総 説

居住環境中のラドン濃度の測定[†]

黒澤龍平

早稲田大学理工学研究所

162 東京都新宿区喜久井町 17

Key Words: radon monitor, passive type, diffusion collecting, electrostatic collecting, living environment

1. 緒 言

ウランやトリウムなどの天然放射性核種は、微量とていうものの地殻中に広く分布している。そのため、それらの壊変生成物であるラドンやトロン、およびその娘核種も濃度の差こそあるものの地表付近の大気中に広く存在する。また、ウランやトリウムを主成分とはしないまでも、それらを比較的多く含む鉱物も局所的とはいえ幅広く分布している。建物内のラドンの供給源は、一般的に土壌と考えられている。すなわち土壌中のラジウムから解放されたラドンは土壌中の空隙を拡散により移動し、地表に達し、そこにたまたま家屋があればその内部に蓄積して高い濃度を示すものと考えられている。また、建築材料中にも何等かの形でラジウムが含まれ、それが建物内のラドンまたはトロン濃度の一部を形成している場合も珍しくない。

ラドンは不活性気体であり、それのみを吸入しても呼吸器管の被曝量はそれほど高くはならないが、その娘核種は空気中のエアロゾルに付着するなどして粒子的な性質を示し、一部が気管支内壁に付着するため大きな被曝量を与えるものと考えられている。この被曝量を直接求めることはできないが、空気力学的に求めた付着率の計算結果と付着部位の解剖学的な知見から推定¹⁾されている。この値が地殻中の放射性核種や宇宙線などによる従来の天然のバックグラウンド線量に匹敵する程度であることが国連報告などで発表され、関心が持たれるようになった。それとともにその存在はすでに知られていたが、一般の関心の対象ではな

った住宅内のラドンの問題がクローズアップされるようになってきた。

屋内に限らず、一般環境中のラドンの濃度はその時の気圧・気温・風向・風速・天候などの気象条件や、その場所の土壌の構造や成分などの多くの要因によって変動する。そのため、ラドン濃度が通常のレベルより高いか否かの判定でさえ長期間の平均的なラドン濃度によって評価せねばならず、ましてその場所の平均的なラドン濃度を論議するのであれば、年単位での平均値が必要となる。また、ラドン濃度は住宅ごとに異なるともいわれることから、多くの地点で測定することも考えねばならない。そのため簡単な構造で長期間の平均値が求められるような方式が考えられ、これがいわゆるラドンモニターと呼ばれる passive 形式の積算型のラドン濃度測定器である。

ラドンモニターはラドン濃度の測定器であってラドン娘核種濃度の測定器ではない。したがって、被曝量の推定にはラドン濃度を娘核種濃度 (potential alpha energy 濃度: PAEC, もしくは平衡等価ラドン濃度) に変換しなければならない。この変換はかなり困難な作業であるにもかかわらず、無神経に近い方法 (たとえば 0.5 を乗ずる²⁾) で処理されているのが実情である。また、ラドン濃度評価についても、ラドンの同位体であるトロンの存在によって影響を受ける可能性があり、その場合には大幅な過剰評価の可能性もなしとはいえない。トロン濃度が高い場合にはラドン濃度も高いことが多く、したがってラドン濃度が高いといった傾向は把握されるかも知れないが、かなりの過剰評価が予想されるため、これらのいわば基本的な問題を充分認識したうえでラドンモニターを製作もしくは使用する必要があると考えている。

[†] Monitoring of Radon Concentration in Dwellings. Ryuhei KUROSAWA: Science and Engineering Research Laboratory, Waseda University, 17, Kikui-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 162.

2. ラドンモニターの構造と動作原理

2.1 モニターの形式

passive 型と呼ばれるモニターの形式は、空気試料の採取にエネルギーを消費せず自然法則、たとえば拡散などによって試料を採取する方式である（検出に多少のエネルギーを必要としても passive 型と呼ばれている）。そのため多量の空気試料を採取することができず、したがって感度は当然低くなり、所定のラドン濃度まで測定するには長時間放置（曝露）しなければならない。しかしエネルギー消費がなく、ポンプ類などによる騒音もまったくなく、しかも構造が簡単で価格も安いので広い地域の住宅などを対象にした環境測定に適しているといえよう。その反面、感度が低ばかりでなく試料の取込みに動力採取のような定量性が期待できないため、感度の安定性に欠ける点がある。これに対し試料の採取にエネルギーを使用する方式を active 型と呼ぶ。active 型式のラドンモニターは高感度で信頼性も高く、ラドン濃度の時間的変動も把握できるが、住宅内での使用には形状が大きき、また試料吸引のためのポンプの騒音が嫌われること、さらには価格が高く多数の測定点を設定しにくいこともあって、何等かの理由で詳細な測定を必要とする場合は別として、通常の住宅内でのラドン濃度評価に使用されることはない。

passive 型式のラドンモニターは、原則としてろ過機構を有する容器とその中に設置した検出器によって構成されている。容器の材質は価格の点からプラスチックの場合が多いが、安定性の見地からいえば金属の方が良い。容積は 20 cm^3 程度から 7 l 程度の製品まで種々である。ろ過機構としては、通常フィルタが使われている。フィルタの種類も多く、孔径の小さなメンブランフィルタからガラス繊維ろ材に至るまで広範囲の製品が使用されている。フィルタの目的は、これによって空気中のラドンのみを通過させ、娘核種や他の粒子状物質を阻止するとともに、容器の容積とも関連して容器内に流入するラドンの速度をコントロールすることにあるが、多くのラドンモニターはこのコントロール機能を見捨てて設計されているように思われる。

容器内の適当な位置に検出器が設置されている。検出器としては通常 α 線の検出と検出器に入射した α 線の数に記憶できるような、たとえば硝酸セルロース、CR-39、マクロフォルなどの飛跡検出器や TLD 素子、また半導体検出器とメモリー用 IC の組合せなどが使用されている。

測定する対象はラドンおよび容器内でラドンより生成した娘核種から放出される α 線である。ラドンは不活性の気体なので容器内に一様に拡がっていると考えられるが、娘核種は後に述べるように、人為的な電場を与えぬ限り拡散によって容器内壁に付着しているものと考えられる。ただプラスチック製のように局部的に帯電する可能性のある容器の場合は、娘核種の付着分布の一様性が失われ、時として感度に影響するものと考えられるが、これに関する詳細な検討を行った例は見えていない。また、感度を高くするため検出器と容器内壁の間に適当な電位を与え、その多くが正の電荷を有するラドンから生成した直後の娘核種 (^{218}Po) を検出器付近に集める方式がある。このために電池などが用いられるが、ポテンシャルを与えているのみということから passive 型の範疇に入れている。電池の代りにエレクトレットを使用した例もある。電場を与えない時は、壁に付着した娘核種から放出される α 線と容器内のラドンの α 線の両者を検出することになるので、容器の大きさを α 線の飛程以上に大きくすると感度は低下するが、電場を与えた場合は強制的に娘核種を集めることができるため、大型の容器を使う傾向にある。

2.2 フィルタの機能

多くのラドンモニターではフィルタを介して外気と容器内のラドンが流入し両者間の平衡が保たれる。容器内のラドンやトロン濃度を推定するため、フィルタを通過するラドンの割合がフィルタの両側すなわち容器内外のラドン濃度の差に比例すると考えると、フィルタの面積を $S\text{ m}^2$ 、ラドンの通過に対するフィルタの抵抗を $R\text{ s}\cdot\text{m}^{-1}$ 、容器内外のラドン濃度を C_1 、 C_0 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 、容器の容積を $V\text{ m}^3$ 、ラドン（またはトロン）の壊変定数を $\lambda_n\text{ s}^{-1}$ として時間 $t\text{ s}$ について

$$\frac{dC_1}{dt} + \left(\lambda_n + \frac{S}{RV} \right) C_1 = \frac{S}{RV} C_0 \quad (1)$$

が成立する。 $S/RV = B_v$ とし、さらに $t=0$ で $C_1=0$ と考えると、式(1)より、

$$C_1 = \frac{B_v}{(\lambda_n + B_v)} C_0 (1 - e^{-(\lambda_n + B_v)t}) \quad (2)$$

となり、定常状態では、

$$C_1 = \frac{B_v}{(\lambda_n + B_v)} C_0 \quad (2')$$

となる。ここで、 B_v の選択が問題である。ラドンモニターはラドン濃度の測定器なので、

$$C_1 \doteq C_0$$

の関係が期待され、また歓迎せざる存在であるトロンに対しては、

$$C_1 \ll C_0$$

の関係も同時に期待される。ラドンとトロンの壊変定数はそれぞれ $2.098 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, $1.247 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。したがって容器内のトロン濃度を容器外の 1/100 にするためには式 (2') より $B_v = 1.26 \times 10^{-4}$ とする必要がある。その時の容器内のラドン濃度は、

$$C_1 = 0.984 C_0$$

となり、外気のそれより 1.6% 程度低くなる。また容器の容積 V が小さくなれば同じ B_v を与えるため S/R を小さくしなければならない。 B_v をどの程度にするかは測定する場所のトロンとラドンの濃度比を考慮して定めねばならないが、これは予想されないことが多い。多くのラドンモニターではこれについての配慮に欠けているようである。なお、ミリボア RA (孔径 $1.2 \mu\text{m}$) で実測した R は $930 \text{ s} \cdot \text{m}^{-1}$ であった。 S をある程度に保ちつつ、 R を選択してラドンの流入速度を調整した方がよいように思われるが、適当なフィルタがなく S で調整することになる。

2.3 拡散付着型 (cup 型) モニターの感度

容器内で生成した娘核種は、いわゆる free 成分 (凝結核すなわちエロゾルに付着していない成分) である。検出器を設置し測定開始した直後はエロゾルの濃度は外気と同様であろうが、時間とともに次第に減少し、それとともに free 成分の割合は増加し、遂には見掛上ほとんどが free 成分となるであろう。free 成分は拡散速度が大きく短時間のうちに容器内壁に付着する。この型のラドンモニターは後述の理由から小型で大きくとも 200 cm^3 程度である。いま半径 3.5 cm の球を考え拡散係数を $0.06 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ($0.054 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ といわれるが実測するとこれより大きな値が得られることが多い) とすると球内壁の拡散による付着割合³⁾ は

$$\frac{\bar{n}(t)}{n_0} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{1}{m^2} \exp\left(-\frac{m^2 \pi^2 D t}{R^2}\right) \quad (3)$$

として表わされる。ここで、 $\bar{n}_0$, $\bar{n}(t)$ は始め ($t=0$) と時間 t 後の粒子濃度、 D は拡散係数、 R は球の半径、 t は経過時間である。式 (3) より約 8 秒で容器内の free 成分の濃度の 1/2 は壁面に付着することが分かる。したがって、 ^{218}Po の半減期を考慮すると、 ^{218}Po の free 成分の 95% 以上が容器内壁に付着するものと考えられる。そのため容器内に設置した検出器には、①容器内に浮遊しているラドン、②容器内壁に付着したラドン娘核種 (^{218}Po と ^{214}Po)、③検出器面上に付着した

ラドン娘核種、のそれぞれが放出した α 線がそれぞれの効率を持って入射する。この型式のラドンモニターの感度は上記の 3 種の線源からの α 線をいかに効率良く検出するかにかかっている。この感度の概念を把握するため、半径 R の半球状の容器の底面中央に検出器が設置された理想的な形状のモニターを仮定し、簡略化した計算を行うことにする。初めに直感的に半径 R はラドンの放出する α 線の空気中の飛程約 4.08 cm よりやや少ない 3.6 cm より小さくしなければならぬことが推定される。 4.08 cm と 3.6 cm の差約 0.5 cm (約 1 MeV に相当) の残存飛程は、検出し得る最低のエネルギーとストラグリングによる低エネルギー側への拡がりに対応する。検出器は必ずしもすべてのエネルギーの α 線に対し同じ入射角まで有効に検出する訳ではないが、ここでは概念的な把握を目的としているため、そのような理想的な検出器が設置されていると仮定する。

容器内に浮遊しているラドンから放出される α 線が検出器の微小面積 ΔS に入射する α 線の本数 I_1 は、 C_0 をラドン濃度、また検出器の法線から測った α 線の入射角を θ とし、半球の中心から距離 r と $r+dr$ の間の球殻中のラドンから放出され検出器に入射し検出される α 線の本数を下記のように積分すれば求められる。ここで θ_c は検出可能な最大の入射角 (臨界角) である。

$$\begin{aligned} I_1 &= \int_0^R \int_0^{\theta_c} C_0 \frac{\Delta S \cos \theta}{4 \pi r^2} \cdot 2 \pi r \sin \theta \cdot r d\theta dr \\ &= \int_0^R \int_0^{\theta_c} \frac{C_0 \Delta S \cos \theta \cdot \sin \theta}{2} d\theta dr \\ &= C_0 \cdot \frac{\Delta S \cdot R}{8} (1 - \cos 2\theta_c) \quad (4) \end{aligned}$$

一方、容器内壁に娘核種が一様に付着していると仮定すると、その面密度は、

$$\frac{2}{3} \pi R^3 C_0 / (2 \pi R^2 + \pi R^2) = C_0 \frac{2}{9} R \quad (5)$$

となり、この娘核種から放出される α 線のうち検出器に入射し検出される本数 I_2 は、

$$\begin{aligned} I_2 &= \int_0^{\theta_c} C_0 \frac{2}{9} R \cdot \frac{\Delta S \cos \theta}{4 \pi R^2} \cdot 2 \pi R \sin \theta \cdot R d\theta \\ &= C_0 \cdot \frac{\Delta S}{9} R \int_0^{\theta_c} \sin \theta \cos \theta d\theta \\ &= C_0 \frac{\Delta S R}{36} (1 - \cos 2\theta_c) \quad (6) \end{aligned}$$

となる。検出器面上に付着した娘核種のうち検出器で検出される本数 I_3 は、

$$\begin{aligned} I_3 &= \int_0^{\theta_c} C_0 \frac{2 \Delta S}{9} R \frac{1}{2} \sin \theta d\theta \\ &= C_0 \frac{\Delta S R}{9} (1 - \cos \theta_c) \quad (7) \end{aligned}$$

となる。検出器に入射し検出される全 α 線の数 I は α 線を放出する娘核種が2核種あるので、

$$I = I_1 + 2I_2 + 2I_3 \\ = C_0 \cdot \Delta S \cdot R \left\{ \frac{1}{8} (1 - \cos 2\theta_0) \right. \\ \left. + \frac{1}{18} (1 - \cos 2\theta_0) + \frac{2}{9} (1 - \cos \theta_0) \right\} \quad (8)$$

となる。これよりこのような条件では検出器に入射し検出される α 線の数 I は、ラドンの α 線の飛程の範囲内で R に比例し I_1, I_2, I_3 の順に少なくなることが分かる。 θ_0 が 90° の時は、

$$I = C_0 \cdot \Delta S \cdot R \{0.250 + 0.111 + 0.222\} \quad (9)$$

であるが、CR-39などの臨界角でも 75° を超えることはないので θ_0 を 75° とすると、

$$I' = C_0 \cdot \Delta S \cdot R \{0.233 + 0.104 + 0.165\} \quad (9')$$

のようになる。臨界角の減少に対し第3項の変化が著しい。この傾向は検出器の性質や容器の形状によって多少異なるが大勢として類似する。式(9')の場合、 $R = 3.5 \text{ cm}$, $\Delta S = 1 \text{ mm}^2$ とすると、 1 n/mm^2 のエッチビット密度当たり $659 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ の積算ラドン濃度となり、たとえば 0.3 n/mm^2 を検出限界とすれば、90日間の曝露で $2.2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ の濃度まで検出できることになる。これがこの種のモニターの感度の限界であろう。筆者が製作したモニター⁴⁾の感度は 1 n/mm^2 当たり $810 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ で、同一条件での検出限界は $2.7 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ の濃度となっている。ここで感度に寄与する割合は容器中のラドンの α 線が45%前後、容器内壁に付着した娘核種の放出する α 線が20%前後、検出器表面に付着した娘核種の放出する α 線が30%前後であることに留意されたい。

2・4 静電捕集型ラドンモニター

娘核種を拡散付着によって捕集する場合に限界があることは前項で述べた。それ以上高い感度を実現するにはactive法か静電捕集法が使用される。娘核種 ^{218}Po がラドンから生成したさい、その約88%が正の電荷を有しているといわれている⁵⁾。したがって容器内に適当な電場が作られれば、このような ^{218}Po は負電極に捕集される。移動速度はその部分の電場強度を $E \text{ V/cm}$ とし ^{218}Po を単独の正イオンと考えれば⁶⁾, $1.41 \times E \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ の速度となる。また酸化ポロニウムと仮定した時 $(1.86 \pm 0.11) E \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ との報告⁵⁾もある。これらの値のみから考えれば、電場強度がそれほど高くなくとも充分機能するはずであるが、電子親和性の強い気体、たとえば H_2O , NO_2 , SO_2 などによって ^{218}Po の移

動が妨害される。水蒸気の場合は水の放射線分解によって生じた free radical の OH 基が電子を捕え負に帯電し、正の電荷を持つ ^{218}Po イオンと結合し、それを中和するためと説明されている。これを防ぐには電場強度を著しく強くして ^{218}Po の移動速度を早くし、再結合を起こす確率を低くしなければならない。ある論文⁵⁾によれば 20°C で相対湿度80%の状態で電極間の距離を 10 cm とした時 H_2O との結合を防ぐために 260 V/cm の電場強度を必要とするとされている。しかし実測した結果からでは、それほど電場強度の必要はないように思われるが、少なくとも $30 - 50 \text{ V/cm}$ 程度は与えるべきであろう。

湿度に関する対策として除湿剤を容器内に設置すれば良いが、モニターの目的から長期間環境中に放置されるのでその間除湿能力を保持させねばならない。モニターの容積や気候条件にもよるが、除湿剤は通常1か月か1か月半程度で能力を失うことが多いので、除湿能力が制限されても長期間使用できる除湿剤容器などを開発し、少なくとも3-4か月間その能力を保持させる必要があろう。除湿剤として五酸化リンか塩化カルシウムが使用される。シリカゲルはラドンをわずかながら吸着するので好ましくない。

感度に影響があるとされている電子親和性のある気体として NO_2 , NO , NH_3 や SO_2 などが上記論文に挙げられ、その中の NO_2 は 100 ppb 程度でも影響があるとされていた。この計算のプロセスは報告されておらず、結果のみでありその正当性について疑問があったため、 NO_2 濃度が 0 ppm の場合と 0.5 ppm の場合について ^{218}Po イオンの再結合による損失の差について簡単に比較したが、多少の差は見られるものの有意の差とは考えられず、したがって上記のような極低濃度の NO_2 の影響は疑問のように思われる。しかしこの種の問題はこの方式のモニターにとってきわめて重要であり、再度実験的に確認する必要がある。

静電捕集型のモニターは拡散付着型に比して充分過ぎるほど高感度なので、検出器の感度を多少低くしても実用性を失うことはない。そのためエネルギー弁別性を持たせた飛跡検出器や、入射した α 線の本数の読み出しが容易な、たとえばTLD素子などを使用することも可能である。

電場は通常高圧の乾電池によって与えられる。電力消費は装置内のリークのみならばまったくないと考えて良いが、乾電池内でリークが起きるため次第に消耗する。また野外で使用すると装置の表面でのリークが起きるためか消耗がはげしく、大略2-3年位しか使

用できない。電池を使用せずエレクトレットを利用することも考えられているが実用化はされていないようである。

2・5 吸着捕集型モニター

ラドンを吸着するたとえば活性炭を利用したモニターがある。活性炭はラドンを良く吸着するといわれているが、ラドンは不活性気体なので物理吸着で活性炭(g^{-1})と空気(cm^{-3})の間のラドンの分配係数はそれほど大きくなく、常温で 10^4 以下である^{7),8)}。気温が上昇すると分配係数が小さくなることは良く知られているとおりである。

活性炭吸着法で平均ラドン濃度を求める場合、基本的に全活性炭重量で平均した総ラドン吸着量が、積算中の最低ラドン濃度に対する飽和吸着量以下でなければならない。通常活性炭を適当な容器に入れ測定環境に放置しラドンを吸着させている。その時ラドンは活性炭容器の片側より拡散によって深い位置に侵透する。そのため活性炭層内にラドン濃度の分布ができ、しかも外気側の吸着量が高いため、一度吸着したラドンの離脱も考えられる。とくにラドン濃度が急激に低下した場合にはその危険性がきわめて大きくなる。したがって活性炭量や曝露時間についての慎重な対応が必要であるが、きわめて安直に扱われていることが多い。また、空気中の水蒸気によって一度吸着したラドンが離脱するともいわれている⁹⁾。実験的に湿気によるラドンの離脱を確認したことはないが、湿度が高くなると吸着能力は著しく低下する。これを防ぐため、活性炭容器の入気流側にシリカゲルなどの除湿剤を挿入すると良い結果が得られる。シリカゲルもラドンを吸着するが分配係数は 10^3 以下であり、この部分でラドンを吸着しても感度に影響を与えることはない。

2・6 ラドンモニターの検出器

モニターの検出器として通常飛跡検出器が使用される。この他に TLD 素子が使われることもあり、また ZnS シンチレーション検出器や半導体検出器が IC メモリーと組み合わせられて使用されることもある。

飛跡検出器としては硝酸セルロース (CN) フィルムが古くから知られている。現在、Kodak-Pathe 社の LR-115 が α 線計測用の CN フィルムとして広く使われている。この検出器は透明なベース上に赤色に着色された薄い CN フィルムが貼りつけられ、エッチピットができると透明に近い穴として観察されるため、低倍率に拡大しただけで容易に計数されるようになる。

CN フィルムの欠点は約 4 MeV 以上 (エッチング条件で異なる) の入射 α 線に対してエッチピットを作らないことである。また、4 MeV 以下であってもフィルムに垂直から約 45° 位までの間に入射しないと同様に検出されない。しかしこれを逆に利用してアルミ箔や空気層を入射 α 線に対する減速材とし、特定のエネルギー範囲の α 線のみを検出することも可能である。たとえば ^{210}Po の α 線 (6.0 MeV) のみを検出 (実際には ^{210}Bi の α 線も検出される) するといったことが行われている。

アリルジグリコールカーボネート (ADC) モノマーの重合体で代表されるプラスチックはきわめて感度が高く、ほとんどすべての天然の核種の放出する α 線を検出することができる。また、検出可能な入射角の範囲も 70° 以上⁴⁾ にまで広がっている。この種の検出器として CR-39、TS-16 やバリオトラックなどが市販されている。このうち、TS-16 (現在製作されていないという) とバリオトラックは放射線 (α 線や陽子) の検出用として製造され、製品はすぐれた安定性を示している。CR-39 はプラスチックレンズの材料で価格は安い、放射線検出用としてはノイズ (疑似エッチピット) や性能上のムラが多いといわれている。

ポリカーボネートも検出器として使用されている。これにはマクロフォルがある。検出し得るエネルギー範囲は CN フィルムよりはるかに低いが、非常に薄く丈夫なフィルムが得られるので、電気化学的エッチングが可能である。これは膜状の検出器の両側に電解液とエッチング液を浸し両者に、たとえば 800 V, 2000 Hz の交番電圧を与えながらエッチングする方法で、大略同一で非常に大きい (目視できる) 特徴のある形状 (金平糖のようにトゲのある円形) のエッチピットができる。このエッチングに先立って通常の化学エッチングを行い、検出面の疑似エッチピットを取り除くとともに、バルクのエッチングにより検出器の表面を削り検出可能なエネルギー範囲を広げることがある。電気化学的エッチングは専用のホルダー類が必要なため任意の枚数の検出器をエッチングするには不便である。

TLD 素子によっても α 線を検出し、入射本数 (近似的にエネルギーと本数の積) を記録することができる。この素子によって信頼性のある記録が得られれば、読み出しがきわめて簡単でかつ客観的なので飛跡検出器で見られるような煩雑さから解放されることになる。そのためには、 α 線が素子の有感部にほとんど損失を受けずに入射しなければならないので、TLD 素子の

有感部が大気に露出している必要がある。このような素子として化成オプトニクス製のMSO-5Dまたは10D、松下電器産業製のUD-100 M8が市販されている。両製品とも α 線の検出は可能であるが、ラドンモニターの性質上長時間放置して α 線の入射本数を積算する必要があり、そのため相当量の γ 線の照射を受けるので、 γ 線に対する感度が低く α 線のような粒子線に対する感度が高いような形状、すなわち素子の本体の厚さが薄く、かつ有効面積の広い素子が適しているものと思われる。上記3者のうちUD-100 M8が最もそれに近い。TLD素子の入射した α 線に対する発光効率(エネルギー吸収に対する発光量)は、いずれの素子も γ 線に対するより1桁程度低く、また発光量も入射した α 線のエネルギーと完全な比例関係にはなく、低エネルギー側(2.5 MeV以下、ことに1 MeV以下が著しい)が湾曲(低エネルギー側の感度が低い)しているが、ラドン濃度の測定の場合には問題とならない。TLD素子は γ 線によるバックグラウンドの妨害を受けるため、飛跡検出器より感度は低くなる。

3. ラドンモニターの事例

3.1 モニターの選択

モニターを選択する場合にはモニターの感度も重要であるが、近年の知見からトロンの有無も重要な検討対象となった。一般環境中のトロンの濃度は非常に低いとされていたが、わが国の関西地方の住宅内でのラドンモニターによるラドン濃度評価値の中に、時として異常に高い濃度を示す例があり、その原因は関西に多い土壁に含まれている放射性鉍物からトロンの放出されていることにありと推定された。土壁の厚さは薄く、したがってトリウム系の鉍物が存在すれば壁付近のトロンの濃度はラドン濃度より遥かに高くなることが拡散理論から容易に想像される。実測された極端な例では、壁から8 cmの距離でトロンの濃度とラドンの濃度比が30:1であり、0.8 m位の距離では5.6:1であったという。このような例から、トロンの流入をなんらかの方法で少なくし、モニター内外のトロンの濃度比を1:100程度まで下げる必要があるのではないかと考えている。市販のほとんどのラドンモニターはこの点の配慮が充分なされているとはいえないようである。静電捕集方式は非常に高感度であるが、妨害気体の影響が議論されており、これについての本格的な検討が必要である。しかし感度以外の種々の利点があり、それらを考慮して選択すべきであろう。

3.2 bare型¹⁰⁾

これは最も簡単なラドンモニターである。あまりにも簡単なので市販されてはいないのではないかと思う。これはCR-39などのADC重合体の飛跡検出器を厚紙の上に貼りつけて測定箇所放置する形式で、そのためにbare型と呼ばれている。空気中のラドンおよび娘核種と検出器上に付着した娘核種から放出される α 線がエッチピットとして検出される。(式(4)参照)滋賀大学のグループによれば、CR-39のエッチピットの形状にはある程度のエネルギー依存性があり、 α 線のエネルギーが高い時は小さくかつくさび状になり、低くなるに従い大きくなるとされている。一方空気の移動がなければ娘核種の多くは拡散により検出面の近くに流入し検出面に付着するため、空気中のラドンと娘核種はエッチピットの形状などからある程度識別は可能だが完全な分離は無理なように思われる。

3.3 cup型

2.3で述べた形式で、ラドンカップなどということもある。きわめて多くの種類があるが、基本的には大略同一の構造である。前項に大略の形状を述べたが、近年は比較的小容積のモニターが使われるようになった。たとえばRadtrak(図1)という商品名で売られているモニターを例にとる。これはTerradex社から発売*されている。このモニターはラドンが入らぬよう密封した袋に入れて送付されてくるので、使用する直前に開封し測定すべき環境に放置する。放置(曝露)

図1 ラドトラック
穴 2.54 cm^2 ($6 \text{ mm} \phi \times 9$)

* 国内では長瀬ランダウン株式会社が扱っている。

図2 西独で開発された passive 型ラドンモニター

図3 ラドン・トロン弁別型ラドンモニター

時間は感度の点から3か月以上とされている。適当な曝露期間後添付されたシールでモニターの入気部分を密封し、Terradex社に送り返しそこでモニター内部の飛跡検出器(10×20 mmのバリオトラックという)を化学エッチングしエッチピットを自動計数してラドン濃度を算定する。モニター容器は導電性と思われるプラスチック製で、直径26.5 mm、高さ24 mmの円筒状容器の上部に直径6 mmの9個の穴があり、ろ紙が取り付けられている。測定し得る積算濃度は $30 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1} \cdot \text{day}$ ($1.1 \times 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$)以上とされ、したがって3か月の曝露では $12 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (0.33 pCi/l)の濃度まで数値を出すことができる。EPA(米国環境保護庁)の安全基準レベルは $4 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1}$ で、またICRPによる天井値は平衡等価ラドン濃度で $100 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (ラドン濃度で大略 $5.4 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1}$ 位に相当)なので、それから見れば充分な感度であるが、わが国の場合はやや不足で、

6か月の曝露が必要であらう。この種のモニターは換気速度が非常に早く、したがってトロンが存在するとそれだけ過剰評価になるので、もしこのモニターを採用するのであれば事前に使用する環境の調査をした方がよい。9個の穴のうち、8個をふさぎ1個にしてもトロンに対する感度にはそれほど大きな差はないはずである。

前記のモニターより大型の例として、ドイツのカーlsruhe原子力研究所で開発したcup型のモニター(図2)について説明する。このモニターの内容積は 450 cm^3 でcup内の気体の1/2がグラスファイバー紙を介して外気と交換するのに44秒を要するという。(式(2)の B_v は $1.58 \times 10^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ となる)。したがって容器内のトロン濃度は外気の約56%に減少するに過ぎない。6か月程度の曝露期間の後1時間のプレエッチングを行い、さらに3.5時間の電気化学エッチングをすると目視できる程度のエッチピットが得られる。エッチング液は8N KOH 80%とエタノール20%の混合液で電解液は1N KOH水溶液である。検出体はポリカーボネート(厚さ $300 \mu\text{m}$ のマクロフォル)で電圧として2000 Hz, 800 Vが与えられる。感度はラドンに

対し $0.0218 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} / \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ ときわめて低いが、計数面積が広いため6か月の曝露で $3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ のラドン濃度まで求められる。このモニターもトロンが存在すれば過剰評価を起こす可能性がある。

放射線医学総合研究所では新しいラドンモニター¹¹⁾(図3)を開発した。それは直径120 mmと75 mmの二つのステンレス製の半球を、底面の平面部で中心を一致させて上下に結合したような形状をしている。120 mm半球の底(75 mm半球の底面の外側)に14 mmφの穴が8個あり、グラスファイバー紙が貼りつけられている。75 mm半球は密封され、底面に直径1 mmの穴が120 mm半球の底との間にあけられている。ラドンを含む試料空気は8個の穴から大型の半球内に侵入し、その一部がさらに1 mmの穴を通して小

* 1 n/mm^2 に対し $4587 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ 。

さい半球に移行する。それぞれの半球の底面にポリカーボネート（三菱ガス化学製ユピロン，厚さ 300 μm ）膜が検出器として設置されている。それぞれの半球内気体の交換時間は 15.89 回/時，0.379 回/時である（ B_v : $4.4 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, B_v : $1.05 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ）。エッチングは 120 mm 半球の方がプレエッチング 3 時間，75 mm 半球の方が 75 分で電気化学的エッチングは両者とも 3 時間である。ラドンとトロンのに対する感度は $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ に対し 120 mm 半球は 0.0299 n/cm^2 , 0.0127

n/cm^2 , 75 mm 半球は 0.0395 n/cm^2 , 0.00001 n/cm^2 以下とされている。このため二つのポリカーボネートのエッチピット密度からラドンとトロンの両者の濃度が分離して求められる。この測定結果を見ると，トロンの予想以上の範囲で分布しているようである。現在，ラドンとトロンの両者を区別して検出し得る passive 方式で cup 型のモニターは市販されておらず，ユニークな検出器なので紹介する。トロンの濃度がラドン濃度より著しく高い時はこの種の方法で対応せざるを得ないと思われる。

図4 静電捕集型ラドンモニター (CN フィルム使用)

図5 静電捕集型ラドンモニター (TLD 素子使用)

3.4 静電捕集方式

ラドンより生成した直後の ^{218}Po の大部分は正の電荷を持ち，負電極に捕集されることはすでに述べた。原理的には数 V/cm の弱い電場強度でも十分な効果があるが，電子親和性のある気体（たとえば H_2O , NO_2 , NO , SO_2 , etc）による再結合を避けるため，ある程度高い電場強度を与える必要がある。しかし高い感度を得るためには，電場を与えた部分の容積を大きくし，しかも検出部の面積を小さくしなければならぬといった構造上の制約のため，強い電場を与えることは難しい。

名古屋大学で開発されアロカ社から発売されているラドンモニター¹²⁾ (図4) は内容積が 1 l で容器内気体の $1/2$ が交換する時間は 110 分（ B_v : $1.05 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ）である。315 V の電池（電場強度大略 45 V/cm ）により直径 12 mm のアルミイラ上に娘核種が捕集される。このアルミイラの内側に CN フィルムが設置されている。娘核種から放出された 6 MeV の α 線はアルミイラと空気層内で減速され，CN フィルムで検出され，それ以上のエネルギーでは検出されない。すなわち ^{218}Po と ^{212}Bi の α 線が検出され， ^{214}Po や ^{212}Po (^{216}Po ?) の α 線は検出されない。このモニターの感度は直径 12 mm の CN フィルムに 1 日当たり 100 個のエッチピットを作るのに $2.58 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$

のラドン濃度で良いとされている。これは 1 n/mm^2 のエッチピット密度当たり $2.92 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ に相当する。検出器での弁別効果があるため、換気率によってトロンの影響を減少させた以上の（3倍近く）トロン除去効果がある。このモニター内には五酸化リンを使った乾燥剤が設置されているが、その効力が2か月とされ、したがって曝露期間は2か月以内となるが、それでも十分な感度を有している。

筆者が開発しアサノ電子社から発売されたモニター（図5）は7 l のステンレス容器内に負電極を兼ねた検出器があり、負の約1000 V が電池によって与えられている。検出部は TLD 素子（UD-100 M8）で、それによって静電捕集された娘核種の α 線や β 線が検出される。この TLD 素子に 5 MeV の α 線が150-170本入射した時、1 mR 相当 (^{60}Co でその TLD 素子を照射した時の線量) の発光がある。素子の直径が8 mm なので、これは $3-3.5 \text{ n/mm}^2$ に相当する。このモニター内の気体の1/2が換気する時間は17分である ($B_v: 6.80 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) (現在フィルタ部を交換し113分になるよう変更しつつある)。このモニターの感度は1 mR 当たり $5.34 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{day}$ であるが、 γ 線のバックグラウンドの影響を受けるため、10 mR 程度の発光量を必要とする。この TLD 素子は CaSO_4 を樹脂とともにコーティングしてあり、アニーリングや測定のための加熱によって次第に着色の度を増し、感度が変化する。そのため ^{30}Co の γ 線を一定量照射し感度補正を行う必要がある。この補正により素子の感度が当初の75%程度まで低下しても充分使用することができる。

3.5 counter 方式

国内ではほとんど研究されていないし passive 型と呼ぶことに抵抗を感じるが、cup 型の飛跡検出器の代りに半導体検出器や ZnS シンチレーション検出器を使用したラドンモニターが発売されている。

フランスの Centre de Radio Protection dans les Mines で開発された Radhome P (図6) はきわめて優美な形状のモニターである。このモニターは有効面積 450 mm^2 の半導体検出器を直径 6 cm 位の半球の中に設置している。内容の詳細は不明であるが、フィルタを介してラドンやトロンをこの半球に導き、その中で生成した娘核種の α 線とともに検出しているものと推定される。この方式では、トロンの α 線のみを弁別することはできないが、 ^{212}Po の α 線は弁別できるので、トロン濃度を求めることも不可能ではない。測定したデータはマイクロプロセッサによりメモリーに保存さ

図6 Radhome P

れ、後刻その時間経過とともに読み出すことができる。4個のリチウム電池を使用し6か月使用することができる。感度はそれほど高くなく、 $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ に対し 0.03 c/h で6時間の計測で $30 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ (5.4 カウントになる) まで測定できるという。

カナダの Pylon 社から ZnS シンチレーション検出器を使用した model PRD-1 が発売されている。これも詳細は不明であるが、ポリウレタンフォームのメンブランろ材を介して 275 ml の円筒容器中にラドンを拡散によって導入する。この容器の内壁に ZnS シンチレータが塗布されている。容器内のラドン濃度は30分で外気中のラドン濃度と平衡するとされているので、交換時間は10-15分位と考えられる。ZnS の発光数は PRD-1 と接続した同社の model AB-5, Portable Radiation Monitor の光電子増倍管によって検出され、そのモニター内のメモリーに蓄積される。ポンプを使用していないので電力消費はきわめて少なく、商用電源が切れた状態でも同モニター内のバックアップ用電池で3日間以上動作を継続することができる。また、これを自動車用の蓄電池に切り換えると2-4か月の連続使用が可能である。メモリーされた情報(一定時間間隔ごとの計数)は AB-5 にプリンタを接続し打ち出すことができる。このモニターの感度は $1.25 \text{ c} \cdot \text{min}^{-1} / \text{pCi} \cdot \text{l}^{-1}$ でバックグラウンドの影響もあって、大略 $1 \text{ pCi} \cdot \text{l}^{-1}$ ($37 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) とされている。

この形式のラドンモニターはいずれも感度が低く、

わが国では物足りぬ感じがするが、時間経過に対するラドン濃度の変化状態が求められ、さらに直接計数もしくは濃度の形で読み出されるので質の高い情報を得る手段として優れている。将来、なんらかの手段で感度を上げることができれば、この種のモニターが主流となるのではないかと期待される。

4. 結 言

以上に主として passive 形式のラドンモニターについて述べた。いずれの方法にも一長一短があり万能的な方式はない。現在簡便さの点から cup 型のモニターが主流であるが、これによれば長期間のラドンの平均濃度は求められるものの、異常値が出た場合にその原因や異常の有無の確認などをするには不適當である。したがって、この種の測定は詳細な調査を行うためのスクリーニングと考えるべきであろう。被曝評価上対象となる核種はラドンやトロンではなくその娘核種であり、したがって本来はその濃度 (PAEC) を測定すべきであるが、active 形式以外適当な方法がなく止むを得ずラドンやトロン濃度を求めている点にも留意していただきたい。したがってスクリーニング後の調査ではラドン濃度ばかりでなく、PAEC も測定されることになる。また passive 形式の PAEC モニターの開発も必要だと考えられる。人が生活している空間に割り込む形でモニターを設置するため、設置場所や設置期間、さらにはモニターの形式などに制約があり、それに応じて適切な測定法を選択しなければならないが、必ずしも適切な方法が見い出せないのが現状である。将来は現在の cup 型モニターより詳細で信頼性のある情報が得られ、かつ簡易な構成のモニターが開発されるのではないと思うが、それまでは従来の cup 型モニターに多少手を加えて調査範囲を拡げることが必要であろう。

active 形式のモニターの種類は非常に多く、被曝評

価上重要な情報が得られるが、本稿ではすべて割愛した。またラドンモニターの校正法もきわめて重要なテーマであるが紙面の関係もありまったく触れぬことにした。測定法と校正法は不可分な手法ではあるが、ラドンモニターの校正は通常の放射線計測器の場合とは異なり簡易な方式が開発されていないのでその確立が急がれている。

この総説が住宅内のラドン濃度の測定法の選択に役立てば幸である。

文 献

- 1) "Dosimetry Aspects of Exposure to Radon and Thoron Daughter Products", OECD, NEA, Sept. (1983)
- 2) "Lung Cancer Risk from Indoor Exposures to Radon Daughters", ICRP Publication 50, Pergamon Press (1987)
- 3) 高橋幹二: "基礎エアロゾル工学", 養賢堂, 東京 (1972)
- 4) 黒澤龍平, 他: 早稲田大学理工学研究所報告, 117輯, 85-88 (1987)
- 5) Hopke, P.K.: *Health Phys.*, **57**, (1), 39-42 (1989)
- 6) Price, W. J.: "Nuclear Radiation Detection", McGraw-Hill (1985)
- 7) 黒澤龍平, 他: 日本鉱業会誌, **79**, (902) 72-77 (1963)
- 8) 黒澤龍平: 早稲田大学理工学研究所報告, 42輯, 1-11 (1968)
- 9) Starik, I.E. "放射化学の基礎", (市川, 岡下, 石渡訳), 南江堂, 東京 (1962)
- 10) 青山 喬, 他, 私信
- 11) 土居雅広, 私信
- 12) Iida, T. et al.: *Health Phys.*, **54**, 139 (1988)