)と強度		
		α	β	γ
²²² Rn	3.823 d	5.49(100%)	—	0.51(0.07%)
↓ α				
²¹⁸ Po(RaA)	3.05 min	6.00(~100%)	0.33(~0.019%)	—
↓ α				
²¹⁴ Pb(RaB)	26.8 min	—	0.65(50%) 0.71(40%) 0.98(6%)	0.295(19%) 0.352(35%)
↓ β				
²¹⁴ Bi(RaC)	19.7 min	5.45(0.012%) 5.51(0.008%)	1.0(23%) 1.51(40%) 3.26(19%)	0.609(47%) 1.12(17%) 1.76(17%)
↓ β				
²¹⁴ Po(RaC')	164 μ s	7.69(100%)	—	0.799(0.014%)
↓ α				

²¹⁸Poと²¹⁴Biからの分岐は、その割合が0.02%と低いため無視できる。

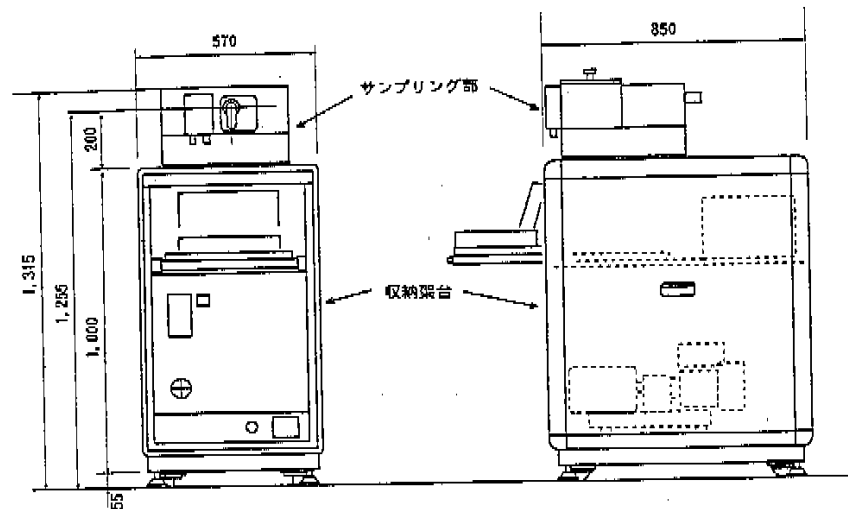


図1 測定装置外観図

等価ラドン濃度)を連続して測定するために、以下のような条件を満足することを、開発の目標とした。

- ① 数Bq/m³程度の一般環境中の低濃度まで測定可能であること
- ② 平衡等価濃度と娘核種個別濃度が精度良く得られること
- ③ 最低1カ月はメンテナンスフリーで測定できること
- ④ 1時間毎の濃度変化が得られること

このため、①の低濃度の測定に関しては空気のサンプリング流量を大きくすること、②の平衡等価濃度と娘核種個別濃度についてはシリコン半導体検出器による真空中でのα線スペクトル測定を行うこと、③と④のメンテナンスフリーで1時間毎の濃度を得ることについては十分な長さを持ったロール式フィルタを用い、1時間毎に捕集面を送って測定することで対応した。

2.2 装置の概要

ラドン娘核種連続測定装置の外観を図1に、そのブロック図を図2に示す。測定装置は、サンプリング部と収納架台から構成されている。

吸気口から吸引された大気中のラドン娘核種は、ロール式フィルタに捕集され、捕集終了後、この捕集面は測定位置まで移動し、Si半導体検出器(SSD)によるα線スペクトル測定が開始される。あらかじめ設定された時間間隔にしたがって3回測定し、各測定毎にマルチチャンネルアナライザ(MCA)による波高分析により、RaAとRaC'

のα線を弁別して計測する。これらの自動測定はノート型パソコンにより制御されるとともに、α線の計数データもハードディスクに保存される。この保存データを解析することにより、ラドン娘核種の個別濃度と平衡等価ラドン濃度が算出できる。

2.3 装置の構成

測定装置は、シャッターにより気密構造にすることができるサンプリング部と収納架台から構成され、サンプリング部には、ロール式フィルタ、サンプリングラインを確保するブランジャー、検出器が図3に示すように収納されている。また、収納架台には、捕集ポンプ、真空ポンプおよびノート型パソコン等が収納されている。

(1) 真空容器

真空容器は、軽量化のためアルミニウム10mm厚で作られており、容器内部にはロール式フィルタやその状態を監視する各種センサーが配置されている。

(2) 検出器

検出器は通常エアモニタに使用され、検出器表面がアルミニウムとワニスでコーティングされているSi半導体型検出器(CAM PIPS型)有効径約50mmを使用した。

(3) ロール式フィルタ

フィルタはメンブランフィルタ(ポアサイズ0.8μm)幅60mm、長さ36mを使用した。本フィルタは5cm毎にラインが印刷されており、光センサーによるスキップ移動を可能としている。

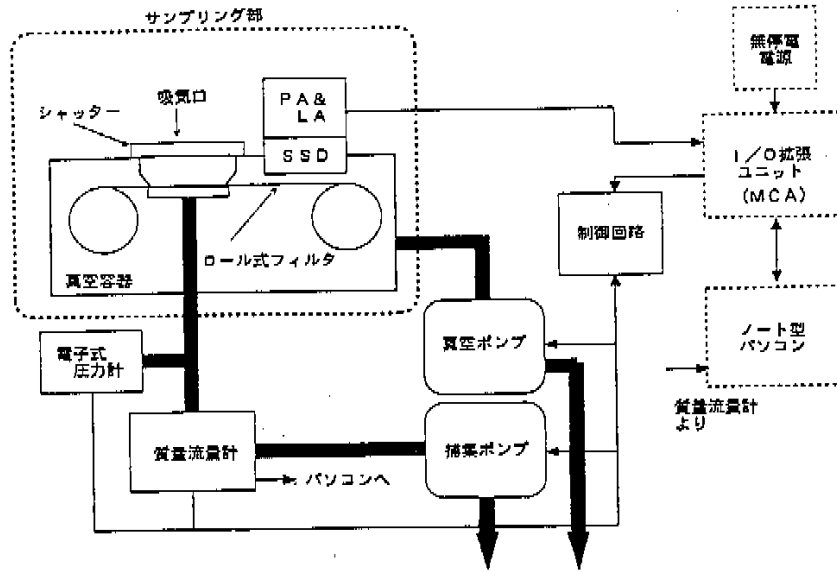


図2 測定装置ブロック図

2.4 自動測定

自動測定の概略フローを図4に示す。測定はブランジャーがフィルタをはきむように吸引口側へ移動し外気をサンプリングする。サンプリング終了後、ブランジャーが離れ、フィルタ捕集面が検出器前面へ移動する。吸引口のシャッターを閉じサンプリング部内を真空 (-700mmHg以下) とし、3回測定を行う。α線スペクトル測定であるため、基本的には2回の計測データでラドン娘核種の個別濃度を得ることができるが、グロスカウントによる3回測定法による計算結果との比較もできるようにした。測定装置ではα線計測データとしてRaAとRaC'のそれぞれの計数値を保存す

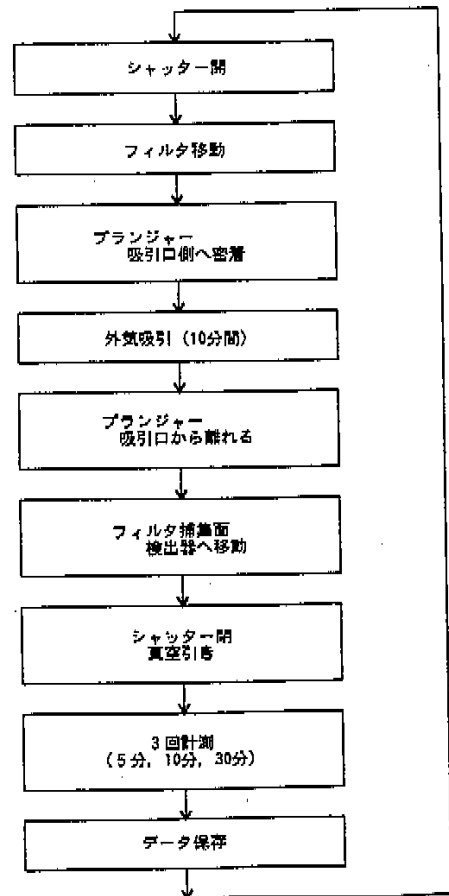


図4 自動測定のフロー

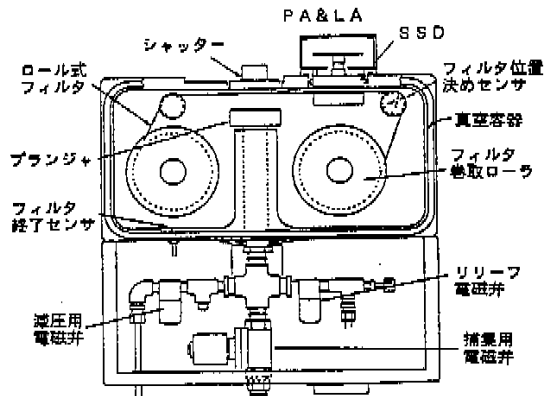


図3 サンプリング部の構造

るのみであり、ラドン娘核種濃度を求めるためには、別途保存データを用いてラドン娘核種濃度を算出する必要がある。

なお、保存データとして放射能計測データの他にエラーマーク、時刻データ（測定日、時間）、流量率データ、計測時間等が記録される。

2.5 娘核種濃度の算出

本装置の測定方法は α 線スペクトルデータによる2回測定法と呼ばれるものを採用している。短半減期のラドン娘核種であるRaA、RaB、RaC、RaC'のうちRaC'は半減期が164 μ 秒と他の核種に比べて極端に短いため、放射平衡を仮定してRaCと同じとして扱い、3核種の濃度を求めた。

数学的には解を求めるために3個のデータが必要であり、2回測定法では1回目のRaAとRaC'の α 線計数値(C_1 , C_2)、2回目のRaC' α 線計数値(C_3)を使用した。なお、RaAの2回目の計数値は、半減期が3.05分と短いため使用しない。

フィルタ法によるラドン娘核種測定の場合、捕集中のフィルタ上のラドン娘核種は次式で表わされる。

$$\frac{dN_1}{dt} = P_1 - \lambda_1 \cdot N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = P_2 + \lambda_1 \cdot N_1 - \lambda_2 \cdot N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt} = P_3 + \lambda_2 \cdot N_2 - \lambda_3 \cdot N_3$$

$$P_i = \eta \cdot q \cdot n_i$$

ここで、

N_i : フィルタ上のRaA、RaB、RaC、($i=1, 2, 3$)の原子数[atoms]

η : フィルタの捕集効率[-]

q : 捕集流量[m³/s]

n_i : 空気中のラドン娘核種 i の濃度[atoms/m³]

λ_i : ラドン娘核種 i の崩壊定数[s⁻¹]

初期条件 $t=0$ で $N_1=N_2=N_3=0$ として捕集終了時の解を求め、さらに、捕集終了後のフィルタ上のラドン娘核種減衰を考慮して1次元連立方程式を解くことにより、ラドン娘核種の空気中濃度

を求めることができる^{5),6),7)}。

3. 試験結果および考察

3.1 真空保持

α 線スペクトル測定は真空中で行うため、測定時間内は真空度が一定に保たなければならない。本装置での測定サイクルは1時間毎であり、サンプリング終了から測定開始まで真空ポンプは1分間作動する。よって、真空ポンプ1分間作動後の、1時間内の真空低下を確認した。その結果、1分間での真空到達度は-735mmHg程度、1時間内の真空度の低下は5mmHg以下であり、後述する α 線スペクトル測定に影響を与えないことが確認できた。

3.2 バックグラウンド

バックグラウンド計数率はRaA、RaC'の各計数エリアとも0.1cpm程度であり、最大で0.133cpmであった。娘核種の各濃度が1Bq/m³の場合、10分間80ℓ/分で捕集後、1分後から5分間計測した時、バックグラウンド0.5カウント程度に対して、RaAの計数は13カウント、RaC'の計数は71カウントが得られる。さらに、その後10分間の待ち時間後30分間計測した時、RaC'の計数は324カウントとなる。したがって各娘核種とも1Bq/m³程度の低濃度の場合でもバックグラウンドと比較して十分測定可能であることが確認された。

3.3 計数効率

フィルタ捕集面と有効面積の等しいウラン標準線源を用いて検出器の計数効率を求めた。結果は32.5%~33.3%であった。モンテカルロ法により幾何学的計数効率を計算したところ32.5% (1×10^6 ヒストリー)で良く一致しており、計数効率は幾何学的効率により決定されていることが確認された。

3.4 エネルギー分解能

²⁴¹Am標準線源による α 線のスペクトルを用いてエネルギー分解能を測定した。真空度が-735mmHgでの半値幅は81.2keVであり、RaAおよびRaC'からの α 線エネルギーがそれぞれ6.00MeV、7.69MeVであることから、両者の弁別には問題のないことを確認した。次に、真空容器内の気圧の違いによるスペクトルの広がりについて、内部の気圧を変化させ、図5に示すように1/10幅(FWTM)を比較した。これより60mmHg以下、すなわち-700mmHg以上の真空度であれば、FWTM

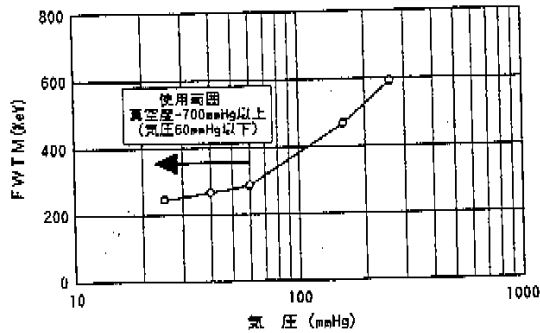


図5 FWTMの気圧依存性

に大きな変化はなく測定上問題のないことが確認できた。

実際のラドン娘核種のスペクトルを測定した結果を図6に示す。真空中での測定でも低エネルギー側にテイルが伸びていることがわかる。これはラドン娘核種と同時に捕集される大気中の塵が、吸収体となっていること等が考えられる。しかし、RaAエリアとRaCエリアを十分に余裕を持たせることで、各エリアのクロストークは無視できるレベルと確認できた。

3.5 3回測定法との比較

ラドン娘核種の基本的な測定法として、娘核種捕集後の減衰、生成中における3回の全 α 線測定データより算出する手法がある。

本測定装置で測定された1日のデータを基に、スペクトルデータによる2回測定法と、RaA、RaCの計数を合計した全 α 線データによる3回測定法の結果を図7に比較した。これより平衡等価濃度とRaB、RaCの濃度は良く一致しているものの、RaAでやや差が見られる。これは、2回法ではスペクトルデータからRaA濃度が単独

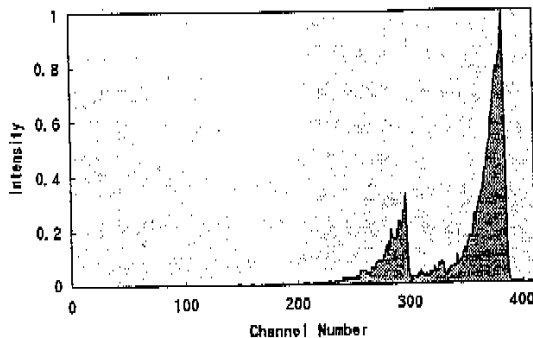


図6 ラドン娘核種スペクトル測定の例

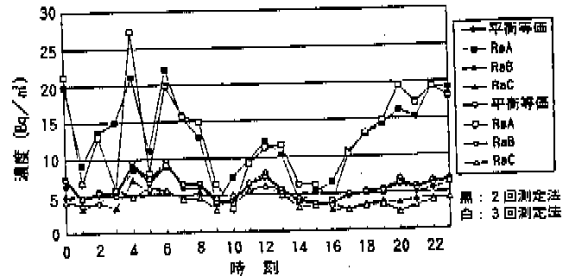


図7 2回測定法と3回測定法との比較

で計算されているのに対して、3回法ではそれぞれの計数誤差が伝搬されるため、誤差が大きくなり⁸⁾ ややばらついた結果が得られたものと考えられる。

3.6 他の測定器との比較

本装置とドイツ製のワーキングレベルモニタ(WLM200)と比較測定を行った。WLM200は固定式フィルタを用い、100 ℓ /h程度の流量による連続捕集で1時間毎に測定結果を印字する装置である。固定式フィルタであるため、比較的短時間の測定で用いられる。WLM200は固定フィルタによる連続測定という性格上、対象時刻以前のデータも演算に使用しており、本装置と直接比較できない。そのため、本装置の平衡等価ラドン濃度を3時間移動平均し、対象時刻以前の影響を考慮した結果とWLM200の結果の比較を図8に示す。この図より、両者のレベルと変化は非常に良く一致していることが確認できた。

4. おわりに

本測定装置の開発により1 Bq/m³程度の低濃度屋外ラドン娘核種濃度が、真空中での α 線スペクトル測定により高精度で連続測定可能となり、環

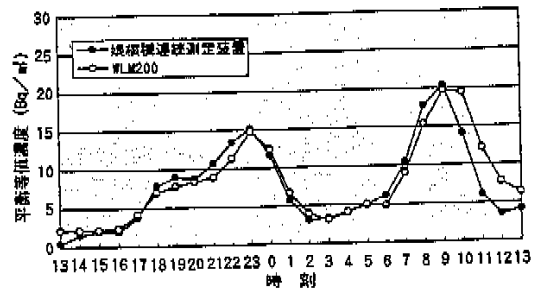


図8 WLM200との比較測定結果

境中におけるラドン娘核種の挙動評価や被ばく評価に活用が期待される。

参考文献

- 1) 放射線の線源、影響およびリスク、1988年国連科学委員会報告
- 2) A Citizen's Guide to Radon, EPA
- 3) 藤本憲三等、「屋内ラドン濃度全国調査の中間報告」保健物理学会第25回発表要旨集
- 4) 作業者によるラドン娘核種の吸入の限度、ICRP Publication 32, (1981).
- 5) Dowell E.Marts, Dan F.Holleman, David E.McCurdy, Keith J. Schisler ; Analysis of atmospheric concentrations of RaA, RaB and RaC by alpha spectroscopy, Health Physics, 17, 131-138 (1969).
- 6) Niels Jonassen, Edward I.Hayes ; The measurement of low concentrations of the short-lived Radon-222 daughters in the air by alpha spectroscopy, Health Physics, 26, 104-110(1974).
- 7) 下 道国；肺線量評価のための空気中のラドン娘核種の研究 (1986).
- 8) Nicholas P.Thiessen, Alpha particle spectrometry in Radon/Thoron progeny measurements, Health Physics, 67, 632-640 (1994).