原著論文

気中ラドン濃度簡易測定器の開発

下 道 國^{*1}, 岡 光 昭^{*2}, 山田 純也^{*3,*}, 細田 正洋^{*4}, 小西 敏春^{*5}, 渡井 勝範^{*5},
阪本 文男^{*6}, 山 崎 直^{*7}, 西本 昭義^{*7}

(2010 年 1 月 16 日受理)

(2010 年 6 月 21 日再受理)

Development of an Easily-handling Survey Meter for Measuring Atmospheric Radon

Michikuni SHIMO,^{*1} Mitsuaki OKA,^{*2} Junya YAMADA,^{*3,*} Masahiro HOSODA,^{*4} Toshiharu KONISHI,^{*5} Katsunori WATAI,^{*5}
Fumio SAKAMOTO,^{*6} Tadashi YAMASAKI^{*7} and Akiyoshi NISHIMOTO^{*7}

An easily-handling radon instrument was developed for using on the job of radiation monitoring in atomic and radiation facilities and in the environment. This instrument was named as “Radon Survey Meter” because a handy-type instrument and this was driven with battery and/or AC power. The weight of radon survey meter was 3 kg. Air is sampled by open and close of drawer of gas container within 10 seconds and radon concentration is measured by 10minutes. From a practical test in natural environment and using a radon source, it is cleared that this survey-meter was performed in radon concentration of 20~10,000Bq/m³.

KEY WORDS: atmospheric radon, easily-handling survey meter, development, drawer-type sampling container, short sampling time, ZnS (Ag) scintillator, short measurement time.

I は じ め に

ラドン (²²²Rn を意味する) は, 大気中, 水中を問わず, どこにでも存在している自然由来の放射性気体である。そのために, 原子力発電所や放射性物質取り扱い施設等の通常の放射線管理では, ラドンとその短寿命壊変生成核種はバックグラウンド放射線の主な線源として注意を怠ってはならない核種^{1,2)} となっている。その測定器は,

管理の現場では比較的大型の設置型測定器が主である。可搬型の測定器も用いられることがあるが, 取り扱いにはある程度の知識が欠かせない。いずれもポンプと AC 電源が容量の大きいバッテリーを必要とし, 測定値が得られるまで早くても 1 ~ 2 時間を要するなど, 現在使われているダストモニタ関係の測定器には, たとえばガンマ線用サーベイメータのような簡便性と機敏性が不足している。

^{*1} 藤田保健衛生大学客員教授; 愛知県豊明市沓掛町田楽ヶ窪 1-98 (〒 470-1192)

E-mail: shmmchkn@sf.commufa.jp

Fujita Health University Visiting Professor; 1-98, Dengakugakubo, Kutsukake-cho, Toyooka-shi, Aichi 470-1192, Japan.

^{*2} 日本原燃 (株); 青森県上北郡六ヶ所村尾駸字沖付 4-108 (〒 039-3212)

Japan Nuclear Fuel Co. Ltd.; 4-108, Okitsuki, Obuchi, Rokkasho-mura, Kamikita-gun, Aomori 039-3212, Japan.

^{*3} 首都大学東京大学院保健学研究科博士後期課程; 東京都荒川区東尾久 7-2-10 (〒 116-0012)

Metropolitan University of Tokyo, Doctoral Course; 7-2-10, Higashi-oku, Arakawa-ku, Tokyo 116-0012, Japan.

^{*4} (独) 放射線医学総合研究所; 千葉県稲毛区穴川 4-9-1 (〒 263-8555)

National Institute of Radiological Sciences; 4-9-1, Anagawa,

Inage-ku, Chiba 263-8555, Japan.

^{*5} 応用光研 (株); 東京都福生市熊川 1642-26 (〒 197-0003)
Ohyo Koken Kogyo Co. Ltd.; 1642-26, Kumagawa, Fussa-shi, Tokyo 197-0003, Japan.

^{*6} ザグ電子工業 (株); 大阪市淀川区西中島 4-12-28 TAIYO センタービル (〒 532-0011)
Zag Electric Kogyo Co. Ltd.; TAIYO Center Building, 4-12-28, Nishi-nakashima, Yodogawa-ku, Osaka 532-0003, Japan.

^{*7} 中部電力 (株); 名古屋市緑区大高町字北関山 20-1 (〒 456-8001)

Chubu Electric Power Co. Ltd.; 20-1, kita-sekiyama, Odaka-cho, Midori-ku, Nagoya 456-8001, Japan.

* 現在: (独) 日本原子力研究開発機構; 茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002 (〒 311-1393)

Present Address: Japan Atomic Energy Agency; 4002 Narita-cho, Ooarai-machi, Higashi-ibaraki-gun, Ibaraki 311-1393, Japan.

他方、ラドンは常に生活環境中に存在することから、自然放射線からの被ばくの評価では主要な因子³⁾となっており、ICRP2007年の新勧告⁴⁾や世界保健機構(WHO)の報告書⁵⁾を契機に、今後、一般環境での被ばく評価が重要な課題となると思われる。そのため、ある程度の広さの域内で複数のラドン濃度データが、簡単な操作で短時間に得られる測定器も必要となってくることが予想される。

現在、住居内の濃度レベルの測定では、主に動力を必要としない簡易型のパッシブ型測定器⁶⁾が使われている。ただし、このタイプの測定器は、1回の測定値を得るのに1か月以上を要するために、短期間の測定ならびに濃度の月単位より短い経時変動を知ることはできない。最近では、比較的安価な連続測定ができる機器も市販されるなど、ラドン測定技術もさらに進展し、多様になってきている。

このような状況を鑑みると、研究用に用いるのではなく放射線管理の現場あるいは生活環境の場の概略値を知ることが目的とした、簡便な測定器は有用であると考えられる。以上の観点から、精度は多少劣るもののサーベイメータのような感覚で、短時間で容易に測定できる気中ラドン濃度簡易測定器(以降、ラドンサーベイメータと称する)を開発したので、これについて報告する。

II 測 定 器

1. 測定器の制作

(1) 設計概念と仕様

開発の基本的な設計概念は、通常的环境のどのような場所でもAC電源を使用しないで簡便に作動し、かつサーベイメータ感覚で使用するには短時間の計測でラドン濃度を知ることができることとした。また、一般家屋のラドン規制が将来に行われるようになった場合、規制あるいは対策のためのレベルとして有力視されている100 Bq/m³は測定できるように、測定下限値は100 Bq/m³を十分に下回るようにすることとした。なお、測定値の精度については高い精度を要求せず、測定下限値付近で20～30%程度の誤差を許容することとした。

以上の要求に応える装置として、次の要件を持たせることとした。

- ①バッテリーで作動する
- ②モーター類を使用しないで、空気を短時間に採取できる
- ③片手で容易に持ち運びができる程度の大きさと重量にする

④操作及び表示はできる限り簡単にする

⑤測定時間は短い方がよいが、検出下限とのかね合せて、10分程度とする

以上の基本概念に沿って、測定器の仕様は以下のとおりとした。測定対象のラドンは空気中に存在しているため、ある程度の容積の空気を採集し、保持する必要がある、そのための容器(以降、容器部と称する)が主要な部分となる。容器部は「引出し」が付いた「箱」であるが、引出しの上底と下底および箱の横壁はなくして素通しの構造とした。すなわち、「引出し」を引き出した状態では、容器部の空気交換を容易に行うことができ、引出しを入れた状態では、上下左右とも壁に囲まれ、気密性が確保できる構造とした。この容器部が今回開発した測定器の特徴である。

実際に製作した本器は、空気の採り入れは、引出しを引き出した状態で本器を振るようにより前後あるいは左右に適度に空間で移動させて行うので、空気採取のための動力は必要としない。また、この容器部の内部の一部は放射線の検出部となっており、空気採集操作を10秒程度で行った後、直ちに測定を開始して10分後に濃度値が得られる仕様である。

(2) 測定器の概要

本器の外寸は、間口25 cm、奥行き20 cm、高さ25 cmの箱型で、アルミやプラスチックを多用して重量を約3 kgとした。容器部はプラスチック材で作られており、そのサイズは上・下底面が15 cm×20 cm、高さが10 cmの箱形で、容積は3 Lである。全体的外観と容器部から引出しを引き出した状態の写真をFig. 1に示した。容器部の上面全体が α 線の検出部となっており、透明なプラスチック板にZnS (Ag) シンチレータが塗布され、その表面を遮光膜(アルミナイズドマイラ 0.243 mg/cm²×3枚)で覆っている。なお、このマイラによるエネルギー損失分を差し引いたエネルギーによる標準状態での空気中の飛程は、ラドンからの α 線(5.49 MeV)で約3.5 cmである。3重に貼った遮光膜のうちの表面の1枚は、容易に交換できる構造とした。使用する光電子増倍管は1本である。通常使用するスイッチ類は、設計概念から電源と測定開始用の2個とし、表示部も測定時刻とラドン濃度、測定残り時間、バッテリー電圧、印加電圧、エラー表示など必要最小限の情報にとどめた。また、フル充電のバッテリーで8時間使用できる規格とし、AC電源も使用できるようにした。以上の概要をTable 1にまとめた。

2. 計測核種とラドン濃度計算

放射線の計測は以下の要領で行う。この計測で着目する核種は、ラドンとその短寿命壊変生成核種 (^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po) である。採取空気中にもともと存在している壊変生成核種および採取後容器内で生成した壊変生成核種の大半は、時間の経過とともに拡散によって移動し、容器部の内壁に沈着する。これらの中で α 線を放出するのは、 ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po の3核種である。このうちで計測されるのは、ZnS (Ag) シンチレータを塗布した面に沈着した壊変生成核種と、その面の近くの空气中に浮かんでいるラドンおよび壊変生成核種である。

つぎに、計数値からラドン濃度を算出する時に留意した3点を以下に述べる。1点目は、計数値から濃度を求める濃度換算係数であるが、これについては標準場での測定と濃度換算係数の項で改めて述べる。2点目は、正味の計数値である。たとえば、1時間内に連続して、あるいは断続的に数回繰り返して測定するような場合、当該測定以前の測定で採集した空気由来するラドン壊変生成核種が減衰しきらずに容器壁に残っている。これからの計数は不要であり、これを除去した正味の計数値だけが必要である。これへの対処法として、電源のON、

OFFにかかわらず濃度計算では当該測定以前の不要な計数値を除去するように濃度計算プログラムで対応させ、当該測定時の正味の計数が得られるようにした。3点目は、トロロン (^{220}Rn) およびその壊変生成核種の寄与であるが、これは無視することとした。

具体的な濃度計算方法は次のとおりである。ラドン濃度 Q [Bq/m^3] は計数値 (当該サンプリングによる正味の計数値) C_i [counts/10 min] から次式で求められる。

$$Q = K \cdot C_i \quad (1)$$

ただし、

$$K = 1/(V \cdot F(t_1, t_2)) \quad (2)$$

$$F(t_1, t_2) = \varepsilon_1 F_1(t_1, t_2) + \varepsilon_2 F_2(t_1, t_2) + \varepsilon_4 F_4(t_1, t_2) \quad (3)$$

であり、 K [$(\text{Bq}/\text{m}^3)/\text{counts}$] は濃度換算係数、 V [m^3] は容器部の容積、 ε_1 [-], ε_2 [-], ε_4 [-] はそれぞれ ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po の計数効率である。 $F_1(t_1, t_2)$ [s], $F_2(t_1, t_2)$ [s], $F_4(t_1, t_2)$ [s] は、計測開始時刻 t_1 から終了時刻 t_2 の間に α 線計測に寄与する試料中の ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po からの計数に係る時間の関数で、4世代に関する壊変の微分方程式 (Bateman の式) で求められる (^{214}Po の半減期は $164 \mu\text{s}$ と短いため、計算では ^{214}Bi から α 線が出るとして扱う)。 C_t を求める $F(t_1, t_2)$ の計算では、採取した空気中のラドンおよびラドン壊変生成核種の間の放射平衡比を与える必要があるため、ここでは文献値⁷⁾を参考にして一定の比 ($^{222}\text{Rn} : ^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi} = 1 : 1 : 0.6 : 0.6$) を用いた。今、 i 番目の測定をしている場合を想定すると、 i 番目の計数値 C_i には $i-1$ 番目にサンプリングされた試料からの計数も入っているために、これを差し引いて i 番目のサンプリングだけによる正味の計数値 C_i を求めなければならない。そのために、 C_{i-1} の減衰分を考慮した $C' (= C_{i-1} \cdot F(t_1 + t, t_2 + t) / F(t_1, t_2))$ を計算し、 i 番目の正味の計数は $C_i = C - C'$ とする。ただし、時間 t は i 番目測定の計測開始時刻と $i-1$ 番目測定の計測開始時刻の実時間差である。なお、当該サンプリングの直前の計数値 C_{i-1} には $i-1$ 番目およびそれ以前のサンプリングによる核種からの計数が含まれるので、当該計数の正味の値 C_i は直前の計数値による補正だけでよい。

3. 測定器の特性

(1) 固有バックグラウンド計数

はじめに、本器を構成する材料由来する α 線の計数値を「固有バックグラウンド」として、その計数を確認した。この測定では、環境からのラドンの影響を排除す

Fig. 1 Radon Survey Meter developed in this study. Left: drawer is closed. Right: drawer is pull out.

Table 1 Concept of Radon Survey Meter.

Item	Specification
Size	25 cmW × 20 cm × 25 cmH
Weight	3 kg
Air container	Drawer type
Capacity of container	3 l (15 cm × 20 cm × 10 cm)
Sampling time	~ 10 s
Measuring time	10 min
Measuring interval	Optionally
Indication	Time & Radon concentration

るために、本器をポリエチレン袋に入れて粘着テープで密閉し、その袋内に高純度の窒素ガス (99.999%) を陽圧 (0.25 kg/cm²) で流す系にして、流入を極力避ける方法をとった。その結果から、固有バックグラウンド計数は (1.8 ± 1.5) counts/10 min 以下と評価した。

(2) 測定濃度範囲

後述の屋外環境での試験測定、および放射線医学総合研究所 (放医研) の標準場 (ラドンチャンバ) や地下坑道などの高濃度環境での測定から測定範囲を検討した。実環境における対照器との同時測定では、20 Bq/m³ 程度までは十分に測定できることが確認できたので、これを測定下限として問題ないとした。また上限は、標準場等で 10,000 Bq/m³ までは測定ができることを確認した。これより測定範囲は 20 ~ 10,000 Bq/m³ とした。

(3) 測定精度

ラドン濃度が 50 ~ 960 Bq/m³ の範囲で同時測定した AlphaGUARD (PQ2000PRO; Genitron Instruments, Germany) の値に対する比を取り、この規格化した値について、その平均値と標準偏差から変動係数を求めたところ 27% となった。これはばらつきの程度を示しており、本器の精度を表していると見ることができる。なお、本器と AlphaGUARD の試料空气の採取方法の違い (本器は、10 分ごとの 10 秒間採取であるのに対して、AlphaGUARD は連続採取) や、ラドン濃度算出の違い (本器は 10 分ごとの測定値であるのに対して、AlphaGUARD は 10 分間の平均値) を考慮すると、実際の精度はこの比較による精度とは異なり、これよりも良いと思われる。

(4) 容器部の気密性

本器では、容器部が引出し型であることからその気密性は万全とは言いがたいため、その性能を知っておく必要がある。この気密性について、ラドンを含んだ空气を封入した後のラドン濃度の時間経過を追い、理論的な減衰量と比較する手法から、3%/10 min 程度の漏洩があると評価した。漏洩により濃度は低めに評価されることになるが、3% 程度を軽微な量と考え、ここでは留意すべき事項にとどめて補正係数には含めないこととした。

4. ラドン標準場での測定と濃度換算係数

(1) ラドン標準場での測定

ラドン標準場での測定は放医研のラドン棟で行った。標準場のラドン濃度は、およそ 400 Bq/m³, 1,500 Bq/m³, 3,000 Bq/m³ と設定した。なお、ラドンチャンバは温度が 21.5 ± 0.1 °C、相対湿度が 49.5 ~ 50%、気圧が 996 hPa であり、エアロゾルを投入しない条件で実験を実施した (したがって、ラドン壊変生成核種濃度のモニ

タはされていない)。ラドンチャンバ内濃度の時間推移の 1 例として 1,500 Bq/m³ の場合を Fig. 2 に示した。濃度管理は AlphaGUARD でなされており、数値は瞬時値ではなく 10 分ごとの値として表示されているが、ラドン濃度は 10 数% の幅に収まらない程度に脈動している。

このような条件の下で、本器をチャンバ内に持ち込み、引出しを引き出して 10 秒以内でサンプリングした後、引出しを戻して測定をした。本器の測定結果を設定濃度との相関で Fig. 3 に示した。本器の場合、約 10 秒で空气を採取するため瞬時値に近い。また、立ち入り時はラドンチャンバ内の空气が乱れるので、測定法の違いも重なって、この程度のデータのばらつきはやむを得ない。なお、図にはラドンチャンバ外での測定値 (数 10 Bq/m³ 付近のデータ) も併せて示している。

(2) 濃度換算係数

計数に寄与するのは、主にラドン壊変生成核種からの

Fig. 2 Time variation of ²²²Rn concentration in Rn chamber at the calibration performed in National Institute of Radiological Sciences (NIRS).

Fig. 3 Comparison between Rn Survey Meter count vs. ²²²Rn concentration in Radon chamber of NIRS.

α 線であるため、濃度の算出では壊変生成核種からの α 線による測器の計数効率を知ることが必要である。ラドン壊変生成核種の大半は、シンチレータを含む上下および横方向の壁面に付着しているが、気中に浮遊している壊変生成核種も微量に存在する。容器部がプラスチック製のためにその内面の帯電状況が不明であること、また壊変生成核種の粒径や電気的性状が環境条件によって影響を受けてその空間分布が変わるなどの理由によって沈着の状況は必ずしも一様ではないと考えられる。また、空気中のラドンからの α 線の寄与も、少ないなりにあると予想される。したがって、正確な計数効率を知るには、ラドンおよび壊変生成核種の空間分布を考慮したモンテカルロ計算法などが有力な手段となるが、最終的には既知の濃度の試料気体との照合が必要となる。

ここでは上記の方法を取らず、計測値を校正場のラドン濃度に「値付け」して得られる「ラドン濃度/計数値」を濃度換算係数とした。濃度換算係数Kは標準場の測定から4.5となった。なお、これを求めた測定場はエアロゾル・フリーに近い場と考えられた。

III 実 測 例

1. 試験測定

(1) ラドン発生源を用いた測定

試験測定は、Fig. 4に示されている「線源密閉容器」にラドン発生源（ウランを含んだ碎石）を入れ、ラドンを発生させて行った。測定では、濃度測定状況を比較する目的で、測定器として市販され、使用実績のある静電捕集型ラドンモニタ（応用光研（株）製 S-2597；以下、ラドンモニタとする）を同時に作動させた。空気は両器を直列に接続した循環系とし、流量はラドンモニタの規定流量である1 L/minとした。なお、本器はゆったりと余裕のあるプラスチック製の袋に入れ、内部の気密性を保ちつつ外から引き出し操作が容易にできるようにした。測定は10分間隔（計測終了後、直ちに次の試料空気を採取し終えて計測に入る）で繰り返し行った。

Fig. 4 Block diagram of measurement system for alpha particles from radon source and non-radon source situations.

測定結果を Fig. 5-1 に示した。本器は10分ごとの瞬時の濃度を測定しているから、Fig. 5-1は試料空気の短時間濃度変動を示している。他方、ラドンモニタは連続通気測定で1時間ごとの値しか得られないために、1時間の平均的な値である。したがって、濃度の絶対値と変動について両器間の厳密な比較はできないが、大まかに見れば測定値の変動傾向は一致している。

(2) 室内空気を用いた測定

室内空気を試料空気として、測定間隔をほぼ30分として連続測定をした結果を Fig. 5-2 に示した。この場合も Fig. 4の空気循環系をそのまま使用して、同図の線源密閉容器（Sealed Vessel）に室内空気を入れて測定した。本器とラドンモニタの変動傾向は、測定の立ち上がりの2時間以内でずれが見られたが、その後から終了までの5時間は全体的には概ね一致した。

2. 実環境における測定

(1) 高濃度環境

名古屋大学地震・防災科学研究センター三河地殻変動観測所の地殻変動観測用地下坑道のラドン濃度が高い（3,000～4,000 Bq/m³）⁸⁾ことから、坑道内空気と外気を適当に混合するなど広い濃度範囲を設定して測定した。

はじめに、測定器（機器として）のハード面の作動状

Fig. 5-1 Sequential data of α count of Radon Survey Meter and ^{222}Rn concentration using radon source.

Fig. 5-2 Sequential data of α count of Radon Survey Meter and ^{222}Rn concentration using room air.

態から濃度算出ソフトまでの動作状況を確認した。すなわち、測定開始の最初に測定器内に取り込んだラドンを交換せずにそのまま封入した状態で、10分毎の繰り返し測定を5回（1時間）行い、 $1,100 \text{ Bq/m}^3$ の高濃度では6%以内で安定であることを確認した。また、 64 Bq/m^3 の低濃度では初めの1点は30%ずれたが、その後は一定の値となって、動作状態が良好であることを確認した。

幅広いラドン濃度（ $30 \sim 4,000 \text{ Bq/m}^3$ ）で測定した結果を Fig. 6-1, 6-2 に示した。なお、AlphaGUARD のラドン濃度は、移動平均値で示した。Fig. 6-1 の高濃度のデータでは本器と AlphaGUARD の値の一致が少し悪い程度である。それに対して、Fig. 6-2 では、稀には一致しているときもあるものの、本器の値が AlphaGUARD よりもかなり低めに出ている。これについては次章で考察する。

Fig. 7 には本器と AlphaGUARD との相関を示した。全体としては、本器は AlphaGUARD に対して 0.89 倍の値を示すが、相関係数は 0.978 とよい。また、 100 Bq/m^3 以下の濃度で見られるように、濃度が低いほど違いが顕著になることから、この測定でのバックグラウンド値も

影響していることが考えられる。

全体としては、おおむね両器の相関性は保たれていることから、本器は測定器の設計概念から要求される性能をほぼ満たしていると判断した。

(2) 屋外環境

藤田保健衛生大学豊明キャンパスの屋外環境での測定例を、AlphaGUARD での値とともに Fig. 8 に示した。同図は、個々の値を対比させたときの一致度は必ずしもよくないが、測定値の変動傾向は概ね一致していることを示している。これ以外の屋外環境の測定データも含め、本器が概ね 20 Bq/m^3 以上の通常環境でも使用可能であると判断した。

3. 実環境測定のとまとめ

実環境において、原理を異にした良く使用されている2台の測定器との同時測定から、本器が設計どおり動作すること、高濃度ラドン濃度環境での試験から特に時間待ちをしないで直ちに使用できること、通常の屋外環境でも概ね測定可能であることなどが確認できた。同時に、これらのデータから濃度換算係数と本器の性能を表す検

Fig. 6-1 Measurements of ^{222}Rn concentration in tunnel of Mikawa Crustal Movement Observatory (MCMO). High concentration level.

Fig. 6-2 Measurements of ^{222}Rn concentration in tunnel of MCMO. Low concentration level.

Fig. 7 Correlation of ^{222}Rn concentrations measured between Rn Survey Meter and AlphaGUARD in MCMO.

Fig. 8 Sample of ^{222}Rn measurements in outdoor air.

出下限, および実際に使用する上での留意点なども確認できた。これらを **Table 2** にまとめた。

Table 2 Performance of Radon Survey Meter

Item	Value
α -ray background	$(1.8 \pm 1.5)/10 \text{ min}$
Range (actually)	20 ~ 10,000 Bq/m ³
Precision	27%
Conversion factor	4.5

IV 考 察

1. 測定と測定下限

本器の開発で最も配慮した項目のうち、動力を用いないで試料空気を取り入れる方法については、対照として用いた測定器（ラドンモニタと AlphaGUARD）と本器の値の比較検討から、引出し方式で簡単かつ短時間で確実に交換できることが確認できた。

測定下限を文部科学省の環境放射線モニタリング指針⁹⁾（バックグラウンドの標準偏差を σ とすると、検出下限は $3\sqrt{2}\sigma$ で得られる）から算定すると、今回の場合はバックグラウンド値が $1.8 \pm 1.5 \text{ counts}/10 \text{ min}$ であるから、検出下限計数は $6.4 \text{ counts}/10 \text{ min}$ となる。これを濃度に換算すると 28.8 となるので、検出下限濃度は $29 \text{ Bq}/\text{m}^3$ （設計目標値 $100 \text{ Bq}/\text{m}^3$ のほぼ $1/3$ ）となる。しかし、実環境における対照器との同時測定からは、 $20 \text{ Bq}/\text{m}^3$ 程度までは十分に測定できることが確認できたので、実質的な測定下限を $20 \text{ Bq}/\text{m}^3$ として問題ないと思われる。

2. 遮光膜の交換と短時間内の繰り返し測定

測定部のハード面で注意した点は ZnS (Ag) シンチレータの遮光膜である。注意深く選んだ遮光膜も面積が大きくなれば、ピンホールの存在が無視できなくなる。ピンホールの存在はバックグラウンドの増加や検出器の劣化を招くことになるため、3枚重ねることによってその影響をほぼ無視し得る程度にできることを確認した。遮光膜の表面は、使用中に傷や汚れがついたり、あるいは高トロン濃度を測定した場合にはトロン壊変生成核種 (^{212}Pb) が無視できない程度に残っていたり、さらには長期間使用後に、生成したラドン長寿命壊変生成核種 (^{210}Pb) が蓄積により顕在化してくることなどが考えられる。また、相当に高いラドン濃度を測定した後では、その次の測定でこれによる高い計数が想定される。これらは、偽計数や計数効率の変化、測定精度の低化を招きやすくなるが、随時に遮光膜を交換することにより、こ

のような状況を緩和することができる。

本器は、設計上、濃度が高い場所での測定から、時間をおかずに1桁以上も低い場所での使用には適していない。その理由は、当該計測値からそれ以前の捕集による計測値の減衰補正をした値を差し引くことによって当該の正味の測定値を出している点にある。この方法は有用であるが、当該測定値が直前の測定値に比べてかなり小さい場合、正味の値が極めて小さくあるいは負の値となることがある。実際に、濃度レベルが低いレベルから高いレベルまで2桁以上も濃度幅のある環境（名古屋大学三河地殻変動観測所）における測定で、高濃度空気を測定した直後に低濃度空気を測定する場合は ZnS (Ag) シンチレータ遮光膜を交換することによってこの点をクリアできることを確認している。一方、通常環境では、測定から次の測定まで1時間程度の間隔がある場合では、遮光膜の交換が不要であることも屋外測定から確認している。したがって、状況を見定めて適切に対応すれば、本器の設計概念である「ある程度精度を犠牲にした迅速な測定」は可能であると判断できる。

3. 濃度換算係数

値づけに関しては、**Fig. 3** で示されているように直線関係が得られているので、エアロゾル・フリーに近い場における濃度換算係数として正しいと判断できる。

濃度換算係数の 4.5 から $F(t_1, t_2)$ を逆に算定し、これからラドン壊変生成核種の気中濃度比を見積もると $^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi} = 1 : 0.3 : 0.3^*$ となる。ラドンチャンバ内にエアロゾルが付加された場合、ラドン壊変生成核種の気中濃度はある程度は高くなり、従ってラドンとその壊変生成核種の濃度比は1に近づく方に動くので、濃度換算係数は小さくなると考えられる。しかしながら、下ら^{10, 11)}によれば、エアロゾル濃度が下がるにつれて、ラドン壊変生成核種のうちエアロゾル付着成分濃度は下がるが、非付着成分濃度は上がることが計算と実測で示されているので、大気中の付着成分と非付着成分を合わせた全濃度はあまり大きくは変化しないとも考えられる。なお、今回の標準場での測定では、ラドン壊変生成核種濃度が測定されていなかったために、測定時の実際の放

* ^{222}Rn については容器部の容積の内で計数に寄与する容積の割合を 35%。またラドン壊変生成核種については容器部の表面積の内で計数に寄与するシンチレータの塗布面積を 23% とし、核種が空气中に存在する割合と器壁に沈着する割合等を勘案した幾何学的計数効率を ^{222}Rn が 10%、 ^{218}Po が 26%、 ^{214}Po が 40% とすると、全計数効率は ^{222}Rn に対して 3.5%、 ^{218}Po で 6%、 ^{214}Po で 9% となる。一方、濃度換算係数 4.5 と容器部容積から期待される式 (3) の $F(t_1, t_2)$ は 74.07 であり、これを満足させる濃度比の一つは $^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi} = 1 : 0.308 : 0.308$ である。

射平衡比は不明である。

ラドン壊変生成核種は、狭い空間では壁などへの粒子の沈着が無視できず、かつ沈着速度は粒径に依存する¹²⁾。実際には、ラドンとその壊変生成核種の濃度比は、試料空気存在する空間の広さ以外にエアロゾル濃度と粒径、湿度、空気の動き等によって変動し、その状況は様々ではなく単純に定まらない。

4. 放射平衡比

濃度計算式 (1) では、正味の計数値 C_i を算出する過程で、当該測定の前採取した空気由来する計数 C' を差し引いているが、その C' の算定では、空気中のラドンとラドン壊変生成核種の間の放射平衡比を $^{222}\text{Rn} : ^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi} = 1 : 1 : 0.6 : 0.6$ と固定している。この平衡比が $^{222}\text{Rn} : ^{218}\text{Po} : ^{214}\text{Pb} : ^{214}\text{Bi} = 1 : 1 : 0.85 : 0.85 \sim 1 : 1 : 0.3 : 0.3$ の範囲でずれた場合、Batemann の式で計算される $F(t_1, t_2)$ は 17% 以内でずれると見積られる。これは差し引く値の変動幅であり、かつその計数自体は減衰によって小さくなっているから、ラドン濃度への影響はあまり大きくなく、濃度誤差は 17% より十分下回ると推測される。ただし、当該測定の計数値がその前の計数値に比べて相当に小さい場合は、誤差として大きくなることは前述した。

5. ラドン濃度

本器の値を AlphaGUARD との同時測定値と比べた時、Fig. 6-1 および Fig. 6-2 のトンネル内外でのデータでは、本器での濃度が低めに出ている。この理由には測定場の不均一性が考えられる。すなわち、坑道内のドアを閉めている時は空気が安定した状態となっているが、低濃度にするために坑道の入り口を開放して外気を導入する時には、人や器物の存在で空気の混合が不均一となり、試料空気を採取する位置によって濃度が違うことがあり得る。他には試料空気の質（ラドンおよびその壊変生成核種の平衡比）の違いが考えられる。

Fig. 8 の一般環境での測定例では、本器の値はばらついてはいるが、若干低めの傾向を示している。前述したように、濃度換算係数が大きめに設定されていると考えられるので、濃度が高めに出ることはあり得ても、逆に低くなることはないはずである。この原因として、両器の試料気体採取法と測定時間の違うために測定値自体が一致しないことなどが考えられるが、今のところ詳細ははっきりとしない。

実際の環境における本器と他の測定器との同時測定から、濃度値に若干の不一致が見られた以外は、計測上特に問題はないことが確認できた。しかしながら、較正試

験の時よりもさらにエアロゾルが少ないような環境や狭い部屋での測定値は、真値から小さい方にずれる方向にある¹³⁾ ために、クリーンルームのようにエアロゾル濃度が極端に少ない (^{214}Pb と ^{214}Bi の空気中の存在比率が 0 に近くなる) か、あるいは逆に煙が充満した (^{214}Pb と ^{214}Bi の存在比率が 1 に近づく) 特殊な状況での使用は避けるのが望ましいと判断している。

6. トロンの寄与

ロン壊変生成核種の寄与については、通常の屋外環境ではこの核種がラドン壊変生成核種のおよそ数十 % 程度¹⁴⁾ 存在しているので、これを無視していることにより、大きい場合は真値から数十 % の誤差が生じることがあり得る。ただし、実際の環境でのロンおよびその壊変生成核種の測定例は極めて限られており¹⁵⁾、ロンに関する諸事項は今後の課題である。

V 結 論

通常環境であれば、どのような場所でも使用できる、AC 電源を使用しない簡易型のラドン測定器を目指して開発を進め、始動スイッチの投入 10 分後に濃度が表示され、かつ繰り返し測定ができるハンディ型の装置を試作した。本器は測定精度をあまり問わずに迅速性の重きを置くこととし、濃度算定はラドン標準場で値づけした濃度換算係数を用いる方法をとった。

制作器について、濃度算定過程の検討と高濃度環境および通常の屋外濃度における性能試験から、基本設計どおりに動作することを確認した。また、本器は $20 \sim 10,000 \text{ Bq/m}^3$ の濃度範囲で使用可能であること、測定誤差は 15% 以内と推測されること、測定下限近傍の精度はおおよそ 27% と見積もられることなども確認した。

本器は片手で持ち運びができるサイズと重量であり、GM サーベイメータなど他のサーベイメータと同様に、日常の放射線管理の現場で使用できる。また、将来に自然放射線が規制の対象となった場合には各種環境でのラドン濃度データが必要となるが、本器は、そのような場合の健康管理を目的とした職域環境や生活環境のラドン濃度の概略値を得る測定にも使用可能である。

謝 辞

較正実験では (独) 放射線医学総合研究所の床次眞司主任研究員に適切なアドバイスをいただいた。また、ラドン高濃度環境測定では名古屋大学地震・防災科学研究センター三河地殻変動観測所山内常生助教授 (当時) に便宜を図っていただいた。記して感謝の意とする。

参 考 文 献

- 1) 池辺幸正, 飯田孝夫, 下 道国, 関 昭男, 中田 啓, 吉田 守; プルトニウムの α モニタ時における疑似計数の発生機構, 保健物理, **17**, 157-164 (1982).
- 2) M. SHIMO, K. YAMASAKI, T. TSUJIMOTO, K. OKAMOTO, T. YOSHIMOTO, H. KOJIMA and M. MIZUMA; Influence of Outdoor Radon Decay Products Concentration on the Environmental Radiation Dose Rate, *Jpn. J. Health Phys.*, **42**, 156-165 (2007).
- 3) UNSCEAR; Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation Report to the General assembly with Scientific Annexes, United Nations, p. 8, New York (2002).
- 4) ICRP; The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 103, p. 112 (2007).
- 5) WHO; WHO Handbook on Indoor Radon, Vienna, p. 3 (2009).
- 6) 下 道国, 飯田孝夫; ラドントロンとその娘核種 - 測定法の現状と課題 -, 放射線, **17**, 6-27 (1991)
- 7) 児島 紘; 日本保健物理学会専門研究会報告書「ラドンの人体への影響評価」 p. 60 (1998).
- 8) 下 道国, 山内常生, 松田秀晴, 宮島力雄; GM サーベイメータによる地殻変動観測坑空气中的ラドン濃度の測定, 地震 II, **43**, 111-120 (1990).
- 9) 文部科学省; 環境放射線モニタリング指針 (2008).
- 10) M. SHIMO and Y. IKEBE; Measurements of Radon and Its Short-lived Decay Products and Unattached Fraction in Air, *Radiat. Prot. Dosim.*, **8**, 209-214 (1984).
- 11) M. SHIMO, Y. ASANO, K. HAYASHI and Y. IKEBE; On Some Properties of ^{222}Rn Short-lived Decay Products in Air, *Health, Phys.*, **48**, 75-86 (1985).
- 12) 加藤隆夫, 下 道国, 池辺幸正; 建屋内におけるフリー原子の沈着率と沈着速度の測定, 原子力誌, **27**, 78-85 (1985).
- 13) 岡 光昭; 「生活環境におけるラドン壊変核種の性状とその健康影響」, 藤田保健衛生大学衛生学部修士論文 (2008).
- 14) 下 道国, 池辺幸正; 自然環境における Rn-222, Rn-220 およびそれらの短半減期娘核種の濃度, 保健物理, **14**, 251-259 (1979).

- 15) Q. GUO, M. SHIMO, Y. IKEBE and S. MINATO; The Study of Thoron and Radon Progeny Concentration in Dwelling in Japan, *Radiat. Prot. Dosim.*, **45**, 357-359 (1992)

付録: Batemann 方程式から導出された関数

ラドンとラドン壊変生成核種を含んだ空気をグラフサンプリングした後, 時間 t_1 から t_2 まで測定した時の ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Bi からの計数を導出する関数 $F_i(t_1, t_2)$ を表す。ただし, $i = 1, 2, 4$ はそれぞれ ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Bi を意味する。式中, g_2, g_3, g_4 はそれぞれ試料空気中の ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi の ^{222}Rn に対する存在比である。

$$F_1(t_1, t_2) = 1/\lambda_1 \{ \exp(-\lambda_1 t_1) - \exp(-\lambda_1 t_2) \}$$

$$F_2(t_1, t_2) = \lambda_2/\lambda_1(\lambda_2 - \lambda_1) \{ \exp(-\lambda_1 t_1) - \exp(-\lambda_1 t_2) \} + 1/(\lambda_1 - \lambda_2) \{ \exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2) \} + g_2/\lambda_1 \{ \exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2) \}$$

$$F_4(t_1, t_2) = \lambda_2\lambda_3\lambda_4/\lambda_1(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_4 - \lambda_1) \{ \exp(-\lambda_1 t_1) - \exp(-\lambda_1 t_2) \} + \lambda_3\lambda_4(\lambda_1 - \lambda_2)/(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2) \{ \exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2) \} + \lambda_2\lambda_4(\lambda_1 - \lambda_3)/(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3) \{ \exp(-\lambda_3 t_1) - \exp(-\lambda_3 t_2) \} + \lambda_2\lambda_3(\lambda_1 - \lambda_4)/(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4) \{ \exp(-\lambda_4 t_1) - \exp(-\lambda_4 t_2) \} + g_2[\lambda_3\lambda_4/\lambda_2(\lambda_3 - \lambda_2)(\lambda_4 - \lambda_2) \{ \exp(-\lambda_2 t_1) - \exp(-\lambda_2 t_2) \} + \lambda_4/(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_4 - \lambda_3) \{ \exp(-\lambda_3 t_1) - \exp(-\lambda_3 t_2) \} + \lambda_3/(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_3 - \lambda_4) \{ \exp(-\lambda_4 t_1) - \exp(-\lambda_4 t_2) \}] + g_3[\lambda_4\lambda_3/(\lambda_4 - \lambda_3) \{ \exp(-\lambda_3 t_1) - \exp(-\lambda_3 t_2) \} + 1/(\lambda_3 - \lambda_4) \{ \exp(-\lambda_4 t_1) - \exp(-\lambda_4 t_2) \}] + g_4/\lambda_4 \{ \exp(-\lambda_4 t_1) - \exp(-\lambda_4 t_2) \}$$

α 線計測では, ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Bi (正しくは, その壊変生成核種である ^{214}Po) からの α 線を計測するから, $F_i(t_1, t_2)$ にそれぞれの全計数効率 ($\varepsilon_1, \varepsilon_2, \varepsilon_4$) を乗じて和を取り, それに試料容積と ^{222}Rn 濃度を乗ずれば, 期待計数値が得られる。

下 道国 (しも みちくに)

1943 年大阪市生れ。名古屋大学卒業後, 名古屋大学工学部助手, 爾来, ラドンを中心とした放射線測定技術開発・研究および放射線防護関連ならびに放射線技師教育の仕事に従事。

E-mail: shmmchkn@sf.commufa.jp