

# 地下水中の原位置ラドン測定 手法に関する研究（継続）

（核燃料サイクル開発機構 委託研究成果報告書）

1999年3月

岐阜大学教育学部  
田 阪 茂 樹

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒708-0698 岡山県苦田郡上齋原村 1550 番地  
核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター  
施設管理部 管理課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Co-ordination Section, Facility Management Division,  
Ningyo-Toge Environmental Engineering Center,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute,  
1550 Kamisaibara-son, Tomada-gun, Okayama-ken, 708-0698,  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2000

公開資料  
JNC TJ6400 2000-007  
1999年3月

## 地下水中の原位置ラドン測定手法に関する研究

岐阜大学教育学部  
田阪 茂樹

### 要旨

平成8年度はフォトダイオード（PD）を用いた水中ラドン検出器（PD水中ラドン検出器）が開発された。この検出器を試錐孔の深さ1mに投入して、水中ラドン濃度を測定している。水中に溶解しているラドンガスは検出器の底部開口端に装着されている機能性ガス分離膜を透過して検出器に入ってくる。検出器内のラドンは崩壊してラドン娘核種を生成する。このとき娘核種は正イオンになっているので、静電捕集法を用いてPDの表面に集められ、それらの放出するアルファー線のエネルギーを高精度で測定する。

平成9年12月から、PD水中ラドン検出器を使用して、露天掘場跡地中央のH1試錐孔における観測を開始した。しかし、この井戸では地下水の流動が非常に少なく、硫化水素やメタンなどの不純ガスが発生して水中に溶解しており、ラドンガスといっしょに検出器内に入ってくる。そのため、PDを用いた静電捕集法では、ラドン娘核種が不純ガスや水蒸気の影響で電気的中和作用を起こして、ラドン検出感度が低下することが判明した。

そこで平成10年度は、光電子増倍管（PMT）とシンチレーターの組み合わせによる水中ラドン検出器（PMT水中ラドン検出器）の開発に取り組んだ。PMT水中ラドン検出器は静電捕集法を用いてないので、PD水中ラドン検出器よりも効率よくラドンを検出できることが期待される。光電子増倍管には浜松ホトニクス（株）の「R7354」を、シンチレータは化成オプトニクス（株）の「ZnS:Ag」を用いた。新たにPMT用の增幅回路と高圧回路を製作した。検出容器はPD水中ラドン検出器とまったく同じのものを使用した。

次の3つの異なるガス雰囲気中でラドンの検出感度を求める実験を行った。第1は二酸化炭素ガス雰囲気中、第2は窒素ガス雰囲気中、第3は純空気中で相対湿度が10%から60%の雰囲気中である。その結果、PMT水中ラドン検出器のラドン濃度校正係数は、3つの異なるガス雰囲気中でも、 $0.59 \pm 0.07[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ とほぼ誤差の範囲内で一定であることが分かった。一方、PD水中ラドン検出器のラドン濃度校正係数は、0.045から0.089 $[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$ の範囲で変化することが分かった。新しく開発されたPMT水中ラドン検出器は、PD水中ラドン検出器と比較して、約7倍以上のラドン検出感度を持ち、電気的中和作用の影響を受けないということが明らかになった。

Studies on the in-suit method of the radon measurement in the underground water

Shigeki Tasaka

Faculty of Education, Gifu, University

### Abstract

We have developed an underwater radon detector of the use of a PIN Photodiode(PD)on 1996. This detector was put into the monitoring well at the depth of a meter, and has been monitoring the continuous radon concentration in the well. A microporous flat sheet membran is attached to the window of the bottom of the detector. Gas dissolved in the underground water pass through the membran of polypropylene with the hydrophobic properties. The principle of radon detection which is used in the detector is the electrostatic collection of the daughter nuclei of  $^{222}\text{Rn}$ , and the energy measurement of the alpha decay with PD. More than 90% of  $^{218}\text{Po}$  atoms, which was one of the daughter nuclei of  $^{222}\text{Rn}$ , tended to become positively charged. A negative high voltage is supplied to the p-layer of PD. The detector vessel is grounded. Then, an electric field is produced in the vessel. The daughter nuclei which ionized positively are collected on the surface of PD, the energy of alpha decay are measured.

the the small-sized underwater radon detector(PMT underwater radon detector)made of a Photomultiplier Tube and a ZnS scintillator. They say that the Photomultiplier Tube isn't influence by neutralization. We compare PMT underwater radon detector with PD underwater radon detector. As a result in NINGYO TOGE NUCLEAR FUEL CYCLE DEVELOPMENT INSTITUTE.

calibration factor:

PMT  $0.610 \pm 0.0065[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

PD  $0.045 \pm 0.008 [(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

in the  $\text{N}_2$ gass:

PMT  $0.576 \pm 0.061[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

PD  $0.068 \pm 0.007 [(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

in the  $\text{CO}_2$ gas:

pump ON PMT  $0.478 \pm 0.048[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

PD  $0.055 \pm 0.006 [(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

pump OFFPMT  $0.564 \pm 0.056[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

PD  $0.067 \pm 0.007 [(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

and relative humidity 10%~42% in the pure air:

PMT  $0.588 \pm 0.059[(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]; (\text{const})$

PD  $0.089 \pm 0.009 \sim 0.045 \pm 0.008 [(\text{RaC}'/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$

# 目 次

第 1 章 序論 · · · · ·	1
1-1 ラドン観測について · · · · ·	1
第 2 章 水中ラドン検出器 · · · · ·	2
2-1 ラドン濃度測定器について · · · · ·	2
2-2 検出原理 · · · · ·	2
第 3 章 PMT水中ラドン検出器の開発 · · · · ·	6
3-1 目的 · · · · ·	6
3-2 光電子増倍管とは · · · · ·	6
3-3 シンチレータとは · · · · ·	7
3-4 検出原理 · · · · ·	8
3-5 PMT水中ラドン検出器の出力レベル調整方法 · · · · ·	12
第 4 章 人形峠における検出器校正実験 · · · · ·	13
4-1 目的 · · · · ·	13
4-2 ラドン校正用チャンバーの校正 · · · · ·	13
4-3 測定方法 · · · · ·	14
4-4 実験結果 · · · · ·	16
第 5 章 岐阜大学水道水中ラドン濃度の測定 · · · · ·	20
5-1 目的 · · · · ·	20

5-2 実験方法	20
5-3 実験結果	21
5-4 考察	22
第6章 電気的中和作用による検出効率への影響	25
6-1 電気的中和作用とは	25
6-2 濃度校正システム	26
6-2-1 電離箱	26
6-2-2 システム構成図	29
6-3 窒素ガス霧囲気中におけるラドン濃度校正実験	31
6-3-1 目的	31
6-3-2 実験方法	31
6-3-3 実験結果	32
6-3-4 考察	34
6-4 二酸化炭素ガス霧囲気中による電気的中和作用の影響	38
6-4-1 目的	38
6-4-2 実験方法	38
6-4-3 実験結果	39
6-4-4 考察	41
6-5 純水による電気的中和作用の影響	42
6-5-1 目的	42

6-5-2 実験方法	42
6-5-3 実験結果	43
6-5-4 考察	45
第7章　まとめ	46
第8章　将来の展望	47
8-1　電気的中和作用の実験より	47
8-2　PMT水中ラドン検出器を用いた測定について	47
8-3　PMT水中ラドン検出器の温度特性	47
参考文献	48

## 表・図

表 1	シンチレータの種類	7
表 2	ZnS(Ag)の規格	7
表 3	イオン化ポテンシャル	25
表 4	電離箱の仕様	27
表 5	振動容量電位計仕様	28
表 6	ラドン濃度校正係数	41
Fig. 1	自然放射線の壊変系列	4
Fig. 2	深井戸用PD水中ラドン検出器の概略図	5
Fig. 3	光電子増倍管の構造図	6
Fig. 4	深井戸用PMT水中ラドン検出器の概略図	9
Fig. 5	增幅回路の実体配線図	10
Fig. 6	PMT水中ラドン検出器用電子回路図	11
Fig. 7	高圧電源調整回路の実体配線図	12
Fig. 8	人形峠校正チェンバー外観図	14
Fig. 9	校正チェンバー内のラドン検出器、データロガー、アンプ電源、ノート・PCの様子	15
Fig. 10a	PMT水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度	17
Fig. 10b	98年11月4日～11月12日PMTのパルスハイト分布	17
Fig. 11a	PD水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度	18

Fig. 11b	98年11月4日～11月12日PDのパルスハイト分布	18
Fig. 12a	温度計の校正直線	19
Fig. 12b	湿度計の校正直線	19
Fig. 13	実験用水槽	20
Fig. 14	12月4日から12月19日のカウント数の変動	21
Fig. 15	12月4日から12月19日のカウント数の変動	21
Fig. 16	PD水中ラドン検出器における12月4日と12月13日の比較	22
Fig. 17	PMT水中ラドン検出器における12月7日と12月18日の比較	23
Fig. 18	電離箱の概略図	26
Fig. 19	電気的中和作用の実験で用いたシステム構成図	29
Fig. 20	チェンバー拡大図	30
Fig. 21	PMT水中ラドン検出器の校正係数とカウント数	32
Fig. 22	PD水中ラドン検出器の校正係数とカウント数	33
Fig. 23-1	電離箱のラドン濃度	34
Fig. 23-2	電離箱のラドン濃度	35
Fig. 24	PMT水中ラドン検出器の校正係数	36
Fig. 25	PD水中ラドン検出器の校正係数	36
Fig. 26	チェンバー内の温度変化	37
Fig. 27	PMT水中ラドン検出器におけるカウント数の変動	39
Fig. 28	PD水中ラドン検出器におけるカウント数の変動	39
Fig. 29	チェンバー内における温度と湿度の変化	40

Fig. 30	チャンバー内における湿度の変化	40
Fig. 31	湿度上昇におけるPMT水中ラドン検出器のラドン濃度とカウント数の変化	43
Fig. 32	湿度上昇におけるPD水中ラドン検出器のラドン濃度とカウント数の変化	43
Fig. 33	湿度上昇におけるPMT水中ラドン検出器の校正係数の変化	44
Fig. 34	湿度上昇におけるPD水中ラドン検出器の校正係数の変化	44

## 写真

写真 1	カビによって劣化したシンチレータ	24
------	------------------	----

## 第1章 序論

### 1-1 ラドン観測について

ラドン( $^{222}\text{Rn}$ )はウラン系列の放射性稀ガスであり、20世紀初頭に発見され、今日では地球上に広く分布する放射線源であることが知られている。最近になってさらに様々な目的でラドン及びその娘核種の観測が実施されるようになってきた。

ラドンは水への溶解度が高く、地下水等に溶けて移動したり、地下深部の岩盤が圧力を受けてできた割れ目などから地下水と共に湧出し大気中へ拡散しやすい性質を持っているため、地下深部の情報や大気の状態変化を見る上での有効な物質として注目され研究されてきている。その一例として、地震の前兆現象としてのラドンの濃度変化が観測された事例も数多く報告され、地震予知の観測項目として系統的な調査がされてきている。

他にも、土壤や岩石からの放射性核種の影響を考えていく上でもラドン観測が重要な役割を果たしている。また、生活環境において、粉塵に付着しているラドン娘核種を吸い込むことによる人体への影響調査など、保健物理分野での保健衛生上の問題としての注目もを集めている。このような現状の中で、今後ラドンの観測の機会が増えてくるであろうし、その観測目的も多様化してくるであろう。

## 第2章 水中ラドン検出器

### 2-1 ラドン濃度測定器について

1983年中島による卒業研究において、PIN フォトダイオード (PD) を用いたラドン濃度計測器が開発された。この測定器は、 $^{222}\text{Rn}$  の娘核種である  $^{218}\text{Po}$  (RaA)、 $^{214}\text{Po}$  (RaC')、 $^{210}\text{Po}$  (RaF) と  $^{220}\text{Rn}$  の娘核種である  $^{216}\text{Po}$  (ThA)、 $^{212}\text{Po}$  (ThC') を PD の表面に電気的に吸着させ、これらが崩壊するときに放出する  $\alpha$  線を、PD で捕えて、そのとき生成した電子を増幅器で電圧に変換して測定するというものである。

また、1993年中川、岡澤による卒業研究によって、水中ラドン検出器が開発された。この検出器は、従来のラドン検出器と、水を通さずラドンガスを透過することができる機能膜を組み合わせたものである。この検出器を水中に沈めることによって、水中のラドン濃度を測定することができる。

なお、今回の新型水中ラドン検出器開発の元となった深井戸用ラドン検出器は、1997年川口による卒業研究で開発されたものである。川口により開発されたこの検出器は、機能膜に「セルガード 2400」が用いられており、水中に沈めた状態で水中ラドン濃度が測定できる水没型である。今回開発した新型の水中ラドン検出器については、第3章で述べる。

### 2-2 検出原理

ウラン系列の  $^{222}\text{Rn}$  は、ラジウム  $^{226}\text{Ra}$  の壊変によって生成され、3.8日の半減期で崩壊し、 $^{218}\text{Po}$  となる。さらに、崩壊を繰り返し、 $^{214}\text{Po}$ などを経て、安定な鉛  $^{206}\text{Pb}$  になる。この中で  $^{218}\text{Po}$  は 6.00MeV、 $^{214}\text{Po}$  は 7.69MeV の  $\alpha$  線を放出する。Fig.1 にこれらの自然放射線の崩壊系列を示す。

この  $\alpha$  線のエネルギーを測定できれば、その母核種を特定することができる。そこで、これらの娘核種の 80%以上が正に帯電しているという性質を利用して、PIN 接合型半導体 (PIN フォトダイオード) 検出器の表面と容器の間に -120V の電位差をかけて、帯電しているラドン娘核種を強制的に付着させ、そこで放出される  $\alpha$  線をエネルギー分解能 40keV の高精度で測定している。これを静電捕集法という。

PIN フォトダイオードとは、PN 接合型半導体の P 層と N 層の間に I (intrinsic) 層が存在するものである。

PN 接合型半導体において、P 層と N 層との接合部では、電子・正孔対が生成されるため、この接合部には、キャリヤー（電子、または正孔）の欠乏した空乏層と呼ばれる層ができる。PIN フォトダイオードでは、P 層と N 層の間の I 層で電子・正孔対が生成される。PN 接合型半導体との違いはこの電子・正孔対の発生領域が低不純物としている点である。I 層はキャリヤーが存在しない。つまり、I 层が存在することにより、空乏層の領域は広がる。

この PIN フォトダイオードに外部から、P 側に負の、N 側に正の逆バイアス電圧をかけることにより、キャリヤーはさらに移動し空乏層はさらに大きくなる。この空乏層はキャリヤーがほとんど存在しないため高い抵抗の領域となり、電圧はほぼこの部分にかかることになる。

この空乏層にラドン娘核種が放出した  $\alpha$  粒子が入射した場合、飛跡の近くでは  $\alpha$  粒子の

持つエネルギーによって空乏層中の原子間の結合の電子は電離され、電子の跡に正孔が生ずる。つまり、 $\alpha$ 粒子の持つエネルギーによってキャリヤーが生成される。1つのキャリヤーを生成するために必要なエネルギーは半導体の種類によって決まっている。(ここで使用されるシリコン半導体はその値が3.6eVである。)これは、 $\alpha$ 粒子のエネルギーに比例した個数の電子・正孔が得られるということである。そして逆バイアス電圧による電界により、電子と正孔それが逆方向に引き寄せられ、前置增幅回路に入力されてその個数に比例した電圧値の信号パルスに変換される。その後、電圧パルスは主增幅回路で増幅され、AD変換器でAD変換されてZ80のレジスターに取り込まれる。

静電捕集法の利点としては、それぞれ異なったエネルギーの $\alpha$ 線を放出するラドン娘核種を、別々に測定し、識別することができるため、そのエネルギーから母核種を特定することができるということ、高い濃度から低い濃度まで測定できるということがあげられる。しかしその一方で、温泉中など、水中にふくまれるCO<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>S、CH<sub>4</sub>といった不純ガスや水蒸気などにより、正に帯電した娘核種は、その何割かが中性化されてしまう。そのため、検出効率に大きく影響が現れるという欠点もあげられる。Fig.2にPD水中ラドン検出器の概略図を示す。

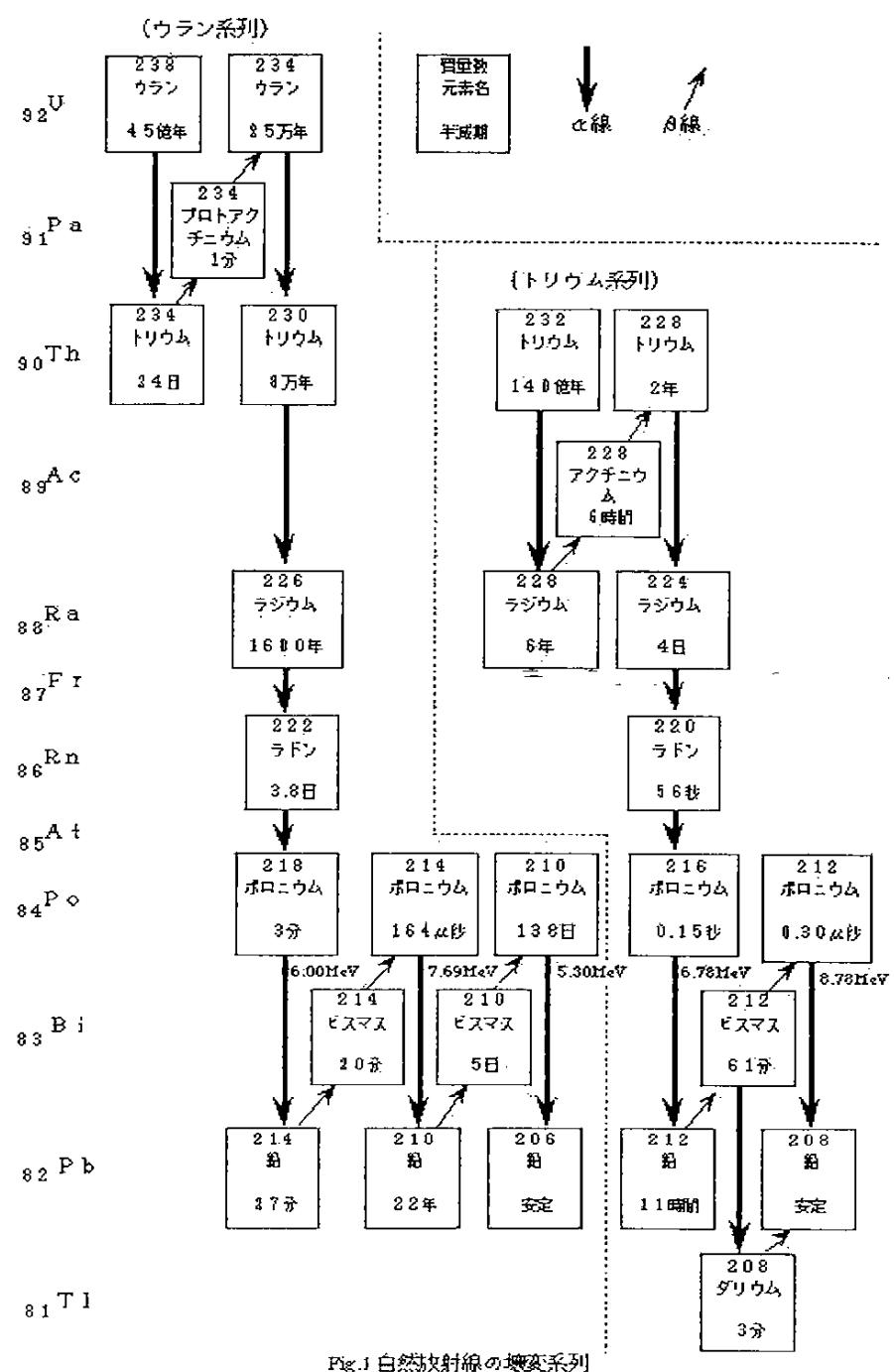


Fig.1 自然放射線の嬗変系列

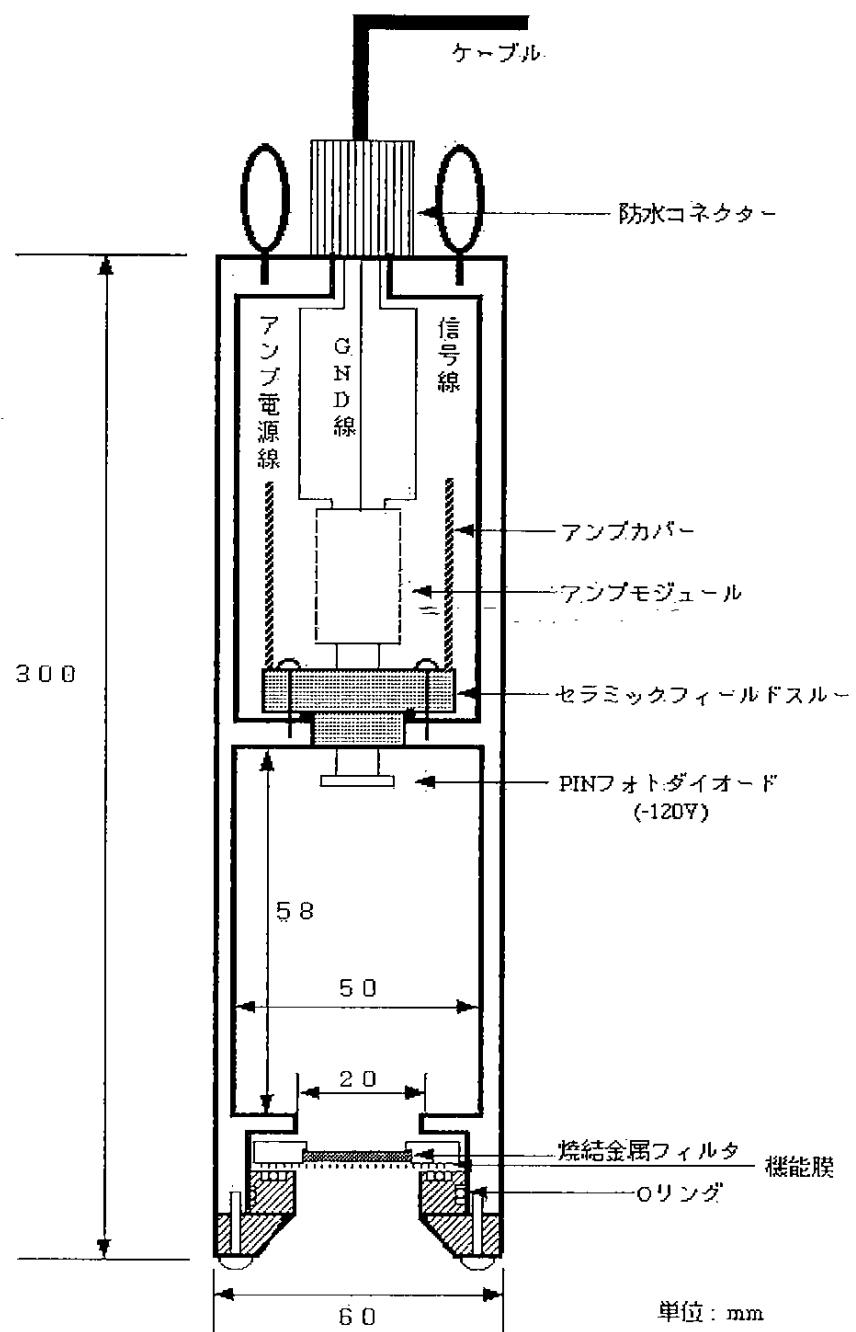


Fig.2 深井戸用PD水中ラドン検出器の概略図

## 第3章 PMT水中ラドン検出器の開発

### 3-1 目的

従来使用してきた PD 水中ラドン検出器は、前章でも述べたようにラドン娘核種のエネルギーから母核種を識別することができるということがあげられる。また、高濃度から低濃度まで測定できるということも大きな利点の1つである。しかし、一方で、捕集効率が湿度に依存するという欠点がある。水中という湿度100%の環境で用いられる PD 水中ラドン検出器にとって、この湿度への依存は、捕集効率低下に直接影響してくる。捕集効率を低下させる物質は水蒸気だけにとどまらず、温泉や火山ガスなどに含まれる  $\text{CH}_4$ 、 $\text{H}_2\text{S}$ 、 $\text{CO}_2$ などの不純ガスによっても電気的中和作用によって影響を受ける。より効率よくラドン濃度を測定するためには、自然環境による影響を受けにくい装置が理想である。そこで、今回新たに光電子増倍管 (Photomultiplier Tube : PMT) とシンチレーターの組み合わせによる水中ラドン検出器 (PMT水中ラドン検出器) の開発に取り組んだ。今回、光電子増倍管には、浜松ホトニクス(株)の「R7354」、シンチレータには、化成オプトニクス(株)の「7614 (ZnS : Ag)」を用いた。

### 3-2 光電子増倍管とは

光電子増倍管の歴史は、光電効果の発見から始まった。そして、光電面の発見、光電子増倍管を用いた光電管の開発へと進み、光電面に加えて二次電子増倍部（ダイノード）の開発とともに発展していった。

Fig.3 に、光電子増倍管の基本原理を示す。

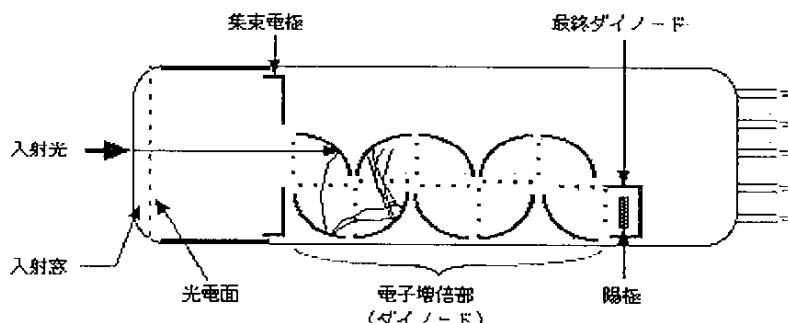


Fig.3 光電子増倍管の構造図

光電子増倍管はガラス管に封じられた真空管で、入射窓、光電面、電子増倍部より構成されている。

光電子増倍管に入射した光は以下に示す過程を経て信号出力される。

- 1) ガラス窓を透過する。
- 2) 光電面内の電子を励起し真空中に光電子を放出（外部光電効果）する。

3) 光電子は集束（フォーカス）電極で第一ダイノード上に収束され、二次電子増倍された後、引き続く各ダイノードで二次電子放出を繰り返す。

4) 最終ダイノードにより放出された二次電子群は陽極（アノード）より取り出される。

今回の実験で使用した PMT 「R7354」 の特徴は、28mm 径、全長 60mm の小型ヘッドオーブン型光電子増倍管で、光電面側面（前面より 20mm）まであり、かつユニフォミティーに優れるため、今回の開発研究に最適である。

### 3-3 シンチレータとは

シンチレータとは、放射線が入射すると、短い減衰時間を持った蛍光を発する物質である。シンチレータの種類を表 1 に示す。

表 1 シンチレータの種類

	無機シンチレーター	有機シンチレーター
特徴	・ハロゲン物質が多い ・発光効率、吸収係数が高く、光電効果の割合が高いが、潮解性を持っていたり、衝撃に弱いなど、取り扱いにくい面がある。	・一般に減衰時間が短く潮解性がない。 ・ $\gamma$ 線に対しては、吸収係数が低く、光電効果の割合が低いため、エネルギー分析には向かない。
種類	Nal(Tl)、CsI(Tl)、CsI(Tl) BGO、BaF <sub>2</sub> 、CdWO <sub>4</sub> 、PureCs、 ZnS(Ag) など	アセトラセン、スチベルン、 プラスチックシンチレータ など

今回の開発では、 $\alpha$  線によく反応する ZnS(Ag)を使用した。

規格を表 2 に示す。

表 2 ZnS(Ag)の規格

[会社名] 化成オプトニクス（株） [種別] モノクロ TV 用蛍光体(Blue) [品名] ZnS(Ag) [Lot.No.] 7614	<発光特性> 発光色 [X] 0.147 発光色 [y] 0.103 相対輝度 [Y] 101%  <備考> 反射法 50mg/cm <sup>3</sup> 電子線 12kV 1 $\mu$ A/cm <sup>2</sup>
<粒度分布> 重量中央粒径 9.6 $\mu$ m	Coulter Counter 法

### 3-4 検出原理

前章（2-2）で述べたように、 $^{222}\text{Rn}$  は崩壊を繰り返している。その時に放出される  $\alpha$  線がシンチレータ（ZnS : Ag）に当たると、光子（発光ピーク波長 450nm）が放出される。その光子が光電子増倍管の光電面（光陰極）に当たると、入射光のうち、ある割合で光電子に変換される。これらの光電子が、第一ダイノードとの間の電界で加速され、第一ダイノードに達し、一次電子よりも多くの二次電子を放出する。第一ダイノードから放出された二次電子の大部分は再び第一と第二ダイノードの間で加速されて、第二ダイノード達し、さらに多数の二次電子を放出する。その後同じ要領で二次電子は増倍されていく。光電子増倍管は光量に比例した電荷を出力するので、出力パルス波高は放射線のエネルギーに比例する。PMT から出力された電荷は、前置增幅回路により電圧パルスに変換される。その後電圧パルスはバッファ・アンプを通ることで増幅され、AD 変換器で AD 変換されて Z 80 のレジスターに取り込まれる。

今回使用した光電子増倍管のダイノードは 9 段で、PMT にはトリマーのワイパー電圧  $\times 250$  (V) の高電圧が印加される。本実験でのワイパー電圧は 2.95V であるから PMT には約 737.5V の電圧が印加されることになる。Fig.4 に PMT 水中ラドン検出器の概略図を示す。この検出器は、Fig.2 に示された PD 水中ラドン検出器の PD センサー部とアンプ部を PMT センサーとそのアンプに置き換えたものである。Fig.5、Fig.6 に増幅回路の実体配線図、電子回路図を示す。

この検出器は静電的にラドン娘核種を捕集するわけではないため、前章（2-2）で述べたような電気的中和作用の影響を受けることなくラドン濃度を測定することができるという利点がある。しかし、一方で、パルスハイット分布にピークが見られないため、ラドン娘核種を区別できないという欠点も持ち合わせている。

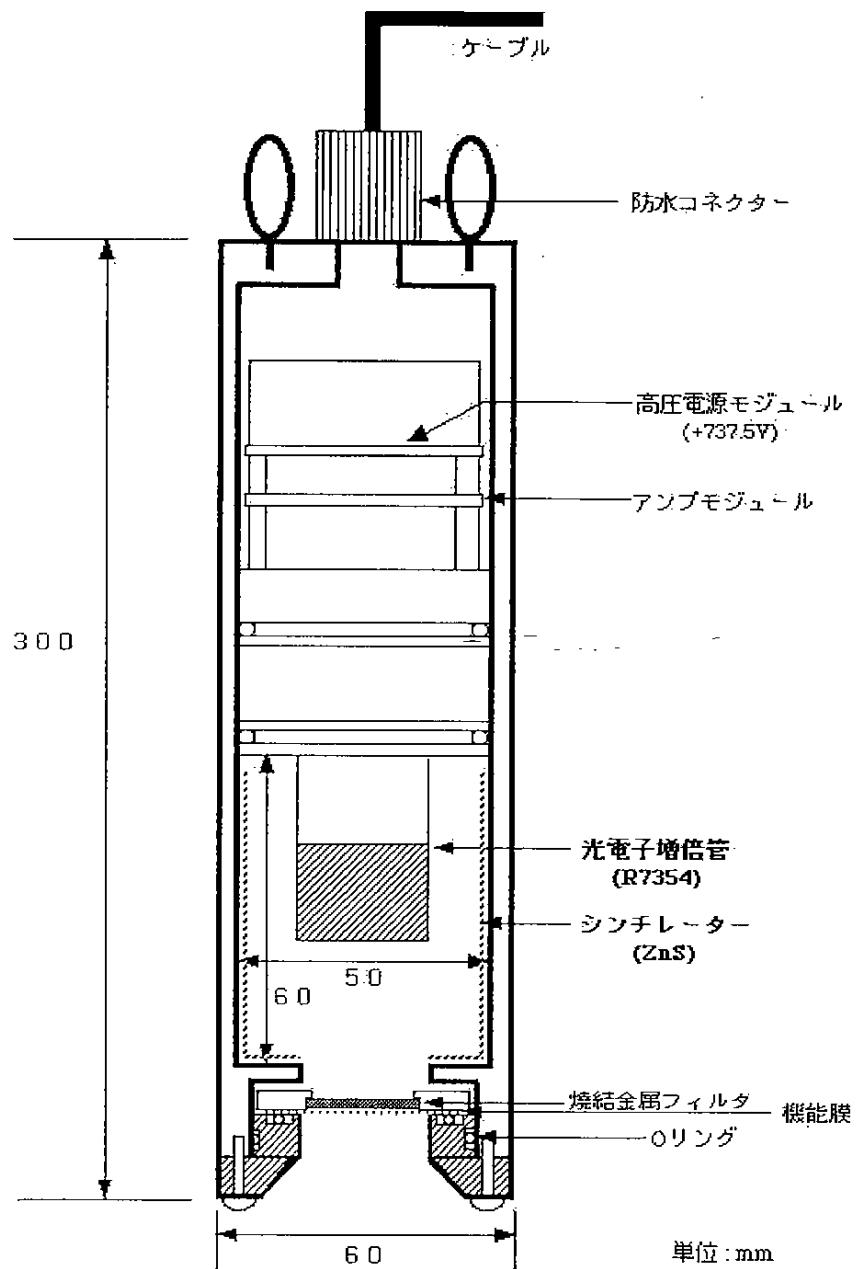
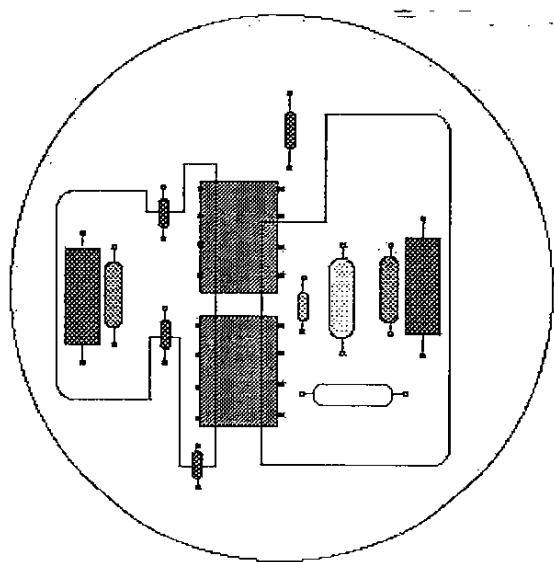
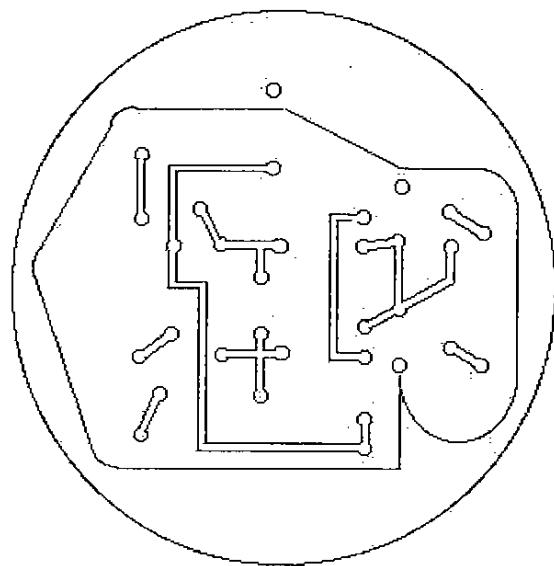


Fig.4 深井戸用 PMT 水中ラドン検出器の概略図



- コンデンサ 0.1  $\mu$ F
- コンデンサ 33pF
- ダイオード 1S953
- 抵抗 16k $\Omega$
- 抵抗 43 $\Omega$
- コイル 390  $\mu$

Fig.5 増幅回路の実体配線図

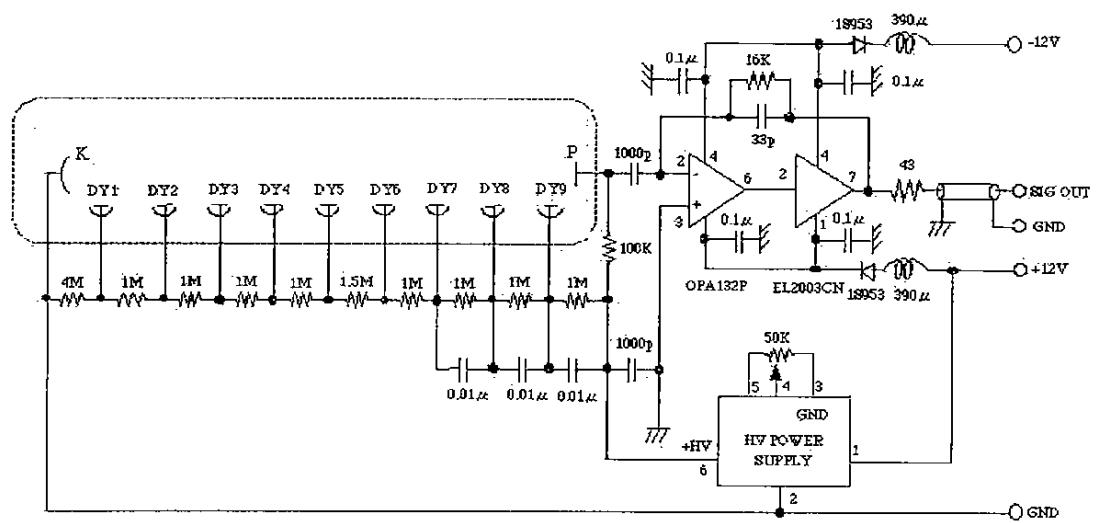


Fig.6 PMT 水中ラドン検出器用電子回路図

### 3-5 PMT水中ラドン検出器の出力レベル調整方法

PMT水中ラドン検出器の出力レベル調整（PMTに印加する高電圧調整）は、通常の室内光を遮蔽した環境下で、次の手順で行う。

- ①前方よりPMTに入射する光を完全に遮蔽する。
- ②+12V及び外部との接続（ケーブル）を切った状態で、回路側のケースを外す。
- ③PMT出力レベルは、高圧電源基板上のトリマーを回して調節する。

時計方向に回すことによりPMT出力レベルは上昇する。

$$\text{ワイヤー電圧} \times 250 \quad (\text{V})$$

ワイヤー電圧は、「ワイヤー」と「GND」間でモニターする。

PMT出力変化の目安として、ワイヤー電圧 0.16V（高圧で 40V）の差がPMT出力では約 1.5 倍の差となる。つまり、ワイヤー電圧+0.16VではPMT出力は 1.5 倍、-0.16Vでは 0.67 倍となる。Fig.7 に高圧電源調整回路の実体配線図を示す。

- ④+12V及び外部との接続（ケーブル）を切り、ケースを組み付ける。

(PMTがついている側から見た図)

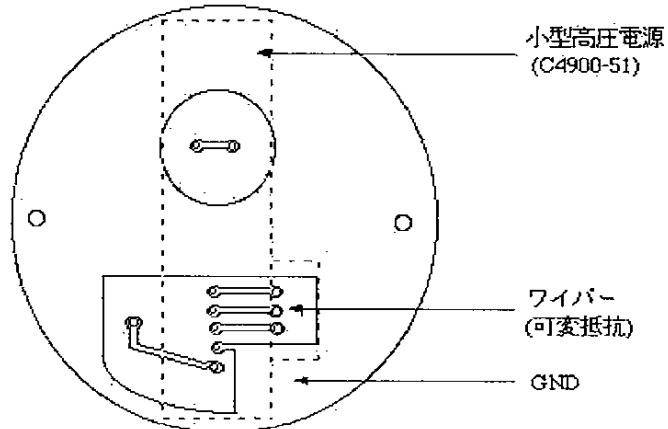


Fig.7 高圧電源調整回路の実体配線図

## 第4章人形峠における検出器校正実験

### 4-1 目的

密閉したチャンバー内に検出器を置き、温度、湿度、気圧を一定に保った環境下でラドン濃度を測定する。しかし、今回使用する2台の水中ラドン検出器は、まだ濃度校正係数が決まっていないため、正確なラドン濃度を表すことができない。従って、ラドン濃度の原器とされている電離箱を用いて、濃度校正係数を求める。また、昨年同条件下で校正を行った水上設置型ラドン検出器の校正係数の確認を行う。

### 4-2 ラドン校正用チャンバーの校正

本実験は、「核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター 安全管理課」に設置されている、ラドン校正設備を使用している。

本設備は、本体チャンバー、プロアーよりガスループ系により構成されている。校正チャンバーは、ラドン標準校正場の基礎をなすものであり、内部に校正される、測定器を設置し、ラドンガスを充満させ、校正用の電離箱でなかのラドン濃度を測定し、測定器の校正を行うものである。そのため、長期間安定したラドン濃度を保ち、かつ自然界のように濃度変化、気温湿度変化に対するラドン測定器の影響を調査できるものではなくてはならない。校正チャンバーの仕様概要は次のとおりである。外観図をFig.8に示す。

内容量：約7.5 m<sup>3</sup>

材質：ステンレス

形状：円筒形

設定濃度： $\sim 1600 \text{Bq}/\text{m}^3$

チャンバーの材質としては、全体の腐食を考慮し、ステンレスになっている。また将来的な娘核種の測定を考慮して、ラドンが崩壊して、生成するイオン化した娘核種が静電気によって、壁に沈着するのを防ぐため、接地している。また、人形峠事業所は、海拔700mの山岳地帯に位置しており、通常大気圧は700mmHg程度であるため、内圧をいわゆる、一般環境である1気圧(760mmHg)にするには、60mmHgの加圧に耐えることが必要である。よって、事業所よりも気圧の低い環境(海拔700m以上のところ)を模擬することも考慮に入れ、耐圧を100mmHgとした。

なお、ラドン発生源としては事業所周辺で採取した、低濃度のラジウムを含む土砂を利用している。

その他、チャンバー壁面には、チャンバー内の空気をサンプリングするためのサンプリング口、チャンバー内空気を循環するための口（入口、出口）、ラドンガス、エアゾル供給口を設けている。

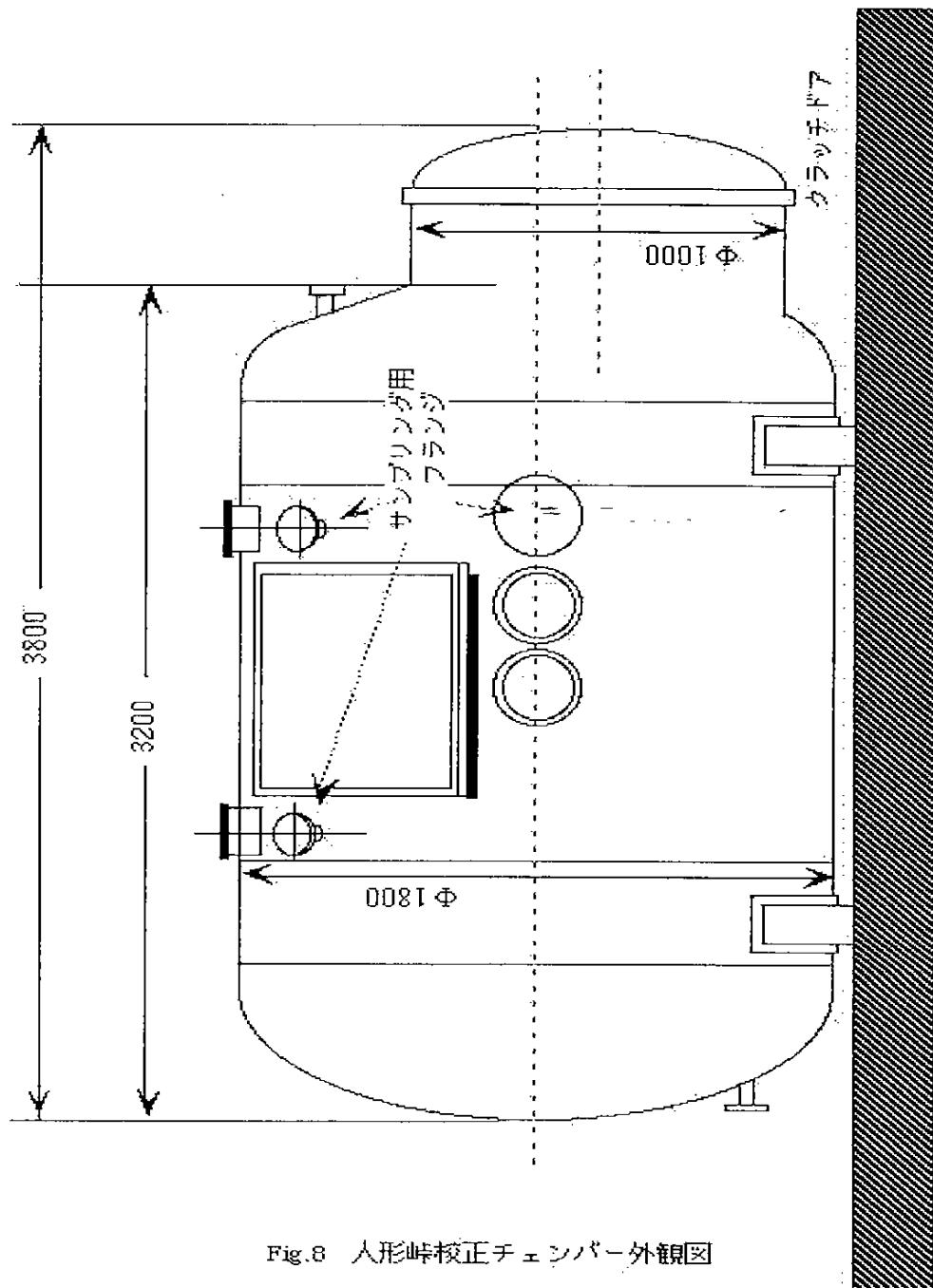


Fig.8 人形峰校正チャンバー外観図

#### 4-3 測定方法

「核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター」に設置されているラドン標準チャンバー内に、2台の水中ラドン検出器、2台の水上設置型ラドン検出器、温度計、湿度計、データロガー、ノートPCを並べ密閉しラドンガスを送る。チャンバー内の温度、圧力、湿度はコントロールされており、設定しておくと測定期間中の変動はない。チャンバーの中に入れるラドンガスは、ラジウムの濃度が10%ほど高い土をラドン発生源にしておりガス採取専用の気密性の高いアクリル製容器に入っているポンプでチャンバーに注入される。約200~300Bq/m<sup>3</sup>位のラドン濃度を注入するのに5分かかる。今回は約1600Bq/m<sup>3</sup>のラドンガスを注入した。チャンバー内のラドン濃度は、測定中にチャンバー内のサンプリングしたラドンガスを電離箱で測定する。電離箱は、国際校正基準機関のオーストラリア放射線研究所における、国際比較校正実験でその濃度誤差が、1.5%程度であることが確認されている。したがって、ラドン濃度校正の原器として、この電離箱を用いている。

測定機器の条件としては、Time - Interval は10分に設定し測定している。チャンバー内は次のようになっている。

湿度 60.0% (設定 60.0%)

温度 19.9°C (設定 20.0°C)

圧力 763mmHg

チャンバー内の検出器、データロガー、アンプ電源、ノートPCの様子をFig.9に示す。

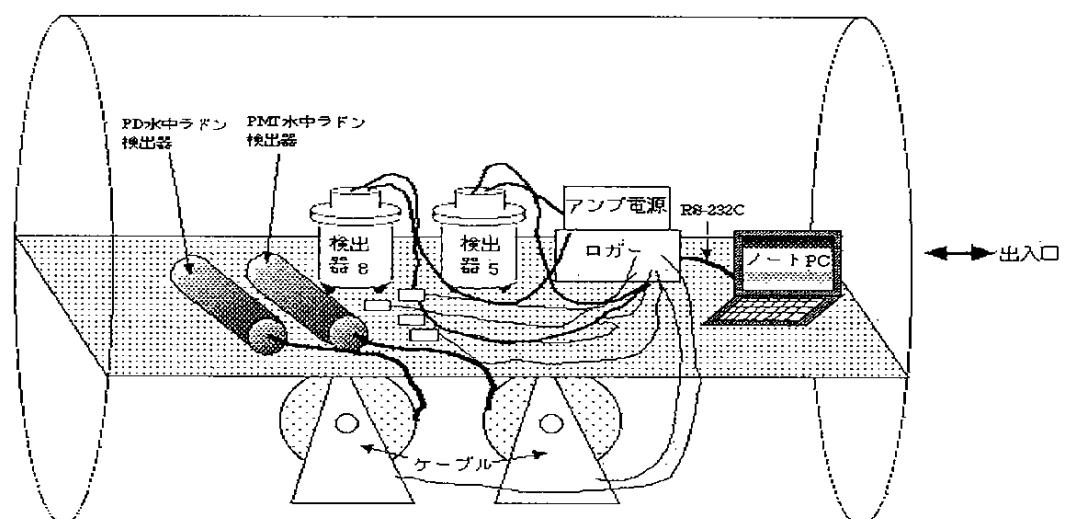


Fig.9 校正チャンバー内のラドン検出器、データロガー、アンプ電源、ノートPCの様子

#### 4-4 実験結果

人形峠における校正実験では、チェンバー内の湿度を約 60%に設定していたが、中に 設置しておいた 2 つの湿度計がどちらも約 42%を示していたことから、検出器周辺の湿度は 2 つの湿度計が示した値であると思われる。このときの 2 台の水上設置型ラドン検出器 (No.5、No.8) のカウント数とラドン濃度から求められた校正係数を次に示す。

水上設置型ラドン検出器 : (No.5)

RaA         $0.246 \pm 0.027$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup>)]

RaC'       $0.316 \pm 0.033$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

水上設置型ラドン検出器 : (No.8)

RaA         $0.146 \pm 0.017$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

RaC'       $0.224 \pm 0.025$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

1998 年大崎の卒業研究において求められた水上設置型ラドン検出器 (No.5、No.8) の 校正係数を次に示す。校正実験は今回と同様に、人形峠で同じ校正システム、同じ条件で行われた。

水上設置型ラドン検出器(No.5) :

RaA         $0.243 \pm 0.008$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

RaC'       $0.337 \pm 0.006$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

水上設置型ラドン検出器(No.8) :

RaA         $0.230 \pm 0.006$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

RaC'       $0.294 \pm 0.006$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup> )]

今回の校正実験では水上設置型ラドン検出器の No.5 が昨年度と同じ校正係数になったことから、今回の校正実験が信用のあるものとして 2 種類の水中ラドン検出器の校正係数を 求めたが、中に設置しておいた 2 台の湿度計が約 42%を示したことから、今回の校正係数を湿度 42%でのものとして扱うこととした。

Fig.10a に PMT 水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度を、Fig.10b に PMT 水中ラドン検出器のパルスハイト分布を示す。このときのカウント数とラドン濃度から求められた校正係数を次に示す。

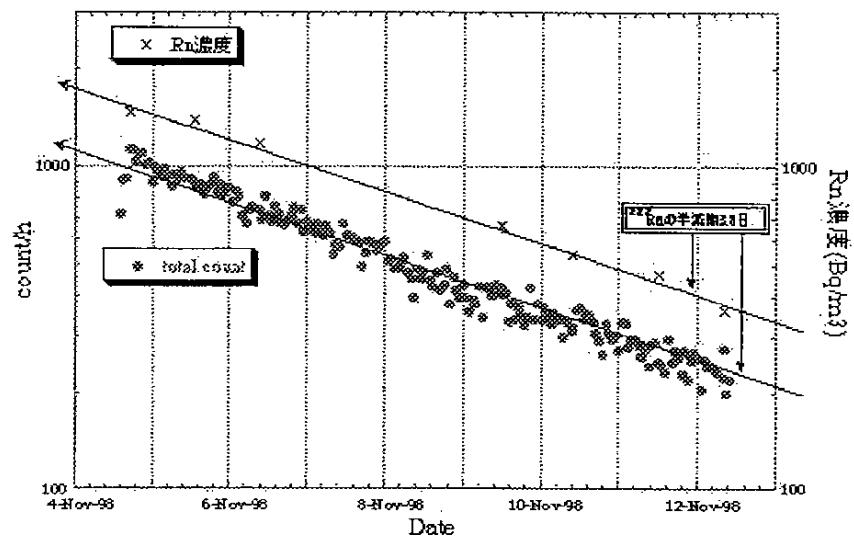


Fig.10a PMT 水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度

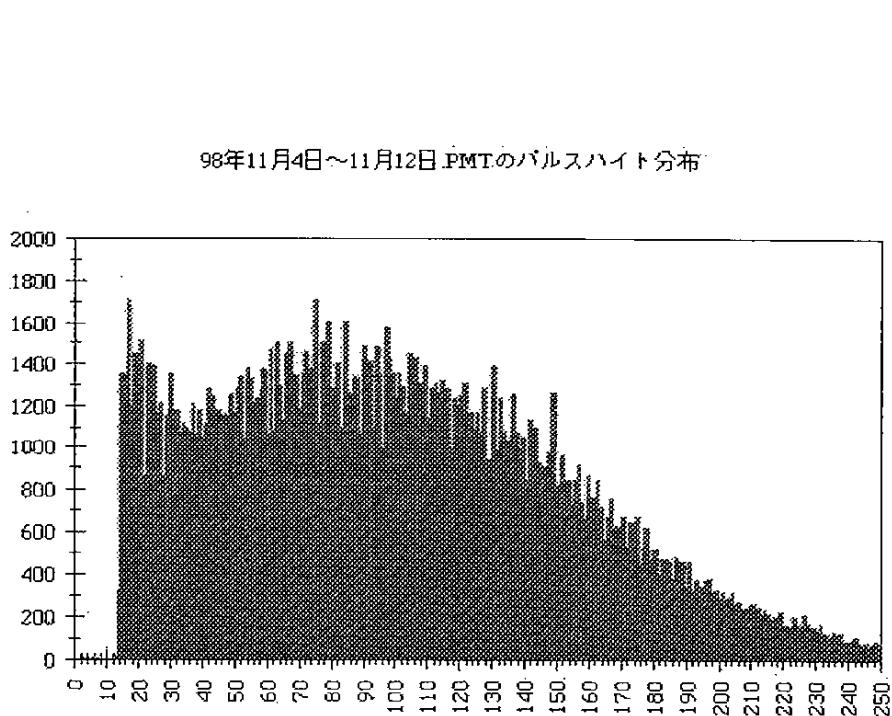


Fig.10b 98年11月4日～11月12日 PMT のパルスハイト分布

PMT 水中ラドン検出器 :

Total count  $0.610 \pm 0.065$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup>)]

Fig.11a に PD 水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度を、Fig.11b に PD 水中ラドン検出器のパルスハイト分布を示す。このときのカウント数とラドン濃度から求められた校正係数を次に示す。

PD 水中ラドン検出器 :

RaA  $0.031 \pm 0.006$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup>)]

RaC'  $0.045 \pm 0.008$  [(count/h)/(Bq/m<sup>3</sup>)]

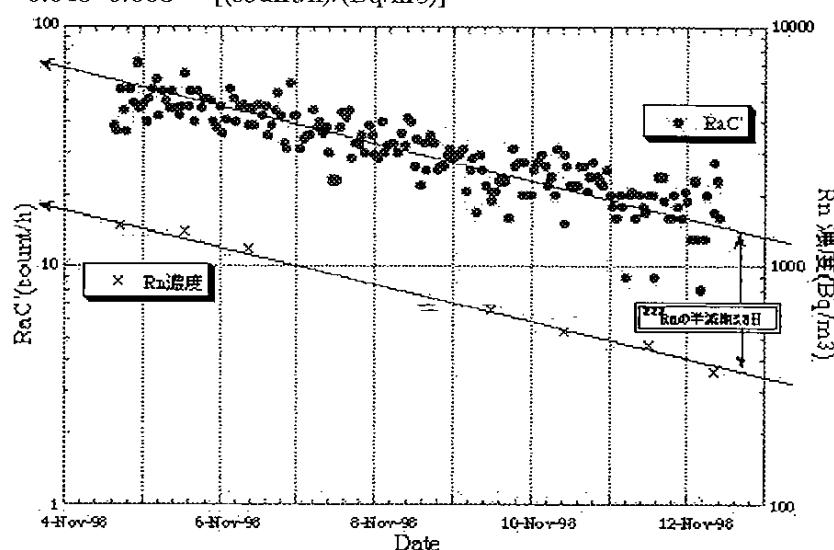


Fig.11a PD 水中ラドン検出器のカウント数とラドン濃度

98年11月4日～11月12日 PDのパルスハイト分布

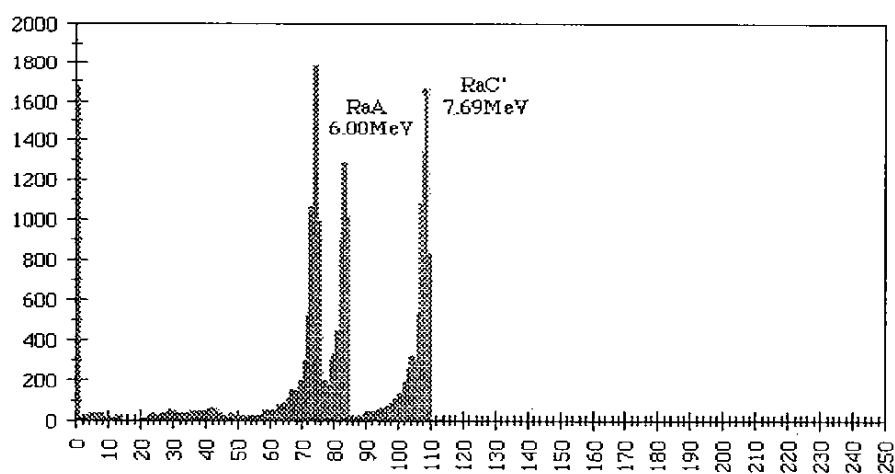


Fig.11b 98年11月4日～11月12日 PD のパルスハイト分布

今回人形峠でチャンバー内に入れておいた温度計と湿度計の校正直線を Fig.12a と Fig.12b に示す。

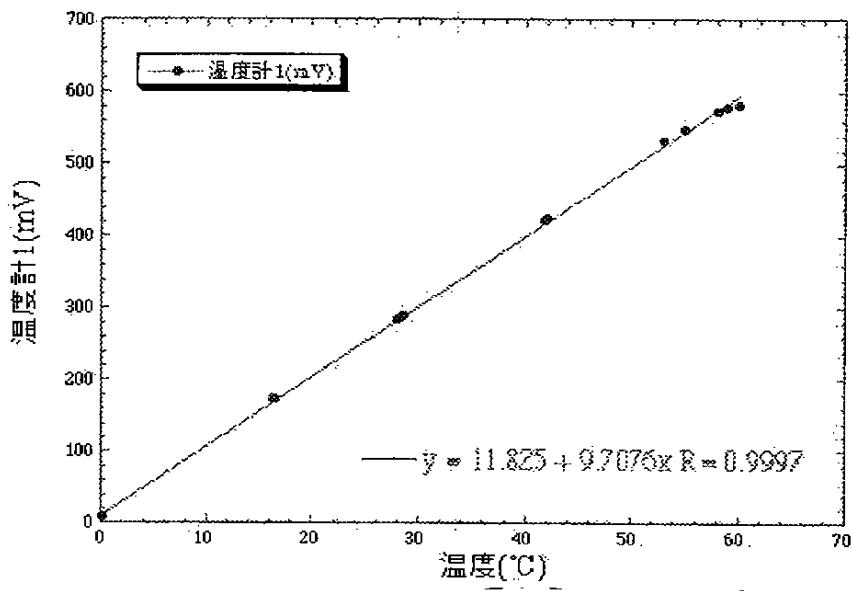


Fig.12a 温度計の校正直線

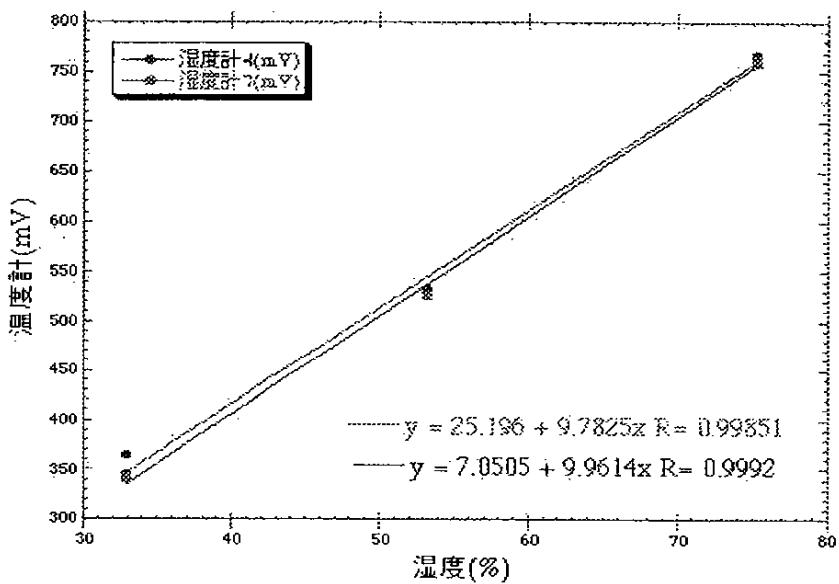


Fig.12b 湿度計の校正直線

## 第5章 岐阜大学水道水中ラドン濃度の測定

### 5-1 目的

PD 水中ラドン検出器と PMT 水中ラドン検出器を岐阜大学の水道水中に沈めて試験実験を行った。ラドンの娘核種が放出する  $\alpha$  線のカウント数を測定し、液体シンチレーション法から求めた水中ラドン濃度より、検出器の濃度校正係数を求める。そして、校正係数より、2台の捕集効率を比較する。

### 5-2 実験方法

深井戸用水中ラドン検出器を岐阜大学の水槽に沈め、水温を約 44°C に保たせた。水槽の大きさは 80cm × 120cm × 94cm で、902.4l である。水槽には検出器とともに水温センサが入っている。ヒーターで水温を上昇させ、水槽にふたをした。その時、ポンプを使って水を循環させなければならないが、ポンプが熱源になり水温を上昇させてしまうため、1 日 1 回 10 分間ポンプを回し、それ以外はポンプを停止させておいた。水温は、 $44 \pm 0.5^\circ\text{C}$  に設定し水槽の自動調整機能により、一定に保たせた。Fig.13 に実験装置の概要を示す。

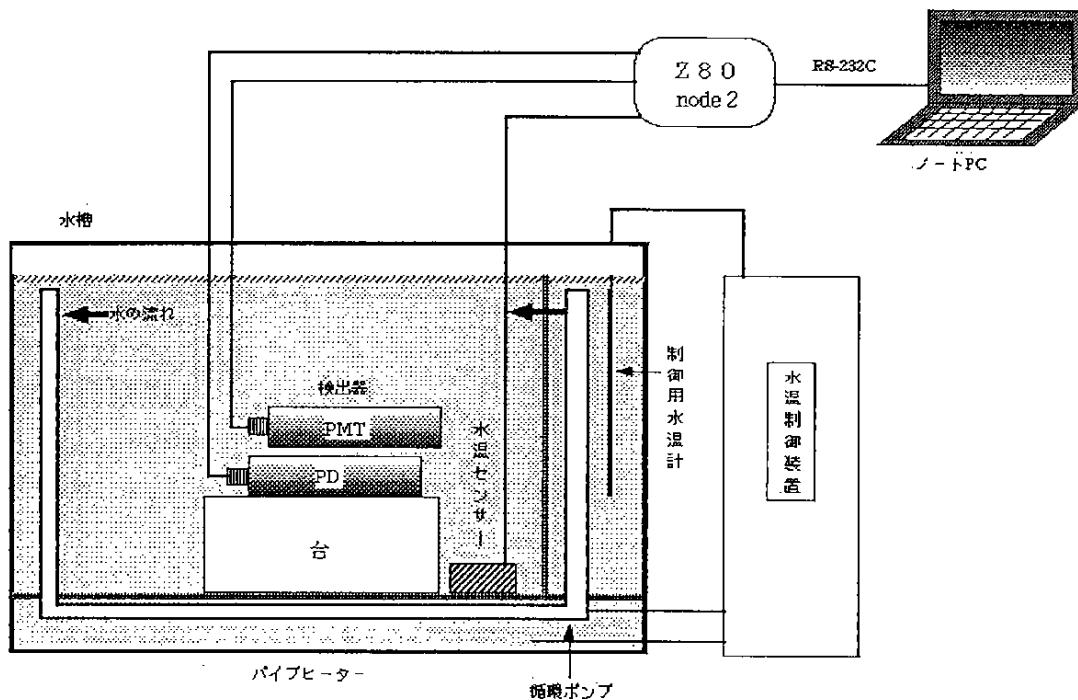


Fig.13 実験用水槽

### 5-3 実験結果

実験開始から終了まで（98年12月4～19日）のカウント数の変動のグラフをFig.14、Fig.15に示す。

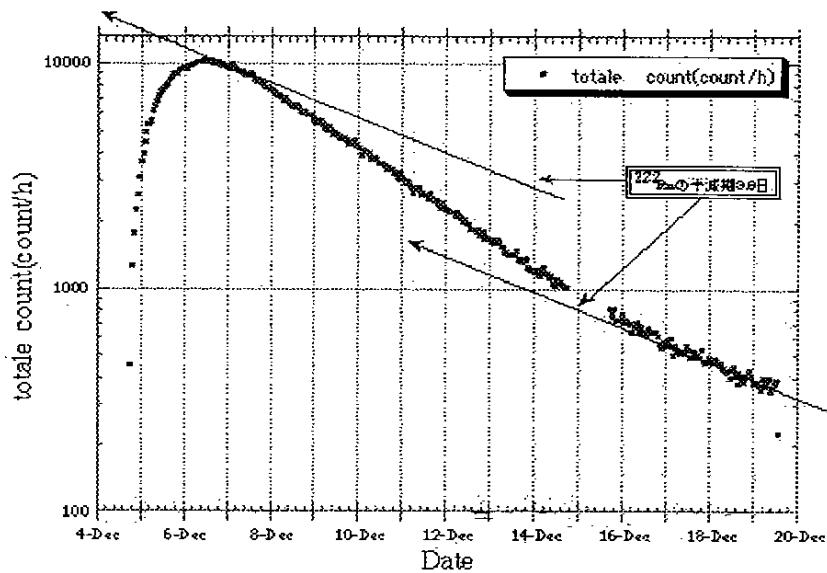


Fig.14 12月4日から12月19日のカウント数の変動

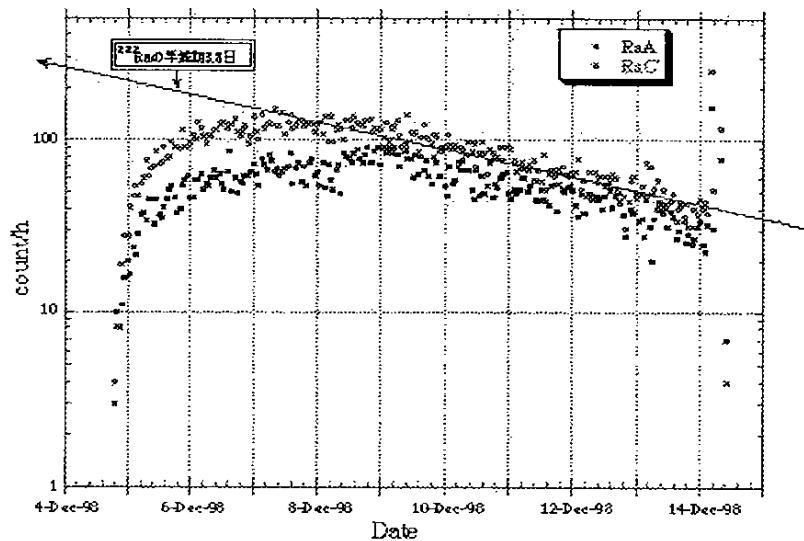


Fig.15 12月4日から12月14日のカウント数の変動

#### 5-4 考察

12月14日にPD水中ラドン検出器の値が0になってしまった。そのため、12月15日～19日まではPMT水中ラドン検出器のみ測定を行った。PD水中ラドン検出器の故障の原因是、検出器内の結露により、PINフォトダイオードに錆びが生じ、ショートしたためであった。PD水中ラドン検出器を水槽から取り出して、検出器内の水の量を測定した結果、1mlの水が結露によって生じていた。

2台の検出器のカウント数を比較すると、PD水中ラドン検出器はラドンの3.8日の半減期の直線にのっているのに対して、PMT水中ラドン検出器は、8日辺りからカウント数が3.8日の直線よりも急になり始めた。しかし、カウント数は減ったものの、16日辺りからまた、3.8日の半減期で減るようになった。そこでPMT水中ラドン検出器について、最初にカウント数が安定した期間と、新たにカウント数が安定した期間のエネルギースペクトルのグラフを比較した。PD水中ラドン検出器、PMT水中ラドン検出器について、エネルギースペクトルのグラフをFig.16、Fig.17に示す。

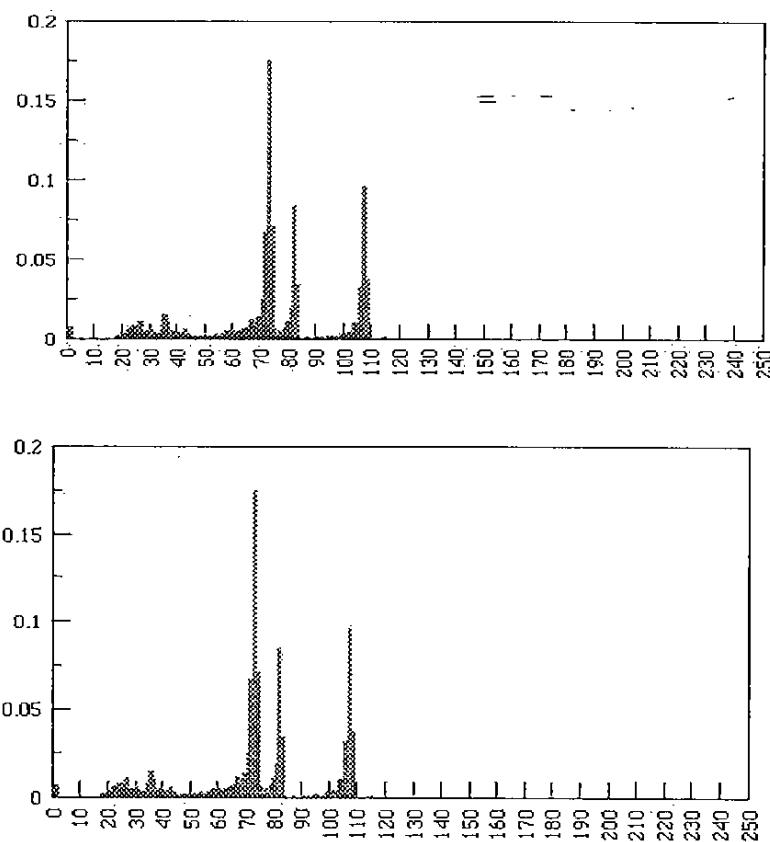


Fig16. PD水中ラドン検出器における12月8日と12月13日の比較

カウント数が安定してからPD水中ラドン検出器が故障する寸前まで測定したデータである。始めはRaCの割合が多いが、タンク内の湯が循環していないため $^{222}\text{Rn}$ の3.8日の半減期で崩壊するに従って、次第にRaCが減少していることが分かる。カウント数のデータと総合して考えると故障するまでは $\alpha$ 線をしっかり検出していいたのであろう。

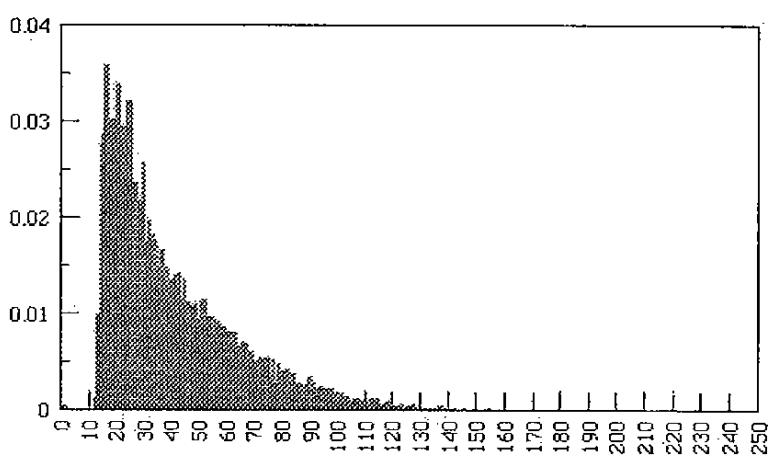
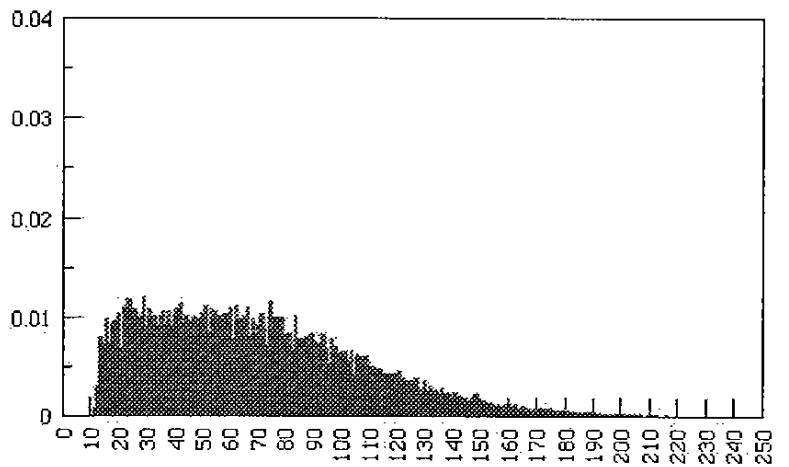


Fig.17 PMT 水中ラドン検出器における 12月 7日と 12月 18日の比較

パルスハイト分布を比較してみると、明らかに検出器内で光量が落ちているのが分かる。測定終了後検出器内を見たところ、シンチレータにカビが生えてしまっていた。検出器内は湿度 100%であり、かつ温度が約 40°Cである。これは、カビが生えてもおかしくない環境である。その写真 1 を次に示す。



写真1 カビによって劣化したシンチレータ

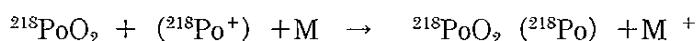
シンチレータ (ZnS) を検出器の壁面に塗るために、ZnS の粉末を蒸留水とポリビニルアルコールと混ぜて、ZnS 糊を作った。これを塗って水中に入れておいたところ、カビが生えてしまった。検出器の入り口付近にカビが多く発生していた。検出器をタンクから出したところ、PD 水中ラドン検出器の内部に水滴があったのに対して、PMT 水中ラドン検出器の内部には、水滴はなかった。シンチレータが湿っていたところから、シンチレータが水を吸っていたことが分かった。

## 第6章 電気的中和作用による検出効率への影響

### 6-1 電気的中和作用とは

$^{222}\text{Rn}$  の崩壊の結果生じた  $^{218}\text{Po}$  はイオン化して  $^{218}\text{Po}^+$  になる。通常、 $^{218}\text{Po}^+$  は空気中では、酸化されて  $\text{PoO}_2^+$  の状態で存在している。しかしこのイオンは、イオンとして永久に空気中に存在するのではなく、空気中の物質といろいろな過程を経て電気的に中和するのである。この作用が捕集効率に影響を及ぼしている。現在電気的中和作用には、次の3つの過程が考えられている。

#### 【電荷移動】

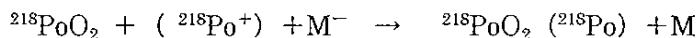
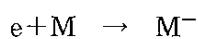


この過程は、イオン化ポテンシャルの小さい物質が大きい物質に電子を与えて電気的に中和する現象である。表3にイオン化ポテンシャルの大きさを示す。

#### 【エアロゾル生成、イオン付着】

この過程は、容器内に何らかの理由でエアロゾルが生成され、そのエアロゾルにイオンが付着し再結合する現象である。

#### 【負電荷の生成 → 再結合】



この過程は、電子親和力の大きい物質が電子を受け取り、その物質と再結合する現象である。

表3 イオン化ポテンシャル

ガス	エネルギー-eV	ガス	エネルギー-eV	ガス	エネルギー-eV
Ar	15.76	NO <sub>2</sub>	9.79	Pb	7.42
H <sub>2</sub>	15.43	NO	9.25	Bi	7.29
N <sub>2</sub>	15.58	Rn	10.25	CH <sub>4</sub>	12.6
O <sub>2</sub>	12.10	SO <sub>2</sub>	12.34	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	11.5
CO <sub>2</sub>	13.77	PoO <sub>2</sub>	約10.5	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	10.5
H <sub>2</sub> O	12.56	Po	8.43	C <sub>10</sub> H <sub>8</sub>	8.1

## 6-2 濃度校正システム

### 6-2-1 電離箱

電離箱は最も古い放射線測定器で、動作が簡単であること、安定していることなどのため便利な測定器として広く利用されている。しかし、感度はあまり良くなく  $10\text{Bq}/\text{m}^3$  程度で、大気中ラドン濃度測定には不十分であるため、校正原器として利用されている。電離箱には大別すると次の二つの型がある。

#### 1. 積分型 (integral type) ;

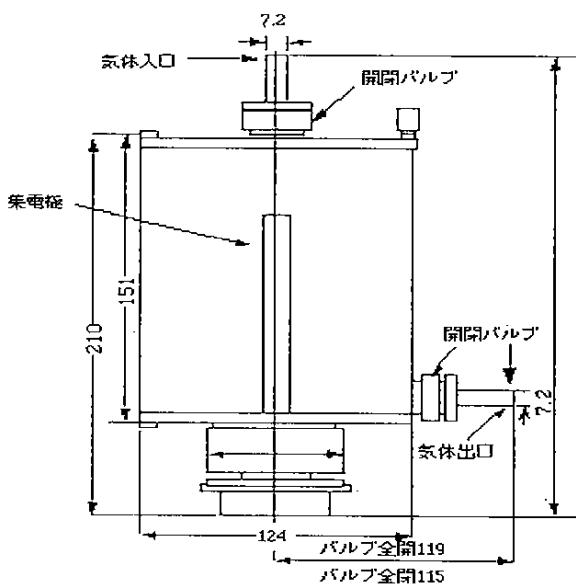
単純に電離箱内の気体中で生成されたイオンを集めるもの。

#### 2. 微分型 (differential type) ;

気体中のイオン電荷の運動によって電極に誘起される電圧脈動を利用するもの。

使用方法によっては、放射線源を外部に置く型と内部に置く型とに分けられる。

本研究で使用した電離箱は大倉電気 I-40961 で、容量が 1.5L で円柱型のステンレス容器である。この電離箱はたがいによく絶縁された 2 個の電極から成り立っており、これら 2 個の電極は Fig.18 のように一方が筒状で一定の空間を区切り、他方がその中心に沿つておかれた棒状になっている。一方の電極は接地されており、他方の電極は十分絶縁されて集電極と呼ばれている。これらの電極の間にガスを満たし、電極間に電解を作つておくと、放射線の作用による気体の電離で電離箱内に生じたイオン対はそれぞれの電極へと移動する。その時に流れる微小電流を高抵抗を通して、その両端の電位差を振動容量型電位計を用いて読む。振動容量型電位ヘッド部からはおよそ 240V の



バルブ全閉で 261, バルブ全開で 265。

Fig.18 電離箱の概略図

電圧が印加され、校正係数によってラドン濃度 [Bq/m<sup>3</sup>] に直される。また、電離箱を原器として使用できるのは、例えば、この電離箱は容積が 1000cm<sup>3</sup>で 1 気圧の空気が満たされているとき、宇宙線や周辺の物体中に含まれる放射性物質からの放射線のために  $10^{-16}$ A 程度の電離電流が、バックグラウンドとして流れる。しかし、 $10^{-16}$ A のバックグラウンドは、非常に小さいものであるためである。この電離箱を用いて電圧値 V を測定し、電離電流が求まる。入力抵抗値 R は、

$$R = 10^{12} [\Omega]$$

であるから、電離電流 I は、

$$I = V/R = V/10^{12} [A]$$

となり、この電離電流 I をラドン濃度 Q [Bq/m<sup>3</sup>] に直す校正係数 f は国際共同比較実験によって±1.5%の精度で校正されている。以上よりラドン濃度 Q は次式

$$Q = I/f \quad [Bq/m^3] \quad I : [fA] \quad (1 fA = 10^{-15} A)$$

$$f = 0.052 \quad (fA / [Bq/m^3])$$

より求められる。

Fig. 18 には電離箱の概略図、表 4 には電離箱の仕様、表 5 には振動容量型電位計の仕様を示す。

表 4 電離箱の仕様

形式	1-409601
電離容積	1500cm <sup>3</sup>
規格 絶対抵抗	ガードリング-集電極間 $1 \times 10^{15} \Omega$ (常温常湿) ガードリング-高圧電極間 $1 \times 10^{14} \Omega$ (常温常湿)
耐電圧	ガードリング-高圧電極間 AC 1000V 1分間
気密度	内部真空の場合 3 mmHg/h 以下
耐圧	内部正圧の場合 3 kg/cm <sup>2</sup> まで
内部容積誤差	定格値の 3 %以下
容器の厚さおよび材質	3 mm 18-8 ステンレス

表5 振動容量電位計仕様

最小検出量	電流 $1 \times 10^{-16} A$ 電荷量 $1 \times 10^{-15} C$ 電圧 $1 \times 10^{-5} V$
入力抵抗レンジ	5レンジ切り替え OPEN ( $10^{15} \Omega$ )、SHORT, $10^8$ , $10^{10}$ , $10^{12}$
電圧測定レンジ	9レンジ切り替え $1, 3, 10, 30 mV, 0.1, 0.3, 1, 3, 10 V$
零ドリフト	SHORT、 $10^8 \Omega$ レンジ … 約 $30 \mu mV/day$ 以下 $10^{12} \Omega$ レンジ … $0.5 mV/day$ 以下 OPENレンジ … $0.3 mV/day$ 以下 (周囲温度変化 $\pm 5^\circ C$ 以下の場合)
仕様温度範囲	$-10 \sim 0 \sim +45^\circ C$ (計測時は温度変化が少ないほうがいい。)
湿度	絶対湿度 80%以下
雑音	SHORT、 $10^8 \Omega$ レンジ … 約 $30 \mu V$ $10^{10} \Omega$ レンジ … 約 $60 \mu V$ $10^{12} \Omega$ 、OPENレンジ … 約 $200 \mu V$
入力等価容量	$10 pF \pm 20\%$
応答速度	$10^8, 10^{10} \Omega$ … 約 $1 s$ $10^{12} \Omega$ … 約 $10 s$
指示精度	$\pm 1\%$
記録計用出力	0 ~ $10 mVDC$ (各レンジ)
出力精度	$\pm 1\%$
電源	$100 V AC \pm 10\%$ 50/60 Hz
消費電力	約 $5 VA$
重量	指示部 $4.0 kg$ 、ヘッド部 $6.5 kg$

### 6-2-2 システム構成図

Fig.19 に今回使用した校正システムを示す。

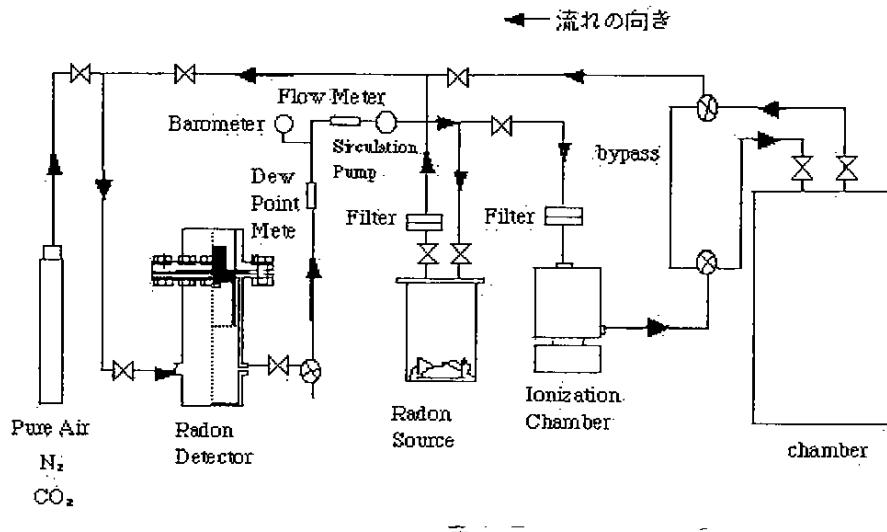


Fig.19 電気的中和作用の実験で用いたシステム構成図

このシステムは 1997 年古田の卒業研究により組まれた、湿度特性実験用のシステム に、1997 年大崎の卒業研究で作られたチャンバーを組み込んだものである。システム 全体の体積は 207L である。本実験ではこの系内を N<sub>2</sub> ガス、CO<sub>2</sub> ガス、純エアーガスのそれぞれで満たしポンプで循環させた。そして、Radon Souce が入った容器 (4.5L) に、系内のガスを通すことによって、この系内にラドンガスを入れた。系内のガスの種類 (N<sub>2</sub> ガス、CO<sub>2</sub> ガス)、湿度 (純エアーガスに超純水を注入) を変えることによって 2 台 の検出器の捕集効率にどのようなちがいがあるかを調べた。このシステム 全体は、全て閉鎖されており、外気が、システム系に混入することはない。今回検出器を入れた チャンバーについては、Fig.20 に 200L のチャンバーの拡大図を示す。

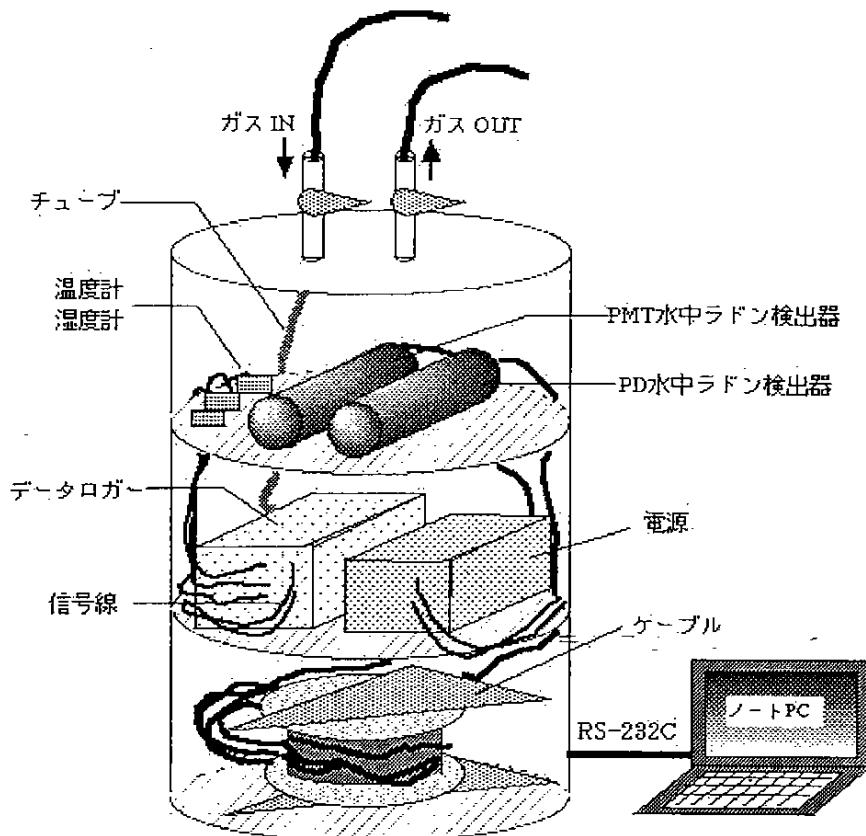


Fig.20 チェンバー拡大図

今回の実験ではPMT水中ラドン検出器とPD水中ラドン検出器との比較を行うため、2台の検出器を同じ条件下に置く必要があった。そこで、1997年大崎の卒業研究で作られたステンレス製のチャンバーを使った校正システムを作った。容量200Lのステンレス製密閉容器の中にラドンデータロガー、アンプ電源、検出器、環境センサー（気温×1・湿度×2）、ケーブルを入れる。AC100Vの電源ケーブルは、容器のふたにフィードスルーして外部に出してある。また、RS-232Cケーブルを途中で切断し、その両側に7ピンメスのコネクタを取り付けてあるため、通常、データロガーと容器外にあるブリッジを結ぶことが可能であるが、今回の実験ではノートPCをつなぎ、データを取った。

## 6-3 窒素ガス雰囲気中におけるラドン濃度校正実験

### 6-3-1 目的

$N_2$ ガスは、自然環境程度の濃度ではRaAの捕集効率に影響を与えないということが分かっている。今回新たに大学の実験室内で、電気的中和作用による検出効率への影響を調べる実験をするためのシステム(6-2-2)を作った。本実験では、このシステムにより、検出器の測定値がラドンの半減期である3.8日の直線にのるかを調べる。また、人形峠での校正係数との比較を行う。

### 6-3-2 実験方法

$N_2$ ガス中における検出器の校正係数を求めるため系内のラドン濃度の測定には、人形峠と同様に電離箱を用いた。実験の手順を次に示す。

- 1) ポンプを止めた状態で、系内を  $N_2$ ガス (5L/min) で1時間30分ページする。
- 2) ポンプを回しながらラドンガスを約5秒間系の中に入れる。
- 3) カウント数、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度が平衡状態（ともに $^{222}Rn$ の半減期3.8日で減っていく）になるのを待つ。(2台の水中ラドン検出器、温度計、湿度計は、Fig.21で示すようにノートPCによりデータをとった。)
- 4) 3)が確認できたらPMT水中ラドン検出器のtotal count数(count/h)、PD水中ラドン検出器のRaC'のカウント数(count/h)、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度(Bq/m<sup>3</sup>)とRaC'のカウント数(count/h)からそれぞれの校正系数を求める。

\*この実験はポンプを回転させたままで行った。

下に校正系数を求める式を示す。

$$f = C/Q \quad [(count/h)/(Bq/m^3)]$$

C : カウント数 (count/h)

Q : ラドン濃度 (Bq/m<sup>3</sup>)

### 6-3-3 実験結果

(実験期間は、12月28日から1月7日まで)

Fig.21に、今回の実験により得られたPMT水中ラドン検出器の校正係数とカウント数を示す。

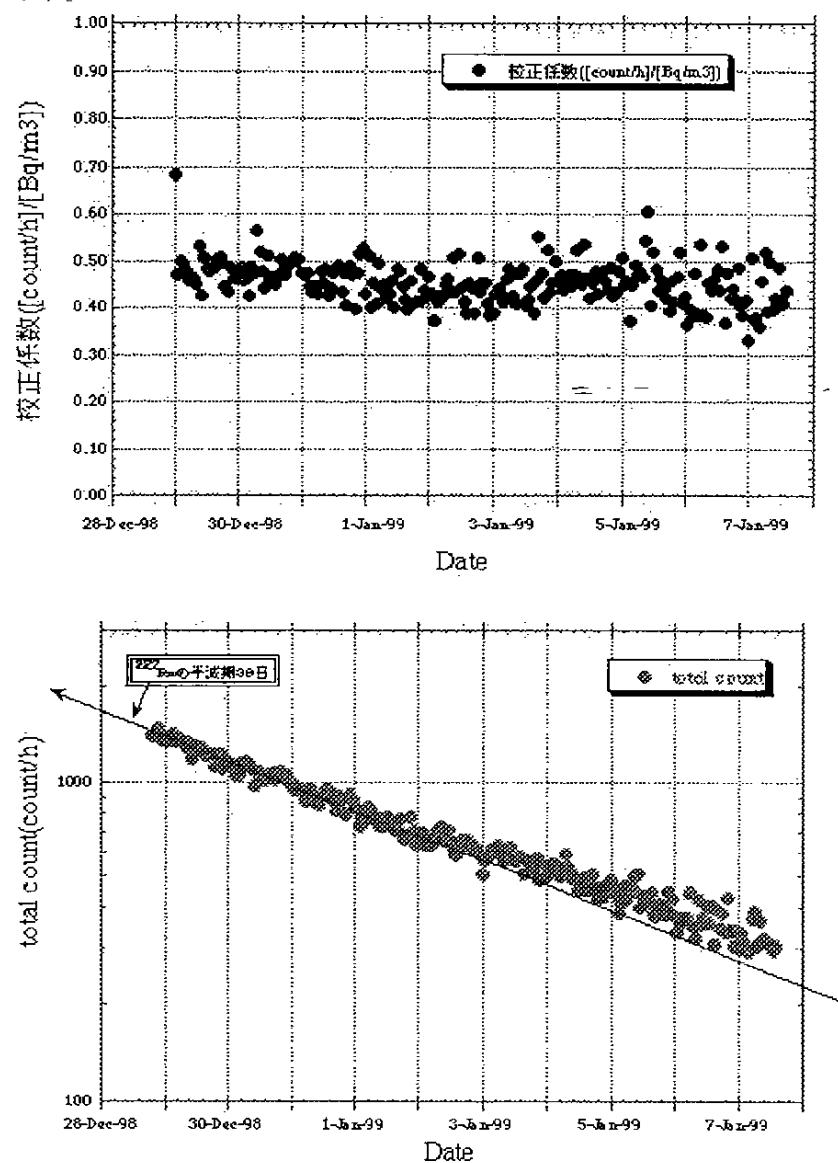


Fig.21 PMT水中ラドン検出器の校正係数とカウント数

Fig.22 に、今回の実験により得られた PD 水中ラドン検出器の校正係数とカウント数を示す。

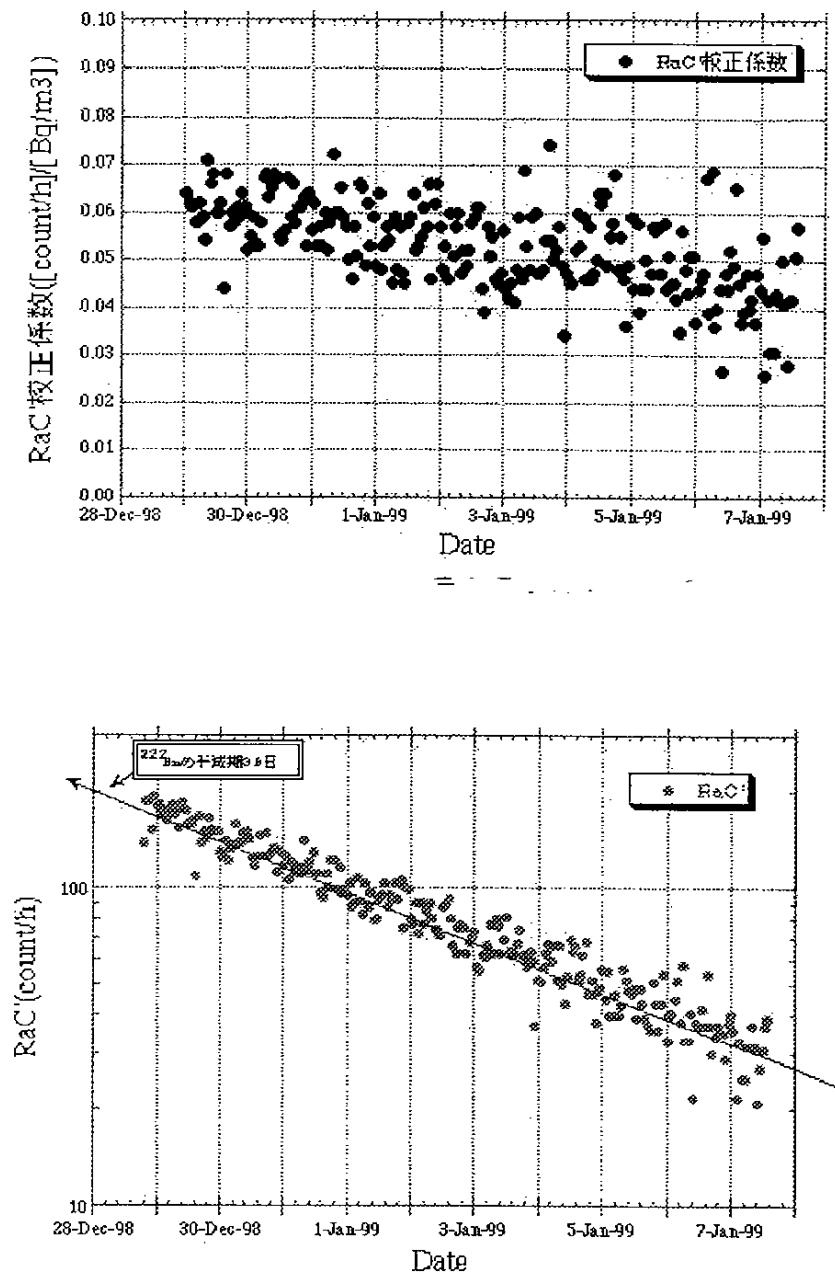


Fig.22 PD 水中ラドン検出器の校正係数とカウント数

#### 6-3-4 考察

今回の実験で得られた校正係数を比較すると、PMT 水中ラドン検出器の校正係数の方がフラットな値をとっていて、安定しているように見えるが、カウント数を見ると PD 水中ラドン検出器の方が、ラドンの半減期である 3.8 日の直線にしっかりととのっている。カウント数を見た限りでは PD 水中ラドン検出器の方が安定した校正係数が得られそうである。この原因として考えられるのは、電離箱の値のずれがある。Fig.23-1 に電離箱から得られたラドン濃度のグラフを示す。

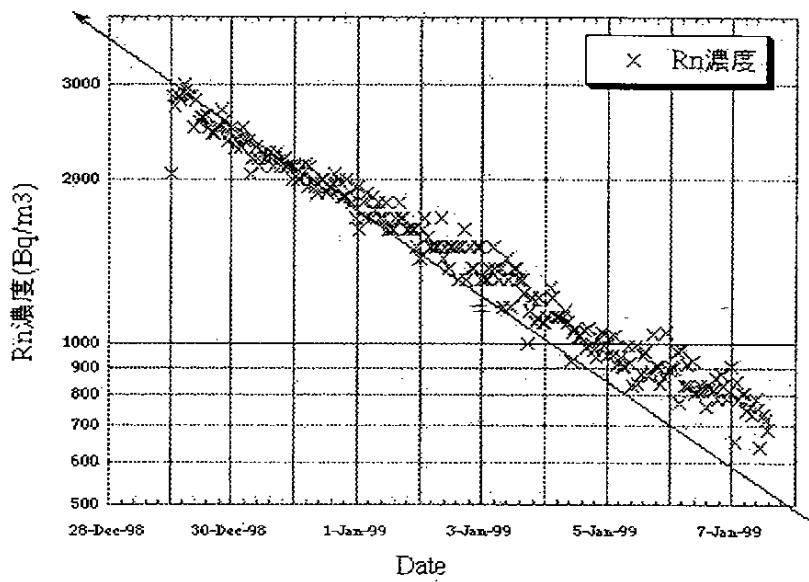


Fig.23-1 電離箱のラドン濃度

このグラフを見ると電離箱の値が、ラドンの半減期である 3.8 日の直線から少しずれていることが分かる。この電離箱は長年使われているため、バックグラウンドが原因ではないかと考えられる。バックグラウンド分を引いたグラフをかくと Fig.23-2 のようになった。

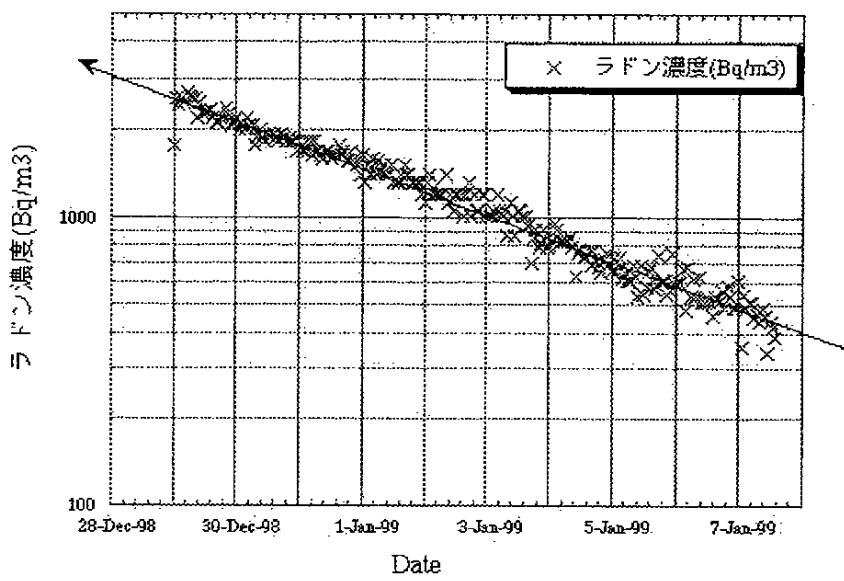


Fig.23-2 電離箱のラドン濃度

バックグラウンドを引くことで、ラドン濃度のグラフがラドンの半減期である 3.8 日の傾きになった。このことから、グラフのずれの原因が電離箱のバックグラウンドにあったことが分かる。このラドン濃度によって、新たに校正係数を求めたグラフを Fig.24、Fig.25 に示す。

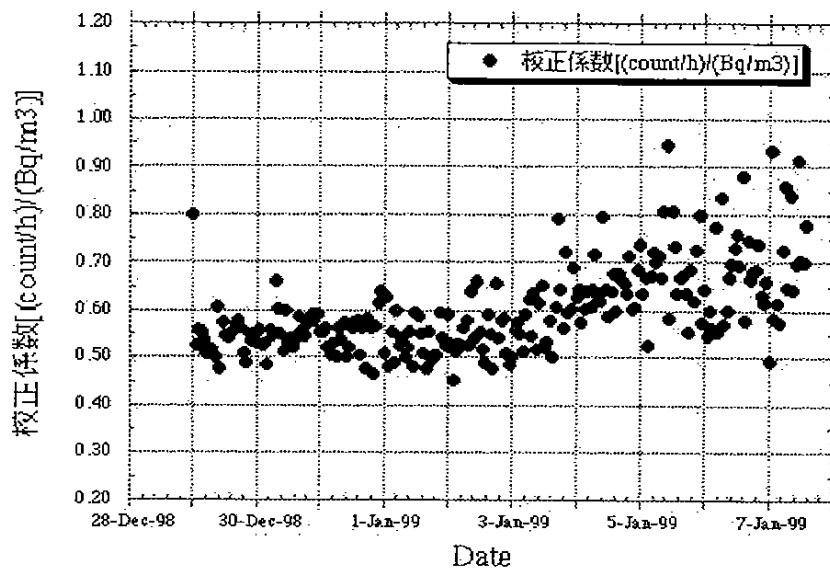


Fig.24 PMT 水中ラドン検出器の校正係数

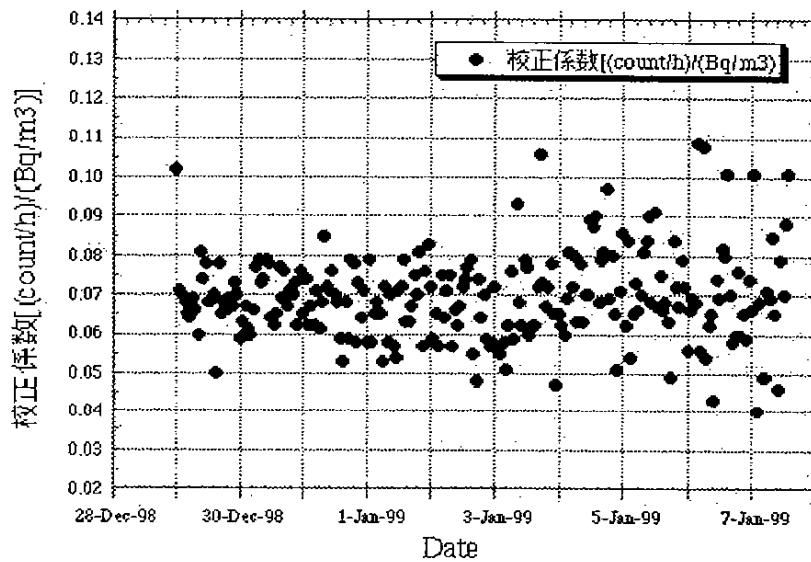
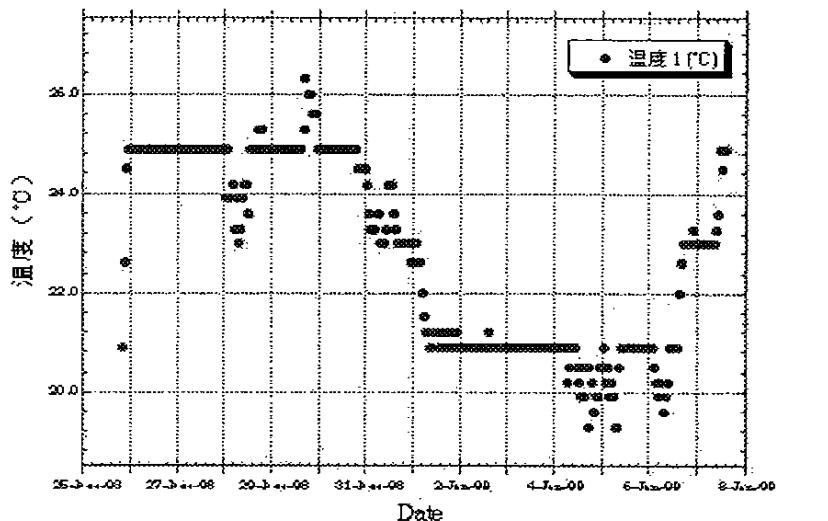


Fig.25 PD 水中ラドン検出器の校正係数

1月3日以降にPMT水中ラドン検出器の校正係数が増加している。PMT水中ラドン検出器のバックグラウンドによるものであると考え、バックグラウンド(約313(count/h))分を引いてグラフ化したものがFig.22であるが引ききれなかった。

次にチェンバー内の温度変化をFig.26に示す。



約 6°C

Fig.26 チェンバー内の温度変化

その原因の 1 つとして、光電子増倍管の温度特性が考えられるのではないだろうか。

今回用いた光電子増倍管の温度特性は、およそ-0.3%/°C～-0.5%/°Cである。今回の場合、グラフがラドンの半減期の傾きからずれていく少し前から、チェンバー内の温度が下がり始め、最大で-6°C 温度が変化している。従って、約+2%～+3%、カウント数が増加することになる。今回は時間の都合で温度特性までは調べられなかったが、今後の研究で行ってみても面白いのではないかと思う。

以上の実験から、PMT と PD 水中ラドン検出器の校正係数を求めるとなつようになつた。PMT 水中ラドン検出器については total count を、PD 水中ラドン検出器については RaC' のカウント数を用いた。

PMT水中ラドン検出器 校正係数 (total count) [(count/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]	$0.576 \pm 0.061$
PD水中ラドン検出器 校正係数 (RaC') [(count/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]	$0.068 \pm 0.007$

## 6-4 二酸化炭素ガス雰囲気による電気的中和作用の影響

### 6-4-1 目的

ラドン娘核種は、空気中に含まれる不純ガス ( $\text{CH}_4$ 、 $\text{H}_2\text{S}$ 、 $\text{CO}_2$  など) により電気的中和作用の影響を受けていることが分かっている。そこで、 $\text{CO}_2$  ガスを使用して 2 台の検出器の捕集効率に対して、電気的中和作用がどのくらい影響を与えていているかを調べるために、校正係数を求めて比較する。

### 6-4-2 実験方法

先に示したシステム(Fig.22)を用いて実験を行った。実験の手順を次に示す。

#### 【実験 1】 ポンプを回転させたままで測定

- 1) ポンプを止めた状態で、系内を  $\text{CO}_2$  ガス (1L/min) で 19 時間ページする。  
(1L/min を超えると液化した  $\text{CO}_2$  ガスが出てきて危険である。)
- 2) ポンプを回しながらラドンガスを約 5 秒間系の中に入れる。
- 3) カウント数、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度が平衡状態（ともに  $^{222}\text{Rn}$  の半減期 3.8 日で減っていく）になるのを待つ。(2 台の水中ラドン検出器、温度計、湿度計は、Fig.21 で示すようにノートーPC によりデータをとった。)
- 4) 3) が確認できたら PMT 水中ラドン検出器の total count 数(count/h)、PD 水中ラドン検出器の RaC' のカウント数 (count/h)、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) と RaC' のカウント数 (count/h) からそれぞれの校正系数を求める。

### 6-4-3 実験結果

99年1月8日～1月18日のPMT水中ラドン検出器、PMT水中ラドン検出器におけるカウント数に変動をFig.27、Fig.28に示す。

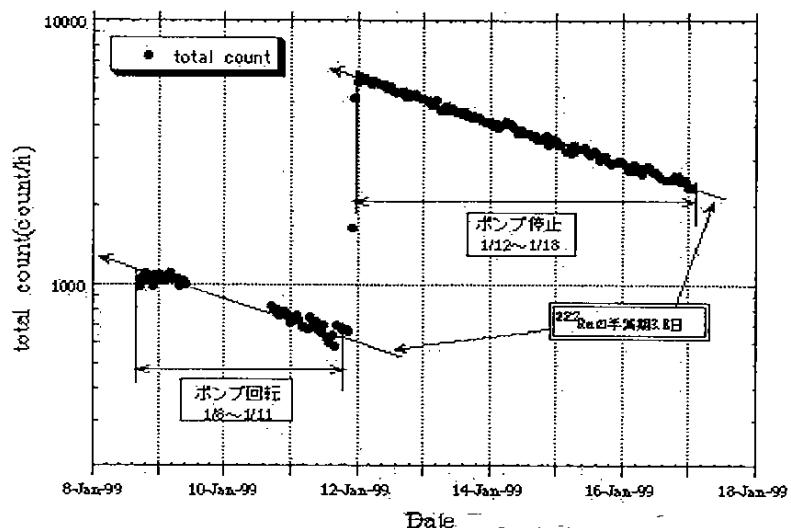


Fig.27 99年1月8日～1月18日のPMT水中ラドン検出器におけるカウント数の変動

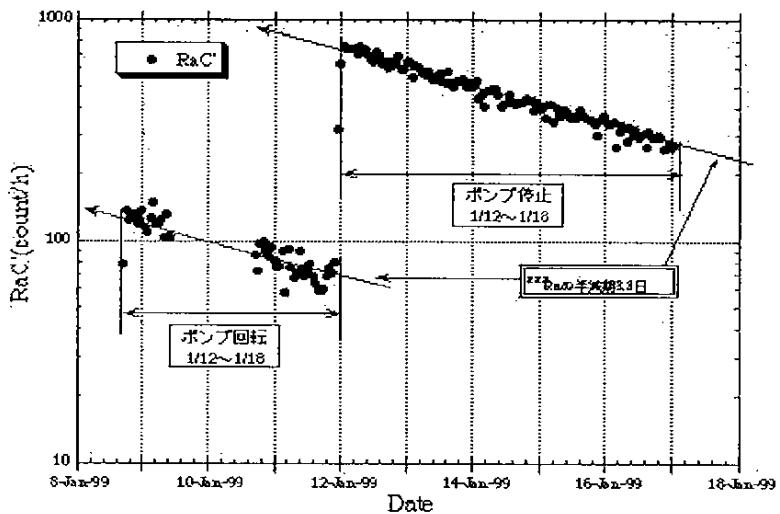


Fig.28 99年1月8日～1月18日のPD水中ラドン検出器におけるカウント数の変動

99年1月8日～1月18日のチャンバー内における温度と湿度の変化を、Fig.29、Fig.30に示す。

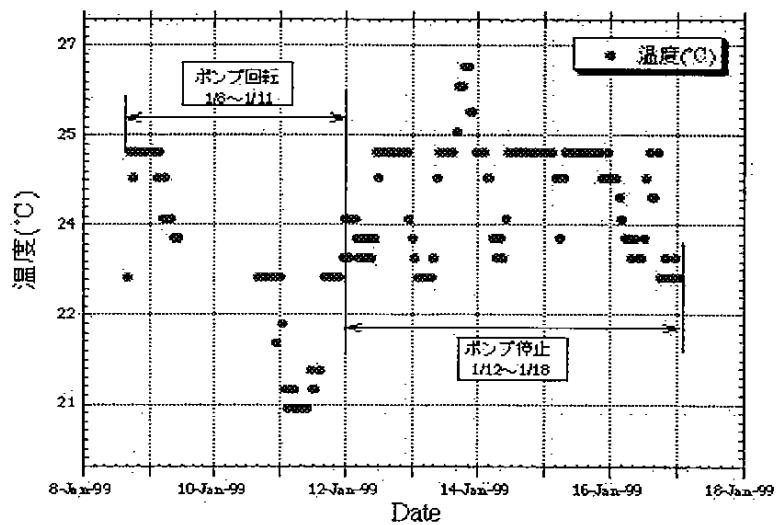


Fig.29 99年1月8日～1月18日のチャンバー内における温度と湿度の変化

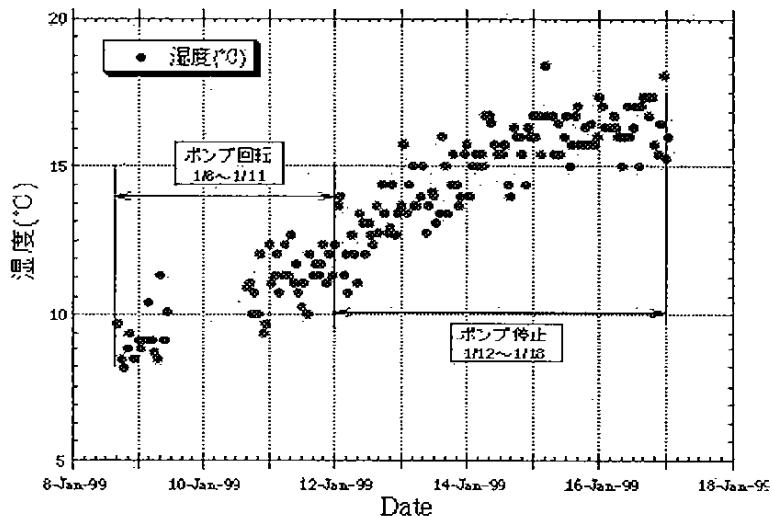


Fig.30 99年1月8日～1月18日のチャンバー内における湿度の変化

実験1、実験2における校正係数の変化を表6に示した。

#### 6-4-4 考察

【実験1】、【実験2】のどちらの実験においてキャリヤガスがCO<sub>2</sub>にもかかわらず校正係数が著しく減少するといった変化は見られなかった。本実験では、システム内の湿度（相対湿度）が低かった。CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>S、CO<sub>2</sub>などの不純ガスは、温泉中に多く含まれている物質であるため空気中には多くの水蒸気あるはずである。水中ならばなおさらである。これらのことと踏まえて考えると、CO<sub>2</sub>は他のガスや水蒸気などの相乗効果によって電気的中和作用を引き起こしていると考えられる。従って、今回のような湿度の低い環境中では校正係数にあまり変化が見られなかつたのだろう。

表6 ラドン濃度校正係数

	実験1	実験2
測定期間	1月8日～1月11日	1月12日～1月18日
ポンプ	回転	停止
ラドンガス注入時間	5秒	1分
PMT水中ラドン検出器 校正係数 [(count/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]	0.478±0.048	0.564±0.056
PD水中ラドン検出器 校正係数 (RaC) [(count/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]	0.055±0.006	0.067±0.007

## 6-5 純水による電気的中和作用の影響

### 6-5-1 目的

空気中に存在する物質の中で、電気的中和作用を起こして捕集効率に及ぼす物質として、水蒸気が知られている。そこで、システム内の湿度を高くすることで、検出器の捕集効率に対して、電気的中和作用がどのくらい影響を与えていたるか調べるために、検出効率を求めて比較する。

### 6-5-2 実験方法

- 1) ポンプ停止状態で純空気により 2 時間ページを行った後、ポンプを回しながらラドンガスを約 1 分間系の中に入れる。(この時、バイパス系を通すようにする。)
  - 2) このままポンプを回し続けて、カウント数、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度が平衡状態になるのを待つ。
  - 3) 平衡状態になったら、露点温度を確認しデータを取り。PMT の total count 数 (count/h)、PD の RaC のカウント数 (count/h) と、電離箱の電圧値から求めたラドン濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) から校正係数を求める。
  - 4) スーパーカミオカンデから持ってきた約 0.01 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) の超低濃度の水を電離箱と並列になっているバイパスのチューブに、シリングを用いて注射する。(注射したあとの注射痕にビニールテープを巻けばリークはない。)
  - 5) ポンプを回したまま注入した純水が完全に飽和状態になるのを待ち、系全体を一定にする。
  - 6) 露点が安定したら、ポンプを止め、バルブを閉じてカウント数が 3.8 日の半減期で減って行くのを静かに待つ。
  - 7) 3) を行う。
- 4) ~ 6) を繰り返し行い、露点温度を上げていく。

### 6-5-3 実験結果

Fig.31、Fig.32 に 1 月 17 日から 1 月 27 日までのラドン濃度とカウント数の変化のグラフを示す。

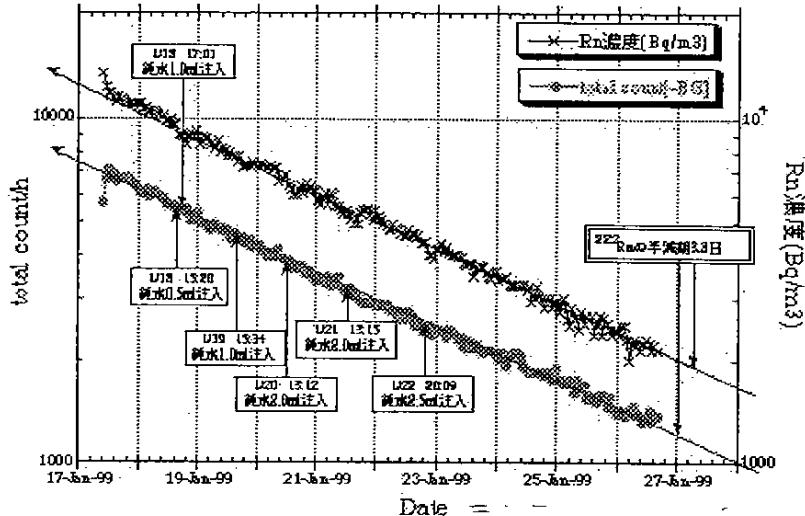


Fig.31 湿度上昇における PMT 水中ラドン検出器のラドン濃度とカウント数の変化

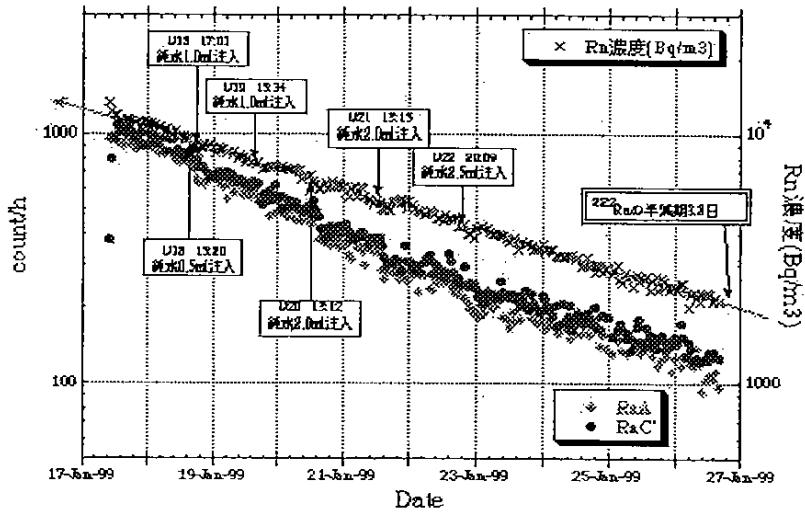


Fig.32 湿度上昇における PD 水中ラドン検出器のラドン濃度とカウント数の変化

Fig.33、Fig.34に1月17日から1月27日までの湿度上昇における校正係数の変化のグラフを示す。

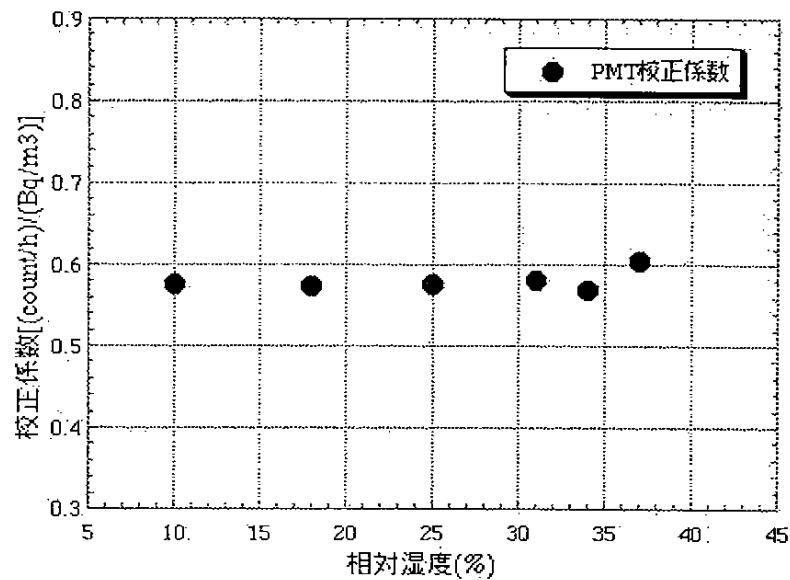


Fig.33 湿度上昇における PMT 水中ラドン検出器の校正係数の変化

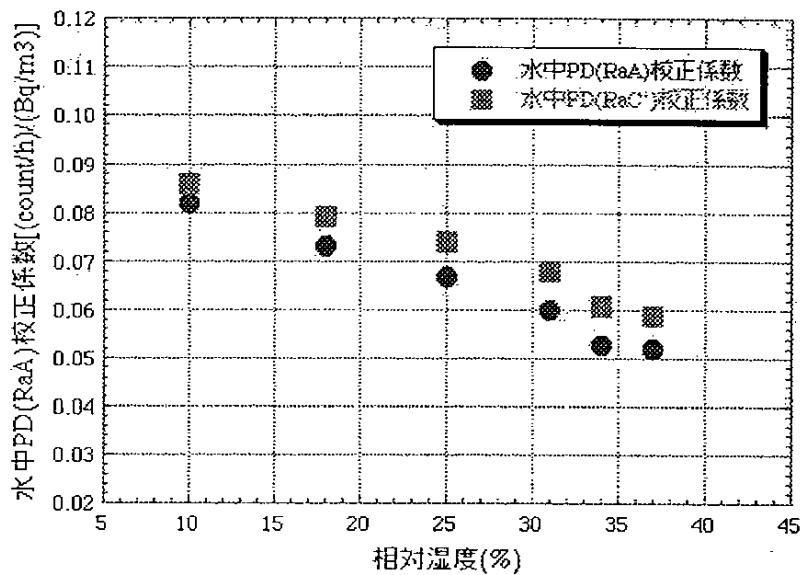


Fig.34 湿度上昇における PD 水中ラドン検出器の校正係数の変化

校正計数 湿度(%)	PMT水中ラドン検出器 [(count/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]	PMT水中ラドン検出器 [(RaC/h)/(Bq/m <sup>3</sup> )]
10%	0.588±0.059	0.089±0.009
18%		0.079±0.012
25%		0.074±0.011
31%		0.068±0.010
34%		0.061±0.009
37%		0.059±0.009

#### 6-5-4 考察

グラフを見ても分かるように湿度の変化に大きく左右されているのは PD 水中ラドン検出器の方である。本来この実験を行ったのは、光電子増倍管を用いた検出器ならば、温泉中に含まれる CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>S、CO<sub>2</sub>などの不純ガスや水蒸気による電気的中和作用の影響を受けないだろうというのが始まりである。従って、この実験では PMT 水中ラドン検出器の良いところが大きく現われたと言える。

今回の実験における校正係数 2 台の検出器の校正係数を、人形峠での校正係数と比較してみると、PMT 水中ラドン検出器の方は、誤差の範囲内で一致している。また、PD 水中ラドン検出器は過去の実験から考えると、まだ校正係数は小さくなると考えられる。

## 第7章　まとめ

この実験の主な目的は光電子増倍管とシンチレータの組み合わせによるラドン検出器であれば、原理上、静電捕集法の欠点でもある、電気的中和作用による捕集効率の低下が起こらないため、静電捕集法よりも効率よくラドンガスを測定できるだろうということであった。今回の実験では、それを確認するために、人形峠での校正実験をはじめ、電気的中和作用を起こしているだろうと思われている  $\text{CO}_2$  ガスとの混合や、湿度を上昇させることによって、実験室内で電気的中和作用の実験を行った。その結果、光電子増倍管とシンチレータの組み合わせによるラドン検出器は、人形峠での実験により得られた  $0.610 \pm 0.065 [(\text{count}/\text{h})/(\text{Bq}/\text{m}^3)]$  とほぼ誤差の範囲内で一致する値になることが分かった。このことから、電気的中和作用の影響をほとんど受けないということが明確なものになった。今回の実験使用した検出器はバックグランドが高いため低濃度な環境での使用には向かないが、検出効率が PD 水中ラドン検出器よりも良いため、今後の発展に期待したい。

## 第8章 将来の展望

### 8-1 電気的中和作用の実験より

本研究により PMT 水中ラドン検出器は水蒸気や不純ガスなどによって起こる、電気的中和作用の影響を受けないことが分かった。今回の実験ではスーパークリオカンデの超純水を純エアー中に注入する実験と CO<sub>2</sub> ガスをキャリアガスとした実験を行ったが、CO<sub>2</sub> ガスについては校正係数が著しく減少するといった変化が見られなかたため、CO<sub>2</sub> ガスは単独で電気的中和作用を起こしているのではなく、他の不純ガスや水蒸気などとの相乗効果によって電気的中和作用を起こしているのだろうという結果に至った。他の実験と時間との関係もあって、そこまで突っ込んだ研究はできなかったが、今後実験してみる価値はあると思う。

### 8-2 PMT 水中ラドン検出器を用いた測定について

今回の実験で PD 水中ラドン検出器と PMT 水中ラドン検出器とを比較することで、PMT 水中ラドン検出器の長所と短所がより明らかになった。特に今回研究を行った電気的中和作用の影響受けないという利点は、今後の水中ラドン濃度の測定において大きな影響を与えるだろう。しかし一方では、パルスハイト分布においてピークが見られないために母核種を判別できないということや、ZnS が湿気に弱いという問題点がある。発光部分の劣化は、PMT 水中ラドン検出器においては致命的であるため、この部分の加工をいかに行うかがポイントである。また、ZnS はそれ自身が発光しているため バックグランドレベルが高く、今回の実験で使用した PMT 水中ラドン検出器については約 300(count/h)、すなわち、約 500(Bq/m<sup>3</sup>)であった。こういったことを考えると PMT 水中ラドン検出器の使用は、高濃度環境中が好ましい。

現時点では PMT とシンチレーターという組み合わせを水中ラドン検出器に用いているが、今後、水上設置型のものに用いてみてもまた面白いデータが得られるのではないかと思う。

### 8-3 PMT 水中ラドン検出器の温度特性

今回の研究では校正まではたどり着けなかったが、今後、測定を行う上で欠くことができないものであろう。温泉等、様々な温度のもとで使われる 水中ラドン検出器ならばなおさらである。今回の実験で温度特性による影響らしきものが見られたため、今後の研究で明らかにしていく必要があるだろう。

## 参考文献

- (1) 中島久 『半導体検出器を使った放射線計測』  
1983年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (2) 中川雅人、岡澤裕子 『カミオカンデにおける水中ラドン濃度の測定と解析』  
1993年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (3) 川口洋美 『深井戸用小型水中ラドン検出器の製作』  
1997年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (4) 小森路子 『深井戸用小型水中ラドン検出器の温度特性』  
1998年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (5) 古田真澄 『ラドン検出器の湿度特性』  
1998年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (6) 大崎俊博 『RIセンターのラドン濃度測定』  
1998年、岐阜大学教育学部物理学科卒業論文
- (7) 浜松ホトニクス株式会社  
『光電子増倍管 -光センシングでホトニクスの未来を築く-』