



ラドン娘核種粒径分布の測定

伊藤公雄 古田定昭 中島裕治

人形峠事業所安全管理課

資料番号：98-4

Measurement of Radon Progeny Size Distribution

Kimio Ito Sadaaki Furuta Yuji Nakashima
(Health and safety section, Ningyo-toge works)

大気中ラドン娘核種の挙動評価、肺の被ばく線量評価等の際、ラドン娘核種の粒径分布が重要なパラメータとなるため、ラドン娘核種の粒径分布測定について検討した。

一般にエアロゾル粒子を粒径別に捕集するには粒子の拡散沈着を利用するものと慣性衝突を利用するものに大別される。拡散バッテリーは、通過する粒子をバッテリー内に拡散沈着させる装置であり、バッテリーを通過する透過率は粒径に依存している。数種類の拡散バッテリーを使用することにより、ラドン娘核種の透過曲線を求め、逐次近似計算によってラドン娘核種の粒径分布を求めることができることを確認した。

1. はじめに

大気中のラドン(Rn-222)は、崩壊してポロニウム(Po-218)になる。Po-218は、生成直後には原子イオンと考えられているが、速やかに大気中の水分子等と結合して一種のクラスターを生成する。このクラスター状のPo-218は、大気中に存在している種々のエアロゾルに付着して放射性エアロゾルを形成する(図1)。この間にPo-218は崩壊を続け、鉛(Pb-214)、ビスマス(Bi-214)、ポロニウム(Po-214)に変換していく。これらを総称してラドン娘核種エアロゾル(以下、ラドン娘核種)という。

大気中のラドン娘核種の挙動評価、被ばく評価等の際に、基本的なパラメータとしてラドン娘核種粒径分布は重要である。

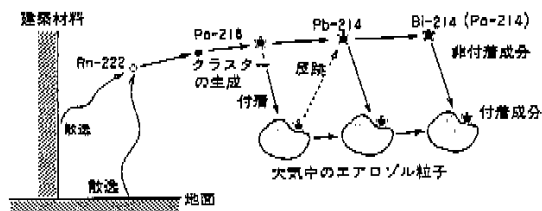


図1 ラドン娘核種の挙動

ラドン娘核種粒径分布の測定法については、種々の測定方法が考案されているが、主に粒子の慣性衝突を利用したカスケードインパクター法と粒子の拡散を利用した拡散バッテリー法に大別できる^{1)~3)}。拡散バッテリー法は装置全体をコンパクトに製作することが可能であり、種々の環境での測定のための移動に適している。このため、拡散バッテリーを用いたラドン娘核種の粒径分布測定法を確立したので報告する。

2. 拡散バッテリーによるラドン娘核種粒径分布測定

2.1 測定概要

拡散バッテリーは、空気中の微粒子を拡散によりバッテリー内に沈着させるものの総称であり、拡散バッテリーの流入前後の比(個数濃度、重量、放射能濃度等)から、その粒径を推定する。

図2に測定方法を示す。図2(a)に示すように、拡散バッテリーの通過前後の濃度比をあるパラメータ(流量、スクリーンメッシュの枚数(後述)等)を替えて測定し、図2(b)のような透過曲線を求める。この透過曲線から計算により粒径分布(図2(c))を求める。

粒径分布の計算方法も種々の計算方法が考案さ

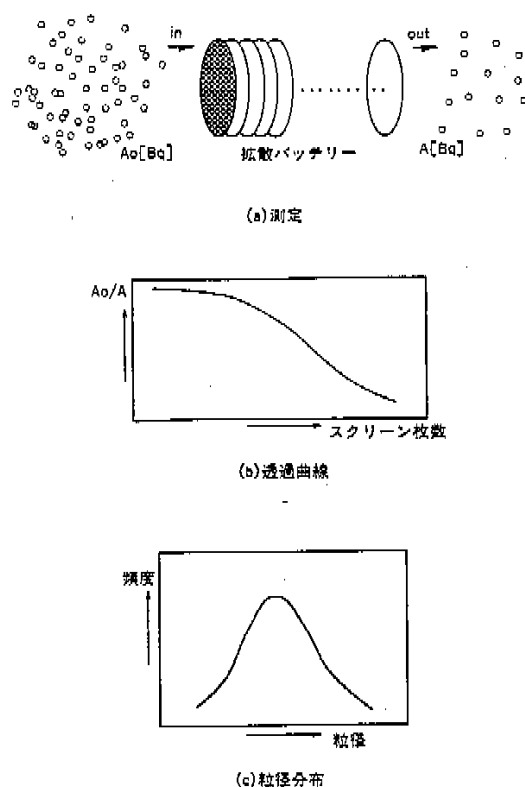


図2 ラドン娘核種粒径分布の測定

れているが、現在では、容易に分布の概形を知ることができること、粒径分布をあらかじめ仮定する必要がないこと、等の理由から逐次近似法による近似解を求めるのが一般的となっている。

2.2 拡散バッテリー

拡散バッテリーには種々のタイプ(平行平板型、スクリーンメッシュ型、拡散チューブ型等)が考案されているが、ラドン娘核種粒径分布測定には、可搬型の装置が製作可能なスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーが使用されている。

スクリーンメッシュは目の細かい金網の一種であり、 n 枚のスクリーンメッシュを通過するときの粒子(直径 d_p [m]、拡散係数 D [m^2/s]、密度 ρ_p [kg/m^3]とする)の透過率 P は、以下の式で表される^{(1),(5)}。

$$P = \exp \left[-4\alpha n w E_T / (\pi(1-\alpha)d_p) \right] \quad \dots (1)$$

ここで、 w はスクリーンメッシュの厚さ[m]、 d_f はスクリーンメッシュを構成している金属繊維の

直径[m]、 α はスクリーンメッシュの体積率であり、以下の式で計算される。

$$\alpha = 4m_s / (\pi d_s^2 w \rho_s) \quad \dots (2)$$

m_s はスクリーンメッシュの重量[kg]、 d_s はスクリーンメッシュの直径[m]、 ρ_s はスクリーンメッシュの密度 [kg/m^3]である。

また、 E_T は金属繊維単体での捕集効率に相当するもので、拡散による寄与 E_D 、接触による寄与 E_R 、慣性による寄与 E_I 、接触と慣性による寄与の補正項 E_{DR} により、以下の式で表わされる。

$$E_T = E_D + E_R + E_I + E_{DR}$$

$$E_D = 2.7 \text{Pe}^{-2/3}$$

$$E_R = f(R) / (2\text{Ku})$$

$$E_I = f\text{St} / (2\text{Ku})$$

$$E_{DR} = 1.24(\text{KuPe})^{-1/2} R^{2/3}$$

$$\text{Pe} = d_f U / D$$

$$D = kTC / (3\pi\mu d_p)$$

$$C = 1 + \lambda [2.514 + 0.8 \exp(-0.55d_p/\lambda)]$$

$$f(R) = (1+R)^{-1} - (1+R) + 2(1+R) \ln(1+R)$$

$$I = (29.6 - 28\alpha^{0.62})R^2 - 27.5R^{2.5}$$

$$R = d_p/d_f$$

$$\text{Ku} = -0.5 \ln(2\alpha/\pi) + 2\alpha/\pi - 0.75 - (\alpha/\pi)^2$$

$$\text{St} = (\rho_p d_p^2 C) / (9\mu d_f)$$

定数、パラメータ等は、

k : ボルツマン定数 (1.38×10^{-23} [J/K])

λ : 平均自由行程

(1気圧、293Kの時、 0.65×10^{-7} [m])

T : 温度 (293 [K])

μ : 空気の粘性係数

(1気圧、293Kの時、 1.83×10^{-4} [kg/m/s])

である。なお、 Pe 、 Ku 、 St は、流体力学でよく用いられる無次元数で、各々ペクレ数、クヌッセン数、ストークス数であり、 C はカニングハムの補正項と呼ばれている変数である。

拡散バッテリーは、このスクリーンメッシュが層状にセットされたもので、スクリーンメッシュの枚数を変えて測定すると、横軸をスクリーンメッシュの枚数、縦軸を放射能濃度比とした透過曲線が得られる。この透過曲線から粒径分布が計算される。

2.3 透過曲線

透過曲線は、粒径分布を計算する最も基本的な

データとなるものであり、この透過曲線の描き方で求められる粒径分布が決定されるといっても過言ではない。また、透過率が約1から0.3程度(さらに低い透過率が得られる方が望ましい)までの広い領域について測定データが得られることが求められる。

一般にスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーにより得られた透過率をそのまま入力データとすると測定誤差により滑らかな透過曲線とならず、結果として粒径分布も得られないため、何らかのスムージングが必要となる。スムージングの方法には、目視により適当に曲線を描く方法から任意の関数にフィッティングする方法まで種々の方法があるが、測定者の意思に影響されず、しかもできるだけ収束しやすい曲線にフィッティングさせるため、三元の指数関数にフィッティングさせることとした。

3. 逐次近似法による粒径分布計算

以上で述べた拡散バッテリーによる測定で透過曲線が得られる。この透過曲線から粒径分布を求めるには、分布を仮定することなく、容易に分布を得られる逐次近似法を用いるのが一般的である。

逐次近似法にも、種々のアルゴリズムが考案されている。限られた範囲の文献調査ではあるが、ラドン娘核種の粒径分布測定に適用されている逐次近似法には3つの方法(池辺法⁶⁾、EMax法⁷⁾、Twomey法⁸⁾)がある。

スクリーンメッシュ枚数 N_s の拡散バッテリー通過後のエアロゾル濃度あるいは放射能の比 $Z(N_s)$ は、応答関数 $R(N_s, x)$ を用いて次式で表される。ここで、 x は粒径、 $f(x)$ はエアロゾル粒径分布である。

$$Z(N_s) = \int R(N_s, x) \cdot f(x) dx \quad \dots(1)$$

実際の測定では、測定値 Z を連続したデータとして得ることはできず、離散化したものとなり、分布 f もある幅(通常は対数等間隔: Δx)を持った $f(x)\Delta x$ として求められる。従って、(1)式は、行列を用いて

$$|Z| = |R| \cdot |f| \quad \dots(2)$$

と表わされる。

求めたい分布 f を得るには、応答行列 R の逆行列 R^{-1} を(2)式に左から掛ければ求められるが、わずかの測定誤差のため f に振動が現れ、分布が負

の値にもなり得る。このような現象を避けるため、逐次近似法は、解析的な解ではないものの近似解を求める有効な方法と考えられている。

3.1 池辺法

池辺法では、以下のアルゴリズムを用いている。

$$|Z^{(N)}| = |R| \cdot |f^{(N)}| \\ f_i^{(N+1)} = f_i^{(N)} \cdot (Z_i^{(N)} / Z_i^{(obs)})$$

ここで、 f_i 、 Z_i は、各々行列 f 、 Z の要素であり、 $i=1 \sim n$ とする。 N は近似回数である。 $Z_i^{(obs)}$ は測定値とする。 f と Z が同じ要素数であるため、応答行列 R は、 n 次の正方行列である必要がある。近似の方法は、 Z_i の計算値と実測値の比を掛けて新しい分布を求めるもので、線形反復法のひとつである。

3.2 EMax 法

EMax法では、 R が正方行列である必要はなく、 $(n \times m)$ 行列とすると、 Z は $(n \times 1)$ 行列、 f は $(m \times 1)$ 行列となる。アルゴリズムは、

$$f_j^{(N+1)} = f_j^{(N)} \cdot \sum_i [Z_i^{(obs)} / Z_i^{(N)} \cdot r_{ij}] / r_{+j} \\ r_{+j} = \sum_i r_{ij}$$

である。ここで、 r_{ij} は行列 R の要素であり、 $i=1 \sim n$ 、 $j=1 \sim m$ とする。近似の方法は、 Z_i の計算値と実測値の比の行列 R の i 成分で重み付けした平均を掛けて新しい分布を求めている。

3.3 Twomey 法

Twomey法もEMax法と同様、 R が正方行列である必要はなく、アルゴリズムは、

$$f_j^{(N+1)} = f_j^{(N)} \cdot [1 + (Z_i^{(obs)} / Z_i^{(N)} - 1) \cdot r_{ij}]$$

である。近似の方法は、 Z_i の計算値と実測値の比から1を差し引いた誤差を行列 R の成分で重み付けしたものを掛けて新しい分布を求めており、非線形反復法の応用である。

3.4 各逐次近似法の比較⁹⁾

種々の模擬データ(単分散分布、多分散分布(1山)、同(2山))を作成して各逐次近似法を比較したところ、何れの方法においても入力データ通りの分布が得られた。しかしながら、収束までの計算回数は、逐次近似の方法と分布の形状によ

って大きく異なることが分かった。

池辺法では、総じて少ない計算回数で収束するが、入力データに誤差を与えた場合には、収束が悪い場合もある。収束の仕方は分布の形状には比較的影響されなかった。

EMax 法は分布の形状によっては非常に多くの計算回数が必要であるが、入力データに誤差を与えても得られる分布には大きな影響を受けない。

Twomey 法の場合は EMax 法と同様、分布の形状に影響を受けやすいが、EMax 法と異なり誤差にも影響を受けやすいことが分かった。

3.5 収束条件

測定値には誤差が含まれるため、逐次近似を完全に収束させると、誤差をもった測定値を真とした分布に収束してしまう。この現象を防ぐため、収束条件が必要となる。

収束条件も研究者により種々のものが考えられているが、下ら²⁾によって用いられている方法を採用した。この方法では、逐次近似により求められた粒径分布から透過率を再計算し、その結果がフィッティングした透過曲線（入力データ）の 5% 以内に入るまで逐次近似を続ける。

他に、 χ^2 乗値（透過率の再計算値と透過曲線との差の 2 乗を合計したもの）を求めて、収束を判断する方法や、単に計算回数により収束を判断する方法がある¹⁰⁾。

3.6 計算条件の決定

粒径分布の範囲（最小径、最大径）、粒径区分は、計算では任意に選ぶことが可能であるが、ここではカスケードインパクトによる測定結果（後述）と比較する必要から、 $0.018 \sim 0.8 \mu\text{m}$ とした。また、粒径分布の分割数については、文献等によれば、

実際の測定では誤差が伴うため、5 分割程度が適当である⁹⁾。入力データ数については、池辺法が、計算中に正方行列を用いているため、入力データ数と粒径分布の分割数は同じでなければならず、他の逐次近似法についても 5 つのデータを入力することとした。

4. ラドン娘核種粒径分布測定器の試作

4.1 測定器の概要

実際の測定環境では、ラドン濃度、エアロゾル濃度が常に変化しているため、できるだけ短時間に透過曲線を求めることが望ましい。他方、屋外での測定を考慮すると装置全体はコンパクトであることが望ましい。

試作した測定装置のブロック図を図 3 に示す。測定装置は、一度に 4 本の拡散バッテリーでサンプリングすることができる。低濃度の環境でも測定でき、高濃度の環境では Po-218、Po-214 の α 線を弁別測定できるようサンプリングと同時に α 線を測定できるオンライン型の測定とした。 α 線測定にはシリコン隔壁型半導体検出器を用いており、4 系統の α 線測定データをルーターを介して、1 系統の入力として多重波高分析器 (MCA) でスペクトル測定を行う。

スクリーンメッシュ枚数が、0 (ブランク)、1、3、6、10、20、46、100 枚の 8 種類の拡散バッテリーを用意した。これらの拡散バッテリーは 2 個を接続して使用することもでき、最大で 146 枚のスクリーンメッシュ枚数を設定できる。用いたスクリーンメッシュの網目の細かさは、250 メッシュ (1 インチ当たり 250 の網目がある) とした。

4.2 測定方法

実際の環境では、ラドン濃度、エアロゾル濃度

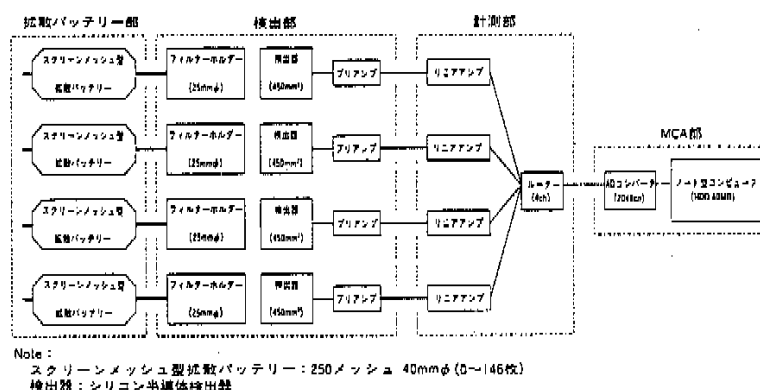


図3 ラドン娘核種粒径分布測定装置ブロック図

が常に変化しているためできるだけ短い時間で測定することが望ましいが、低濃度の環境での測定では、十分な計数を得るためにある程度の時間が必要である。また、1度に4種類の拡散バッテリーしか測定できないため、透過率の広い範囲にわたって透過曲線を得るためには最低2回の測定が必要となる。

以上のことから、実際の測定方法としては下記のとおりとした。

①測定イ)

0、20、46、100枚の拡散バッテリーで30分間

②測定ロ)

0、1、10、146枚の拡散バッテリーで30分間

③透過曲線の作成

④逐次近似法による粒径分布計算

なお、測定のイ)、ロ)の順序は逆になってもかまわないものとした。

5. カスケードインパクターとの比較測定⁹⁾

5.1 比較測定

カスケードインパクターは粒子の慣性衝突を利用して粒径別に捕集する装置である。以前は、捕集できる粒子の最小粒径が大きかったため、ラドン娘核種の粒径分布測定には不適當といわれていた。しかしながら、低圧カスケードインパクターの開発により、最小粒径が小さくなり、近年、ラドン娘核種粒径分布測定にも適用されてきており¹²⁾、比較測定を実施した。なお、粒径が約 $0.02\mu\text{m}$ の粒子まで測定できる低圧カスケードインパクターでは、吸引により約 40mmHg まで気圧を低下させるため、大容量のポンプが必要である。このため、移動しやすいコンパクトな装置を製作することは現状では困難である。

2カ所で比較測定を実施した。1カ所(A点)

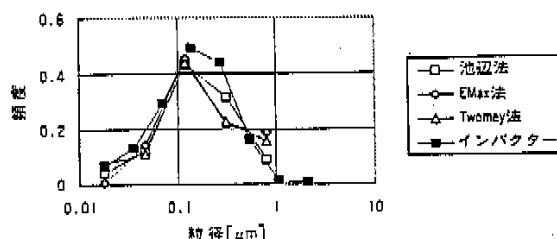


図4 ラドン娘核種粒径分布比較測定結果(A)
(一般環境)

は一般の環境、もう1カ所(B点)は海拔1200mの高所である。

A点では、3回の測定を実施した。測定結果を図4に示す。個々の測定では、拡散バッテリーのデータのばらつきが大きく、比較の結果も満足できるものではなかったため、得られたデータを平均して求めた粒径分布とカスケードインパクターの結果(平均値)を比較した。池辺法によって得られた分布は比較的良く一致した。EMax法、Twomey法によって得られた結果は、分布の形は、 $0.2\mu\text{m}$ 以上の粒径の大きいところで、やや異なっていた。

B点では2回の測定を実施した。測定結果を図5に示す。A点同様、2回の測定結果の平均値と比較すると、粒径が $0.2\mu\text{m}$ 前後のところでやや異なる分布を示し、平均粒径がやや小さい分布となった。B点は標高約1200mの高地にあり、周囲の大気圧は約 850mmHg である。カスケードインパクターのカットオフ径(捕集効率が50%のときの粒径)は入口気圧の低下により、大きくなるといわれていること、また、逆に拡散バッテリーでは、結果として得られる粒径分布が小さくなることから、気圧の影響が理由のひとつと考えられる。

5.2 測定結果のまとめ

限られた条件での比較測定ではあるが、測定結果から、池辺法が最もカスケードインパクターの結果に近い分布を与えることが示唆された。模擬データを用いた数値実験からは条件のわずかな変化により収束しない場合も見られた。また、他のEMax法、Twomey法では、非常に良く似た分布が得られるが、池辺法とはやや異なる分布であった。これは、逐次近似の方法が異なることはもちろんであるが、収束条件にも依存していると考えられる。

今回用いた収束条件では、池辺法が比較的良い分布を与えており、まず、池辺法により計算し、

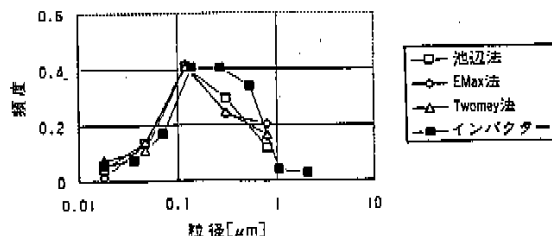


図5 ラドン娘核種粒径分布比較測定結果(B)
(海拔1200m)

その結果により EMax 法あるいは Twomey 法で計算することを検討すればよいと考えられる。

6. おわりに

拡散バッテリーによるラドン娘核種粒径分布の測定方法について、その測定原理と実際の測定の概要について述べた。

装置全体をコンパクトに製作するにはスクリーンメッシュ型の拡散バッテリーによる測定が適当であり、文献調査等により、以下のような測定条件が適当であることを確認した。

- ① 1 インチ当りの網目数：250メッシュ
- ② スクリーンメッシュ枚数：最大146枚
- ③ 測定：6 種類のスクリーンバッテリー
：サンプリングと同時に α 線測定
- ④ 透過曲線：3 元指数関数にフィッティング
- ⑤ 粒径分布：池辺法による逐次近似

また、試作した測定器とカスケードインパクトーとの比較測定では、概ね一致した測定結果が得られた。

今後は、エアロゾルに付着していないラドン娘核種（非付着成分）の測定について検討していく。

なお、カスケードインパクトーとの比較測定では、ザルツブルグ大学物理・生物物理学科スライン

ホイスラー教授の協力を得た。ここに記して、謝意を表する。

参考文献

- 1) R.E.Hillamo, E.I.Kauppinen : "On the performance of the Berner low pressure impactor", *Aerosol Sci. and Tech.* 14, P33-47 (1991).
- 2) J.Kesten, G.Butterweck, et al. : "An online α -impactor for short-lived radon daughters", *Aerosol Sci. and Tech.* 18, P156-164 (1993).
- 3) 下道国, 池辺幸正, 他 : "大気中のラドン娘核種エアロゾルの測定—スクリーンバッテリー法による粒径分布測定—", 出典 "続 大気中のラドン核と環境放射能", P47 (1990).
- 4) Y.S.Cheng, H.C.Yeh : "Theory of a screen diffusion battery", *J. Aerosol Sci.* 11, P313-320 (1980).
- 5) A.Reinerting, J.Porstendorfer : "High-volume screen diffusion batteries and α -spectroscopy for measurement of the radon daughter activity size distributions in the environment", *J. Aerosol Sci.* 17, 5 P873-879 (1986).
- 6) Y.Ikebe : "Determination of the size distribution of polydisperse submicron aerosol by a response matrix method", *Pure Appl. Geophys.* 98, P197-212 (1972).
- 7) E.F.Maher, N.M.Laird : "EM algorithm reconstruction of particle size distributions from diffusion battery data", *J. Aerosol Sci.* 16, 6 P557-570 (1985).
- 8) S.Twomey : "Comparison of constrained linear inversion and iterative nonlinear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distribution", *J. Computational Phys.* 18, P188-200 (1975).
- 9) K.Ito, F.Steinhauser : "Study on the measurement of radon progeny size distribution", *PNC TN6410 95-010* (1995).
- 10) 高橋幹二 : "応用エアロゾル学", 養賢堂 (1984).