JNC TY6400 2004-001

公開資料

ラドン濃度測定におけるトレーサビリティの確立

（核燃料サイクル公募型研究に関する共同研究報告書）

2004 年 4 月

東海大学工学部応用理学科エネルギー工学専攻

核燃料サイクル開発機構　人形峠環境技術センター

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下さい。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構 技術展開部 技術協力課
Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section, Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Naka-gun, Ibaraki 319-1184 Japan

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

JNC TY6400 2004-001
2004年4月

ラドン濃度測定におけるトレーサビリティの確立
(核燃料サイクル公募型研究に関する共同研究報告書)

阪元 重康*、石森 有**、圓尾好宏**

要 旨

この報告書は、ラドン濃度測定用装置のトレーサビリティ確立を目的として開発した、ラドン標準線源に関するものである。

ラドン濃度測定装置の校正には、ラジウム水溶液をバブリングする方法がしばしば用いられてきたが、ここで報告する標準線源は、それとは異なり、固体ラジウム線源を用いており、取り扱いが容易である。

線源から気相中に放出されるラドンの量は、ラジウムの放射能と固体線源中に残存するラドン孫核種の放射能の差から決定する。そのための放射能測定は、γ線標準線源により検出効率を校正したゲルマニウム検出器を使用して行った。

測定の結果、ラドン線源としての放射能強度は 988 Bq であることがわかった。その線源を、容積 6 リットルのステンレス鋼の容器に入れ密封することによって、ラドン濃度が 167.5 [Bq/ l] のラドン標準線源を製作した。

本成果を活用することで、ラドン濃度測定のトレーサビリティ確立及び維持管理が容易に行えることが期待される。

本報告書は、東海大学が核燃料サイクル公募型研究に基づき核燃料サイクル開発機構と行った共同研究の成果である。

* 東海大学工学部応用理学科エネルギー工学専攻
** 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

JNC TY6400 2004-001

April 2004

Establishment of the Traceability on Radon Measurements
(Final Report)

Shigeyasu SAKAMOT*, Yuu ISHIMORI**, Yoshihiro MARUO**

Abstract

This report describes development of a radon standard source for establishing the traceability on radon concentration measurements.

The radon that generates by babbling the radium solution was used for calibrations of radon measurement equipments. However, as for the radon source, which is reported here, the handling is easier because a solid phase radium source is used.

Radioactivity of the radon, which is release in the vapor phase, was determined from a difference between the radioactivity of the radium and the radioactivity of the residual radon progeny in the source. Germanium detectors, which calibrated the detection efficiency with the gamma-ray reference sources, were used to those radioactivity measurements.

As for the radioactivity of the radon, which is released from the radium source it was found that they are 988 Bqs. Sealing this source in the stainless steel container that is six liters in capacity, the standard radon source of density of 167.5 [Bq/*l*] was made.

This work was performed by Tokai University and the Japan Nuclear Cycle Development Institute under the contract for the research cooperation.

* Department of Energy Engineering, School of Engineering, Tokai University

**Environment and Safety Section, Ningyo-toge Environmental Engineering Center, Japan Nuclear Cycle Development Institute

目 次

1. はじめに 1
2. 原理 1
3. 実験 3
3. 1 線源の製作 3
3. 2 Ra 線源の予備測定 3
3. 3 Ra 線源の放射能測定 4
3. 3. 1 α 線測定法 4
3. 3. 2 γ 線計測法 6
3. 3. 3 Ra 線源の放射能の測定結果 9
3. 3. 4 放射能測定結果の検討 9
3. 4 ラドン放出量の測定 10
4. 校正システム 11
4. 1 ラドン標準線源 11
4. 1. 1 線源容器 12
4. 1. 2 サンプリング再現性 12
4. 1. 3 国内共同測定実験 13
4. 1. 4 環境条件とRn濃度 13
4. 2 校正システムの構築 14
4. 2. 1 ラドン濃度校正作業ベンチの製作 14
5. 校正用ラドン標準線源のまとめ 14
6. おわりに 15
参考文献 16
図表等 17

付録1. 各種材料に対するラドンガスの吸着 付1
付録2. 大型シンチレーションセルの開発 付2

1. はじめに

多くの場合、放射線計測に使用する装置はあらかじめ校正を行っておく必要があり、その一般的方法は、標準線源を用いる手法である。しかし、空気中のラドン濃度測定に使用する測定装置については、標準線源による校正の実施が必ずしも容易ではない。その主な理由は、ラドンが短半減期の不活性気体であることによる。

放射線源を使用したラドン濃度測定用機器の校正法としては、値付けされたラジウム水溶液をバブリングすることによりラドンガス(ラドンを含む空気あるいは類似の気体)を取り出し使用する方法があり[1)]、国内においても複数の機関で、この方法により電流電離箱の校正が行われた[2,3)]。しかし、この方法はラジウム水溶液を取り扱うため放射線管理上の問題があり、また校正精度を維持するには技術上の困難がある。

このため、ラドン濃度測定用機器の校正では、理論的考察から求めた検出効率の使用、あるいは、何らかの方法により値付けされた測定器によって濃度を測定したラドンガスを使用して、校正を行う場合もある[4)]。

本研究は、固相のラジウム線源を使用し、この線源から放出される ^{222}Rn(以後 Rn と記す)の量を、^{226}Ra(以後 Ra と記す)と線源中に残存する Rn 子孫核種の放射能の差から求めるという、全く新しい方法により値付けすることにより、取り扱いが容易な校正用標準線源を製作し、Rn 濃度測定におけるトレーサビリティの確立を図るものである。

2. 原理[5)]

固相の Ra 線源からは Rn が気相中に放出されるが、その割合は線源の物理・化学的状態により異なる。線源中の Ra とそこに残存する Rn 子孫核種の放射能を測定することにより、気相中に放出された Rn の量を評価することが可能である。この様にして放出される Rn の放射能を値付けした線源を容積が既知の容器に密封することにより、ラドン標準線源として使用することができる。

放射能[D]と測定計数[N]の間には、次式の関係がある。

$$D = \frac{N}{\eta \cdot \varepsilon} \qquad (1)$$

ここで、η は測定対象である γ 線の壊変当たりの放出率、ε は対象 γ 線に対する検出器の絶対検出効率である。

Ra 及び線源中に残存する Rn 子孫核種(具体的には、短半減期子孫核種である ^{214}Pb あるいは ^{214}Bi)から放出される γ 線を測定することにより、これらの放射能を求め、その差か

ら気相中に放出されるRnの放射能[D_{Rn}]を次式より求める。

$$D_{Rn} = \frac{N_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}} - \frac{N_p}{\eta_p \cdot \varepsilon_p} \qquad (2)$$

ただし、添字*Ra*はラジウム、*p*は測定対象の子孫核種に対する値であることを示す。

この方法によって気相中に放出されるRnの放射能を値付けする場合、測定対象となるγ線の壊変当たりの放出率η及びこのγ線に対する検出器の絶対検出効率εが必要であり、その精度がラドン線源の精度を左右することになる。また線源のRn 放出率も線源の精度に大きな影響を与える。そのため、精度の良い線源を実現するためには、Rn放出率の高いRa線源を使用する必要がある(Rn放出率100％ のRa線源が使用できる場合には、Raの放射能の精度がラドン線源の精度となることは明白である)。

特別な条件として、ラドン線源に使用するものと同一と見做せ、Rnの放出がない密封状態の線源を考え、RaとRn短半減期子孫核種の放射能の比をR'とすると、

$$R' = \frac{\dfrac{N'_p}{\eta_p \cdot \varepsilon_p}}{\dfrac{N'_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}}} = 1 \qquad (3)$$

が成り立つ。ここで、「 ′」は上述の密封状態の線源に対する値であることを示すものとする。

一方、ラドン源として使用するRa線源においては、

$$R = \frac{\dfrac{N_p}{\eta_p \cdot \varepsilon_p}}{\dfrac{N_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}}} < 1 \qquad (4)$$

となる。 ここで、(2)式を変形し次のように書くことができる。

$$D_{Rn} = \frac{N_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}} \left(1 - \frac{\dfrac{N_p}{\eta_p \cdot \varepsilon_p}}{\dfrac{N_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}}} \right) \qquad (5)$$

$$D_{Rn} = \frac{N_{Ra}}{\eta_{Ra} \cdot \varepsilon_{Ra}} (1 - R) \qquad (6)$$

さらに、(6)式は次のように表すことができる。

$$D_{Rn} = D_{Ra}(1-R) \qquad (6')$$

ここで、(4)式を(3)式で除すことにより次式が得られ

$$\frac{R}{R'} = R = \frac{N'_{Ra} \cdot N_p}{N'_p \cdot N_{Ra}} \qquad (7)$$

これを(6')式に代入し

$$D_{Rn} = D_{Ra}\left(1 - \frac{N'_{Ra} \cdot N_p}{N'_p \cdot N_{Ra}}\right) \qquad (8)$$

を得る。

(8)式の結果は、Rn 放出量の測定において、子孫核種のγ線放出率 η_p 及びそのγ線に対する検出効率 ε_p は不要であり、ラドン線源の精度は、Ra 線源の放射能測定精度とγ線測定における計数の統計のみで決まること示しており、Rn 標準線源として精度と信頼性が向上する。

3．実験

3．1　線源の製作

ラドン源として使用するラジウム線源は、Amersham 社の Ra reference solution(比放射能 4.260 kBq/g±3.2%)を、デジタル・ピペットを使用しホットプレート上に置いたバッキング板に滴下し、蒸発乾固した後に電気炉で加熱処理した。

今回使用したバッキング材は、 Pt, Rh, Nb, ステンレスの4種類の金属板とステンレス板にセラミックス(Al_2O_3 及び TiO)を真空蒸着した6種類であるが、ステンレス板については、線源の表面状態が不良であったため予備測定は行っていない。

3．2　Ra 線源の予備測定

ラドン源として適した線源を選択するため、5種類の線源について表面障壁型半導体検出器 (Si SSD(sb) と記す) により、α線スペクトルを測定したところ、^{226}Ra の他に ^{222}Rn, ^{218}Po, ^{214}Po, ^{210}Po の各ピークが認められた。 ^{226}Ra のピーク計数でスペクトルを規格化し、バッキング材の種類によるピーク形状の違いを比較した結果をFig. 1 に示す。その結果、バッキング材の種類により、α線スペクトルに大きな違いのあることが明らかになった。α線計測法により Ra 線源の強度を求める場合には、エネルギー分解能の優れた線源が好ましく、ま

たRn線源として使用する場合には、線源中に残留するRnが少ないほど、精度の良い線源を実現することができる。こうした観点から、今回製作した線源の中では、バッキング材にNbを使用した線源が最も適しており、本研究の範囲では、これを採用、検討することとした。
Fig.1に示したスペクトルから求めたエネルギー分解能とRn放出率の概略値をTable 1 に示す。

3．3　Ra線源の放射能測定

3．2で製作し、採用した線源の放射能は、α線測定法として、α線標準線源との比較法と定立体角法、γ線測定法として、Raγ線標準線源との比較法及び検出効率を校正した検出器による測定を行った。得られた各測定結果について、測定精度ならびに結果の合理性を考慮してRa線源の放射能を決定する。

3．3．1　α線測定法

（i）α線スペクトルの測定とデータ整理

Ra線源の放射能を求めるために行ったα線測定は、Si SSD(sb)あるいはイオン注入型シリコン半導体検出器(ORTEC 1200AS、以下 Si SSD(ip)と記す)を使用し、検出器—線源間距離60～70 mm で行った。

バッキング材としてNb板を使用したRa線源について、Si SSD(sb) を使用して測定したα線波高分布スペクトルをFig.2 に示す。スペクトルにはRaのピーク以外にRa崩壊生成核種のピークが存在し、測定対象となるRaよりも高いエネルギーを持つα線が作るピークの低波高側テイルが、Raのピーク部分に重なっている。そのためRaの放射能を求めるには、こうした高エネルギーα線の作るテイル成分を除去する必要がある。

エネルギーの最も高い ^{214}Po のピークは、他のピークから十分離れているため、そのテイルが他のピークに影響を与えることはないものとする。さらに各ピークのテイル部分の形状が相似であるとして、

1) ^{214}Po のピークについて、ピーク中心部の計数(ここでは6ch の和)を用いて、^{218}Po のピークに規格化することにより、^{222}Rn,^{210}Po,^{226}Ra の各ピークに含まれる ^{218}Po のテイル成分を求め、測定されたスペクトルからテイル成分を除去したスペクトルを作成する。(Fig. 3 (A))
2) 次に ^{222}Rn のピークに対して、^{218}Po の場合と同様の操作を行い ^{210}Po,^{226}Ra のピークから ^{222}Rn のテイル成分を除去する。(Fig. 3 (B))

3) 最後に、^{226}Ra のピークから ^{210}Po のテイル成分を除去することにより、Ra による正味の計数を求める。(Fig. 3 (C))

(ii) α線標準線源との比較測定法

比較測定法は、検出器に Si SSD(sb)を使用し、線源—検出器間距離 60 mm で測定を行った。α 線標準線源として、Table 2 に示す線源を使用し Fig. 4 に示す波高分布スペクトルを得た。100 ch 以下の低波高部分にはバックグラウンド成分が含まれるため、150 ch 以下の計数を 150～200 ch の平均計数で置き換え、先に示した Ra 線源の測定結果(Fig. 2)との間で、積分計数を比較することにより以下の結果を得た。

- AEA ^{241}Am 線源との比較測定　1442±40 Bq　(α 粒子束密度に基づく値)
  同 上　1424±47 Bq　(Bq 値に基づく値)
- DAMRI ^{244}Cm 線源との比較測定　1475±43 Bq　(α 粒子束密度に基づく値)

誤差は、標準線源の精度、標準線源とRa線源の測定における統計、Ra線源の測定における高エネルギーα 線のテイル成分の除去、及び 150 ch 以下の計数を推定値で置き換えることによる誤差についてその伝播を考慮し 95 % 確率で示す。なお、標準線源、Ra 線源共に面線源であり、その直径には 5 mm 程度の差があるが、幾何学的効率の差はわずかであるので補正は行わない。

(iii) 定立体角法

ステンレス板で精密なコリメータを製作し*、Si SSD(ip)の前方に配置し、線源とコリメータのほぼ中間には散乱粒子を除去する目的でバッフル板を設けた。定立体角法の検出部構成要素の配置を Fig. 5 に示す。

73000 sec の測定によって得た波高分布スペクトル(Fig. 6)に対して、前述の方法により高エネルギーα 線のテイル成分を除去し、Ra の α 線によるスペクトルを作成した。散乱線などによるバックグラウンドを評価する目的で、バッフル板上に 30μm の Al 箔を置いて測定を行った結果、100 ch 以下の部分の計数は少なく、大部分は電気的雑音によるものであった。

---

* 0.5 mm 厚のステンレス板にレーザーによる加工を行い、ダイヤモンドペーストにより切断面を研磨し、シリンダー・ゲージを用いて内径を確認し精度が±10 μm 以内であることを確認した。コリメータ径は、20.00, 14.00 , 10.00, 7.00 mm の4種類を製作したが、計数の統計を考え 20.00 mm のコリメータを主として使用した。

そこで、閾値を 170 ch として計数の総和を求め、NET 計数として 538635 Counts, 7.379 cps を得た。170 ch 以下の計数が少ないため、閾値を 170 ch としたことによる影響は 0.2 % 以下である。

定立体角法による測定条件は以下の通りである。

コリメータ直径: 20.00 ± 0.02 [mm]

線源—コリメータ間距離: 69.20 ± 0.25 [mm]

線源直径: 8 ± 2 [mm]

(幾何学的効率: 5.128×10^{-3} (±0.74 %)

測定時間: 73,000 [sec]

これより定立体角法による Ra 線源の放射能は 1439 ± 11 Bq である。

ここで考慮した誤差は、幾何学的形状の誤差、計数の統計、Ra 子孫核種の α 線が作るテイル成分の除去に伴う誤差、閾値以下の計数の見積もりに伴う誤差である。

3．3．2 γ線計測法

(i) γ線測定装置

γ線測定法では、検出器として PGT 社の Coaxial 型 HPGe 検出器と EURISYS 社の Planar 型 HPGe 検出器を使用した。波高分布スペクトルの測定は、MCA に TENNELEC 社の MULTIPORT-PCA を 4 kch で使用し、Ra 線源の測定においては、長時間にわたる測定が必要なことから、ディジタル・スペクトル・スタビライザー(DSS)を使用した。

(ii) スペクトルデータの処理

γ 線計測法による Ra 線源の放射能測定では、γ 線標準線源と Ra 試料の両方に対して、対象となる γ 線の全エネルギー吸収ピーク計数を求める必要がある。そのため、測定された波高分布スペクトルを処理し、より高エネルギーの γ 線により生ずるコンプトン連続成分及びバックグラウンド成分を除去する必要がある。このためのデータ処理法としてはさまざまな方法が提案されているが、本研究においては、

1） 比較測定など、同一核種同一エネルギーピークに対して、直接計数率による比較を行う場合、及び測定値が Ra の放射能の値に影響を与えることのない場合には、

MCA の ROI 機能*を利用して NET 計数を求めた。

2） その他のケース、例えば、エネルギー依存検出効率の測定などにおいては、R.G.Helmer[6]の方法を用いた。これらの方法を用いることにより、データ処理は多少複雑になるが、ピークの両端を結ぶ直線を用いて連続成分を評価する方法に比べ、ピーク低エネルギー側テイルの影響を軽減できる利点がある。

いずれの方法を用いる場合においても、ピーク領域の設定範囲が NET 計数に影響を与える。このため、ピーク領域の設定にあたっては、ピーク領域を前後数 ch にわたり変えることによる NET 計数の変化が、ピーク部分の全計数と連続成分の計数の統計に起因する誤差を下回るよう設定を行った。

（iii）γ線標準線源との比較測定

γ線標準線源との比較測定には Coaxial 型 HPGe 検出器を使用し、標準線源には AEA 製 Raγ線標準線源(5.90 kBq, 3%)を使用した。検出器—線源間距離 49.9±0.1 mm で標準線源と試料を測定し、Ra が放出する 186.2 keV のγ線に対する全エネルギー吸収ピーク計数から試料の放射能を求め、下記の値を得た。

1620±55 Bq

ここに示す誤差は、標準線源の精度、2つの線源のピーク計数に対する誤差、線源—検出器間距離の誤差を考慮した。

（iv）検出効率を校正した検出器による測定

1．HPGe 検出器の検出効率

検出効率が既知の検出器により Ra 線源の値付けを行うためには、Ra が放出する 186.2 keV のγ線に対する、HPGe 検出器の絶対検出効率を求めておく必要がある。しかし、このエネルギーに対する検出効率を直接求めることのできるγ線標準線源は入手できないため、内・外挿法により検出効率を求める必要がある。その一般的方法は、エネルギー依存検出効率曲線を作ることである。ここでは、Table 3 に示す7核種の γ 線標準線源を使用し、Planar 型検出器については検出器—線源間距離 99.8mm、Coaxial 型検出器については検出器

* OxfordWin-MCA and Assayer software V 3.80

—線源間距離 170 mm で検出効率の測定を行った。これらの距離は、検出効率測定の際に起こるコインシデンス・サム効果の影響と、計数に関わる統計精度を考慮して決定した。使用したγ線標準線源は、放出光子数で値付けされている線源と放射能で値付けされている線源の2種類があり、後者については、"WWW Table of Radioactive Isotopes"のγ線放出率データを用い放出光子数を求めた。このようにして得られた検出効率の値を Table 4,5 に示す。

これらの値から、内挿法により 186.2 keV のγ線に対する全エネルギー吸収ピーク検出効率を求めるため、エネルギーと検出効率の両対数について、最少二乗法による多項式近似を行い、エネルギー依存検出効率曲線を作成した。多項式の次数は、Planar 型検出器では4次式、Coaxial 型検出器では6次式とし、その結果を Fig. 7～9 に示す。Fig. 8 は Planar 型検出器に対する 186 keV 近傍の拡大図であり、検出効率の誤差として用いるため、最少二乗法処理における 95 %確率の上・下限幅が示してある。

これらのエネルギー依存検出効率曲線から得た 186.2 keV のγ線に対する検出効率 ε_γ は、次の通りである。

Planar 型検出器では $(2.51\pm0.06)\times10^{-3}$

Coaxial 型検出器では $(1.164\pm0.034)\times10^{-3}$

2．校正した HPGe により求めた Ra 線源の放射能

通常、測定対象線源(試料)の放射能は、エネルギー依存検出効率の測定と同一条件の下でその線源を測定することにより求める。しかし先に述べた通り、検出効率曲線はコインシデンス・サムの影響を避けるため、検出効率の低い条件下で測定しており、今回製作した Ra 試料の測定においては十分な統計が得られない。そこで、検出効率の校正を行った位置で、一旦 AEA 製の Ra 線源を測定し、これとは別に、Coaxial 型検出器を使用し、線源位置を検出効率が十分高い 49.9 mm まで近づけ、Ra 試料と AEA 製 Ra 線源を測定し、次式より試料の放射能を決定した。

$$Q_0 = \frac{N_0}{N_A} \times \frac{C_A}{\varepsilon_\gamma \times \eta_\gamma} \qquad (9)$$

ただし、

Q_0 ：試料の放射能

N_A ：AEA 線源の計数，　N_0：試料の計数値

C_A ：検出効率を測定した位置での AEA 線源の計数率

ε_γ：186 keV ガンマ線に対する検出効率

η_γ：186 keV ガンマ線の放出率 (0.0359)

である。

校正曲線の測定位置における AEA 線源の計数は、

Planar Type HPGe : 49202 ± 750 (counts/10^5sec)

Coaxial Type HPGe : 45724 ± 972 (counts/2×10^5sec)

となり、49.9 mm の位置における Coaxial Type HPGe による計数値は、

AEA 線源 : 188124 ± 1690 (counts/10^5sec)

Ra 線源 : 51782 ± 648 (counts/10^5sec)

である。これらの計数値から(9)式を用い Ra 試料の放射能として、次の結果を得た。

Planar Type HPGe : 1502±54 Bq

Coaxial Type HPGe : 1504±65 Bq

3．3．3 Ra 線源の放射能の測定結果

前項までに示した Ra 試料の７つの異なる放射能測定結果と、線源の製作に使用した Ra 標準溶液の量から算出した放射能*を Fig. 10 にまとめた。これらの値の単純平均は 1491 Bq となる。しかし、γ線標準線源を用いた比較測定の結果は、他の測定法の結果に比べて、明らかに高い値を示しており、またα線計測法とγ線計測法による測定結果の間には５％近い差が見られる。さらにα線計測による結果の間にも２～３％の差が見られる。一方、検出効率を校正した Ge 検出器を使用したγ線計測法の結果は、２つの測定条件が大きく異なるにも関わらず良い一致を示している。

3．3．4 放射能測定結果の検討

γ線標準線源を用いた比較測定の結果が、他の測定に比べて高い値を示した原因は、使用した標準線源の構造と放射能の値付け法にあると考えられる。この線源は Ra 溶液を吸着させたセラミックス片をガラスカプセルに封入し、プラスチックス容器に埋め込んである。また、放射能の値付けは全γ線計測法によって行われている。そのため、線源から放出されるγ線の内、崩壊生成核種から放出されるエネルギーの高いγ線は、容器による吸収の影響をあ

＊ AEA の Ra 標準溶液は 0.5N 塩酸溶液で、放射能(21.41 kBq, 3.2%)と溶液の重量(5.0261 g)が直接測定された量である。これより、線源製作時の室温における放射能濃度を求めると 4.33 Bq/μl となり、使用溶液量 350μl から、1516 ± 57 Bq となる。ここに示した誤差には、標準線源の精度 3.2%、ディジタル・ピペットの計量精度 1.5% 以外に、線源製作時の溶液の散逸などを 1.5%と仮定している。

まり受けないが、Raが放出する186 keVのγ光子は吸収の影響を受け減少していると考えられる。吸収の影響を補正するため、ガラスカプセルとプラスチック容器の厚さに相当する吸収体を線源に付加して測定を行い、外挿法により吸収の影響を求めたところ(3.8 ± 0.9) %であった。この結果を用いて、標準線源の吸収を補正した結果を Fig. 10 中に点線で示す。

α線計測法による測定結果が全体に低い値を示しているのは、Ra試料の自己吸収が無視できないためと考えることが妥当である。また、Am標準線源とCm標準線源を用いた比較測定の結果に差が見られるが、2つの標準線源を同一幾何学条件の下で測定し、比較したところ、Cm線源のα線放出率はAm線源と比べると1% 余り低く値付けされていることが明らかとなった。このことを考慮すると両者の差は減少する。

Am標準線源についてBq単位による値付けを用いた結果は、"2πに対するα粒子放出率×2" ＞ Bq値　であることから、当然α粒子の放出率を基にした放射能に比べて低い値となる。これは、α線標準線源のα粒子放出率の値付けには、後方散乱粒子が含まれているためである。

従って、α線計測法によりRa線源の値付けを正確に行うためには、(1)線源の自己吸収を正確に評価する必要があり、(2) α線標準線源との比較法を用いる場合には、標準線源の校正値である α 線束密度に占める散乱線の割合を明らかにする必要がある。なお、先に示したα線計測法による測定結果には、この2点に対する考慮は行われていない。

校正したHPGeを用いた測定結果は、異なる検出器を使用し、線源検出器間距離も大幅に異なる条件の下で測定を行っているにも関わらず、良い一致を示している。このことは、γ線標準線源及びRa線源の測定において、全エネルギー吸収ピーク計数を求めるための連続成分の除去、エネルギー校正曲線を作成するための最少二乗法による多項式近似などが適切に行われていることを示している。

以上の考察から、Ra線源の放射能としては、γ線標準線源を用いてエネルギー依存絶対検出効率を校正したPlanar Type HPGe検出器による測定結果を採用する。

3．4 ラドン放出量の測定

本研究では、Rn線源の強度を、Ra線源中のRaの放射能と線源内に残存するRn子孫核種の放射能の差によって値付けする。

このためには、それぞれの放射能を求めるために、Ra及び測定対象とするRn子孫核種が放出するγ線に対する計数と検出効率、そのγ線放出率が必要である。しかし、すでに2章で述べたとおり、特定の条件を満たす線源の使用が可能であるならば、Rn 線源として使

用する線源と、そのような条件を満たす密封線源に対して、γ 線スペクトルを測定し(8)式により、Rn 放出量を決めることができる。

このための具体的測定法を次に示す。

(1)線源を Fig.11 に示すように、薄窓の付いた小容器に取り付け、線源から放出された Rn が小容器内に滞留するのを防ぐため、充分な量の空気を流しながら γ 線スペクトルを測定する。

(2)小容器の薄窓と同じ材料で Ra 線源部を密封し、Rn をその内部に閉じ込めた状態で γ 線スペクトルの時間変化を観察し、崩壊生成核種が飽和に達した状態で γ 線スペクトルを測定する。

(3)開放状態と密封状態の線源の γ 線スペクトルから、Rn 崩壊生成核種の γ 線 (本研究では ^{214}Pb から放出される 295 keV, 352 keV, ^{214}Bi から放出される 609 keV, 1120 keV の γ 線を対象とする) に対する全エネルギー吸収ピーク計数を求め、開放状態の線源中に残留する ^{222}Rn の割合を求める。

このようにして求めた Ra 試料中への Rn 残留率(及び Rn 放出率)の結果を Table 6 に示す。

2核種4種類の γ 線から求めたら Rn 放出率は、±1% 以内で一致しており、その加重平均は*、0.341±0.005 となる。これより、Ra 線源の Rn 放出率は, 65.8 %となり、Planar Type HPGe 検出器により求めた Ra 試料の放射能を用いることにより、今回製作した Rn 線源の強度は **988 ± 39 Bq** となる。

4．校正システム

4．1 ラドン標準線源

前章で述べた方法により Rn 放出量を値付けした Ra 線源を、容積の知られた気密容器内に取り付け、気相部分の Rn 放射能が飽和値に達した後、ラドン標準線源として使用する。この標準線源の特徴は、ラドンガスのサンプリングにより容器内のラドンガス濃度(あるいはラドン強度)は一時的に低下するが、1ヶ月程度経過することにより実質的に初期濃度に復する

---

* 誤差の割合の逆数を重みとする。

ことである。そのため、実験の再現が容易であり、標準線源として利点が多い。

4．1．1 線源容器

線源容器に必要な条件は、標準線源の使用法と密接に関係する。いくつかの使用法を想定し、線源容器に求められる条件を検討した。想定される何れの使用法においても、線源容器内のラドンガスの圧力に変化が生じる。その際、線源容器の容積(形状)の変化、及び容器内に外部から不要な空気が流入することを避ける必要がある。また，使用法によっては、線源容器から対象物(分注容器、検出器など)に対して迅速にラドンガスを移送する必要がある。容器の構造はこうした点を考慮して設計を行った。

筆者らの既報論文[7]及びその後行った同種の研究によると、Fig. 12,13 に見られるように、ラドンガスは多くのプラスチックス材料表面に相当量吸着する。そのため線源容器のように長期間ラドンガスと接し、濃度に影響を与える可能性がある場所には、プラスチックス材料の使用を避け、金属材料を使用する事が賢明と考え、線源容器はステンレス鋼を使用し、O-ring など金属材料を使用できない部分については、プラスチックスの中では吸着量の少ないテフロン製品を用いた。

線源容器には、ラドンガスの取り出しと空気を充填するために、Inlet 及び Outlet が設けられているが、そこに用いるバルブには、確実な遮断と迅速な開閉が可能な、スイッチ・ベローズバルブを使用した。その他に、容器上部にはラドンガスのサンプリングに伴う容器内の圧力変化をモニターするための圧力センサー、及び温・湿度計を取り付けるポートが設けられている。線源容器の外観をFig. 14 に示す。なお、製作した容器の容積は、水重量法により実測した結果 5896 ± 25 cm^3 であった。したがって、この標準線源の飽和ラドンガス濃度は、167.6 [Bq/ l]となる。

4．1．2 サンプリングの再現性

標準線源の使い方には様々な方法が考えられるが、精度と再現性を重視する場合には、標準線源から真空にした小容器にラドンガスを分け採る方法が優れていると考えられる。そこでこの方法について、サンプリングの再現性を確認するための実験を行った。

実験は、標準線源の Outlet に容積約 150 cm^3 の小容器を接続し、接続配管と共に真空にした後、標準線源—小容器間のバルブを開いて、ラドンガスを小容器に分け採り、その後、小容器内のラドンガスを 1.5 リットルの2次標準電離箱に移送し、電離電流を測定する方法で行った。

繰り返しサンプリングを行うことによる標準線源内のラドンガス濃度の変化(サンプリングによる減少と時間経過による蓄積)を補正し、使用した電離箱のラドン濃度—電離電流換算係数を求めて比較した結果を Table 7 に示す。このようなサンプリング法が十分な再現性を持ち、校正用標準線源の使用法として信頼できること示している。

4．1．3　国内共同測定実験

開発したラドン標準線源を使用して、基準測定器に 1.5 l の電流電離箱を使用している国内５研究機関（サイクル機構、東海大他３機関）の間で、比較実験を実施した。

実験法は、ラドン標準線源の Outlet に５個の小容器を直列状に接続し、真空ポンプにより小容器及び接続配管内を真空にした後、真空ポンプ—小容器間のバルブを閉じ、標準線源—小容器間のバルブを開くことによって、ラドンガスを各容器内に分け取った。

その後、小容器を東海大以外の4機関に送付し、各機関は受け取った小容器内の Rn の放射能を、各機関の標準的測定法により測定して Bq 単位で報告する、いわゆるブラインドテストである。なお東海大については、放射能が既知となるため、電離箱の電離電流—放射能濃度変換係数を求めることにした。

測定結果は Table 8 に示すとおりで、標準線源から小容器に分け採った試料の計算値に対して非常に良く一致した機関から 15% 近く異なる機関まで多様であった。なお、東海大学で使用している電離箱の電離電流—放射能濃度変換係数は、21.7 [Bq/m^3/fA] であった。

4．1．4　環境条件と Rn 濃度

ラドン標準線源を使用する場合、線源の置かれた環境条件が Rn 濃度に影響を与える可能性がある。そうした項目としては、線源容器内の圧力、温度、湿度が考えられる。これら項目に対して、その影響を測定した。対象とする項目以外の２つの条件をできるだけ一定に保ち、8～10 日経過後、真空にした小容器に標準線源内のラドンガスをサンプリングし、電離箱に移送し電離電流を測定した(なお繰り返しサンプリングを行うことによる標準線源内のラドン濃度の変化は、4．1．2 に述べる方法により補正を行った)。

得られた測定結果を Fig. 15～17 に示す。なお、これらの図に示した誤差棒は、およそ 20 分間(50 回)の電離電流測定における電流の標準偏差のみを示してある。

これらの結果から、線源容器内の圧力は通常の使用条件の下では、標準線源の強度に影響を与えないと考えられる。一方、ラドン濃度に対する温度及び湿度係数は正の値を示し

た。Fig.16、17 中の実線は、何れも測定結果を 1 次式で近似した結果であり、温度依存性は 0.78 [%/℃]、湿度依存性は 0.31 [%/(相対湿度%)]である。

4．2 校正システムの構築

真空にした小容器に標準線源からラドンガスを分注する方法は、ラドン濃度測定装置の校正にとって優れた方法であることが確認された。しかし、校正対象の中には、真空にしてラドンガスを移送する事の出来ない検出器等もある。そこで、そのような対象を含む様々な測定器具・装置の校正が容易に行えるようにするため、必要な機器を装備した作業ベンチを製作した。

4．2．1 ラドン濃度校正用作業用ベンチ

校正作業用ベンチは、下記の使用法を前提として製作した。

1．真空にした容器を標準線源に接続し、標準線源内のラドンガスを一気に容器に移送する。
2．マスフローコントローラを使用して、標準線源内のラドンガスを一定流量で減圧した容器あるいは検出器に移送する。
3．標準線源とサンプリング容器あるいは検出器、循環ポンプを直列状に接続し、標準線源内のラドンガスを循環させて、系全体を等濃度のラドンガスに置き換える。

これらの方法の概念を Fig. 18 ～20 に示す。

作業ベンチには、線源容器,分注用小型容器,油回転式真空ポンプ,循環ポンプ,マスフローコントローラ, 及び関連する表示器、切り替えバルブ等が取り付けられている。作業ベンチの写真を Fig.21 に示す。

5．校正用ラドン標準線源のまとめ

空気中ラドン濃度測定装置校正用ラドン標準線源を製作した。

製作した標準線源は、固相の Ra 線源を使用し Ra の放射能と線源内に残存する Rn 孫核種の放射能の差から、気相中に放出される Rn の放射能を求めるという新しい考え方に基づいて値付けを行った。

- Rn 源用の Ra 線源は、6 種類の異なるバッキング材を用いて製作したが、Nb を使用した線源が、Rn 放出率などの点から優れていた。

- Ra の放射能は、α 線及び γ 線計測による7種類の方法により測定を行ったが、γ 線標準線源を用いて校正した Plannar 型 HPGe 検出器を用いた測定の結果が最も合理的であるとし 1502 ± 54 [Bq] と決定した。
- 線源から放出される Rn の割合は、Rn 源として使用する状態の線源とそれを密封状態にした線源の双方に対して γ 線波高分布スペクトルを測定し、対応する Rn 子孫核種の γ 線計数の比から Rn 残留率を求め、Rn 放出率 65.8 %を得た。
- 今回製作した Rn 線源の強度は 988 ± 39 [Bq] であった。
- Rn 線源を容積 5.896 [l]のステンレス製容器に封入し、ラドン濃度 167.6 [Bq/ l]のラドン標準線源が作られた。
- ラドン測定器具・装置の校正作業を確実かつ容易に実施できるようにするため、想定される校正作業に必要な機器を装備した作業ベンチを製作した。
- 標準線源から一定量のラドンガスを分け取る場合の再現性試験の結果からは、充分安定したサンプリングが可能であることが示された。
- 本標準線源から同時に分け取った試料により、国内5研究機関の間でサンプリングした Rn の放射能を測定する共同実験を行った。その結果は、誤差範囲で一致した機関から 15% 近い差のある機関まで広く分布した。
- 今回開発した標準線源は、温度及び湿度依存性を持つ。そのため、特に正確な校正作業を必要とする場合には、それらの条件を一定にすることが望ましい。温度は標準線源をサンプリング前 10 日程度恒温槽に入れておくことで十分に対応することが出来、湿度に関しては、乾燥空気の充填あるいは乾燥／加湿搭を用いて、標準線源容器内の空気をあらかじめ、所定の湿度とすることにより精度の高いラドンガスを得る事ができる。

6．おわりに

ラドン濃度測定のトレーサビリティ確立を目的として、空気中ラドン濃度測定に用いる測定装置・器具の校正に使用するための、取り扱いが容易で、精度の良い校正を行うことのできる線源を開発した。ラドン濃度の値付け精度として±4%の線源を実現し、開発目標を達することが出来た。

また、実際の機器校正においては、線源の精度と共に校正の確実性・再現性などが重要であり、その適用可能性についても検討を行った。4．1．2 に示した「サンプリングの再現性」についての実験結果は、この標準線源がそうした要求を満たすことを示している。一方、4．1．3 に示した「国内共同測定実験」の結果は、機関による差が確認されたが、試行が 1

回のみであり、偶発的原因によるものか、当該機関の校正値あるいは測定法に関わるものかについて、現時点では不明である。しかし、このような結果は、今回開発した再現性のある校正用標準線源の重要性を示している。

これらの結果から、今回の成果を活用することで、ラドン濃度測定のトレーサビリティ確立及び維持管理が容易に行えることが期待される。

参考文献

1) T.M.Semkow, et al. Nucl. Instrum. and Meth., A 353 (1994) 515

2)下 道国, 飯田孝夫, 川野 実; 保健物理, 33 (1998) 25

3)古田定昭, 伊藤公雄, 石森 有;RADIOISOTOPES, 48 (1999) 15.

4) S.D.Schery et al. Rev. Sci. Instrum., 51 (1980) 338.

5)阪元重康, 古田定昭, 石森 有;Proceedings of the Fourth Workshop on Environmental Radioactivity, (2004) 37.

6) R.G.Helmer, Nucl. Instrum. and Meth., 199 (1982) 521.

7)阪元重康, 他;RADIOISOTOPES, 52 (2003) 29.

Table 1 バッキング材による α 線スペクトル形状とラドン放出率の差異

Backing Material	Pt	Rh	Nb	Al_2O_3	TiO
Ra-226 FWHM [ch]	8	9	8	12	14
Ra-226 FW . 1M [ch]	35	35	27	54	54
Po-214 FWHM [ch]	8	9	7	9	12
Po-214 FW . 1M [ch]	25	31	22	34	36
Peak Ratio [$^{214}Po/^{226}Ra$]	0.64	0.55	0.39	0.5	0.65
Rn Emanation Ratio [%]	36	45	61	50	35

Table 2 α 線計測法で使用した α 線標準線源

Nuclide	Am-241	Cm-244	Am-241
Source type/no.	GT459	EASD20	EASC30
α emission rate ($s^{-1}\cdot 2\pi sr$)	2.40×10^3, 4.74 kBq	175.0	1.95×10^3
Uncertainty (2k)	2 %, 3%*	1.1 %	1.0 %
Supplier	AEA	DAMRI	CERCA

＊Uncertainty of the activity: 3%
Uncertainty of the α emission rate: 2%

Table 3 HPGe の校正に使用した γ 線標準線源

Nuclide	Activity	Photons	Uncertainty	Source type	Reference date	Supplier
Am-241	45.6 kBq		3.50%	EGSA15	2003/5/23	CERCA
Ba-133	10.0 μCi		3.00%	GS3	1976/9/10	LMRI
Co-57	35.8 kBq	30.6/3.81 k	2.00%	EGEA10	2003/7/18	CERCA
Co-60	10.4 μCi		2.50%	GS3	1976/9/10	LMRI
Ce-139		28.91 k	1.50%	EGEA10	2003/7/18	CERCA
Cs-137	12.6 μCi		2.50%	GS3	1976/9/10	LMRI
Eu-152	417 kBq		5.00%	EFR11511	1997/3/1	Amersham

Table 4　Planar 型 HPGe 検出器のエネルギー依存絶対検出効率

Nuclide	Energy (keV)	Efficiency	Uncertainty (2k)
Am-241	59.5	4.569E-03	± 1.690E-04
Ba-133	81.0	4.533E-03	± 1.496E-04
Eu-152	121.8	3.925E-03	± 8.200E-05
Co-57	122.1	3.990E-03	± 8.380E-05
Co-57	136.5	3.674E-03	± 8.820E-05
Ce-139	165.9	2.970E-03	± 5.350E-05
Eu-152	244.7	1.598E-03	± 3.320E-05
Eu-152	295.0	1.106E-03	± 5.600E-05
Eu-152	344.3	9.214E-04	± 2.300E-05
Ba-133	356.0	8.807E-04	± 2.818E-05
Eu-152	411.1	6.973E-04	± 2.160E-05
Eu-152	444.0	6.163E-04	± 1.540E-05

Table 5　Coaxial HPGe 検出器のエネルギー依存絶対検出効率

Nuclide	Energy (keV)	Efficiency	Uncertainty (2k)
Ba-133	81.0	7.094E-04	± 2.480E-05
Eu-152	121.8	1.255E-03	± 3.765E-05
Co-57	122.1	1.310E-03	± 2.751E-05
Co-57	136.5	1.333E-03	± 3.333E-05
Ce-139	165.9	1.278E-03	± 1.917E-05
Eu-152	244.7	8.189E-04	± 2.784E-05
Ba-133	276.4	7.355E-04	± 3.457E-05
Ba-133	302.9	6.637E-04	± 2.389E-05
Eu-152	344.3	5.189E-04	± 1.609E-05
Ba-133	356.0	5.346E-04	± 1.711E-05
Eu-152	411.1	4.172E-04	± 2.336E-05
Eu-152	444.0	3.816E-04	± 1.946E-05
Ba-137m	662.0	2.520E-04	± 7.560E-06
Eu-152	778.9	1.978E-04	± 7.319E-06
Eu-152	867.4	1.833E-04	± 1.045E-05
Eu-152	964.1	1.591E-04	± 5.728E-06
Eu-152	1112.1	1.411E-04	± 5.221E-06
Co-60	1173.0	1.341E-04	± 4.425E-06
Co-60	1332.0	1.143E-04	± 3.772E-06
Eu-152	1408.0	1.103E-04	± 3.309E-06

Table 6 Ra 線源内への Rn 残留率

Nucleus	Energy	Residual Rn
^{214}Pb	295 keV	0.341±0.005
^{214}Pb	352 keV	0.340±0.005
^{214}Bi	609 keV	0.343±0.005
^{214}Bi	1120 keV	0.338±0.006
	Average	0.341±0.005

Table 7 サンプリングの再現性

Exp. No.	Source activity(Bq)	Sampring Activity (Bq)	Transfer activity to IC(Bq)
1	950.16	24.11	23.45
2	934.74	23.72	23.11
3	924.18	23.45	22.89
4	911.38	23.12	22.61
5	903.28	22.92	22.41
Exp. No.	Saturated current (fA)	Attenuation corrected current (fA)	Conversion factor (Bq/m^3/fA)
1	706	720 ± 6	21.7±0.2
2	692	706 ± 6	21.8±0.2
3	694	708 ± 4	21.5±0.1
4	682	696 ± 5	21.7±0.2
5	673	686 ± 8	21.8±0.3

Table 8 5 機関比較実験

機 関	容器番号と容積 (cc)	サンプリング量(Bq)	測定結果(Bq)	偏 差(%)
A	#1 153.8	23.22	23.3	+0.3
B	#2 155.1	23.42	22.5±0.9	-3.9
C	#3 156.1	23.57	21.7±0.27	-7.9
D	#4 154.8	23.37	19.8±0.17	-15.3

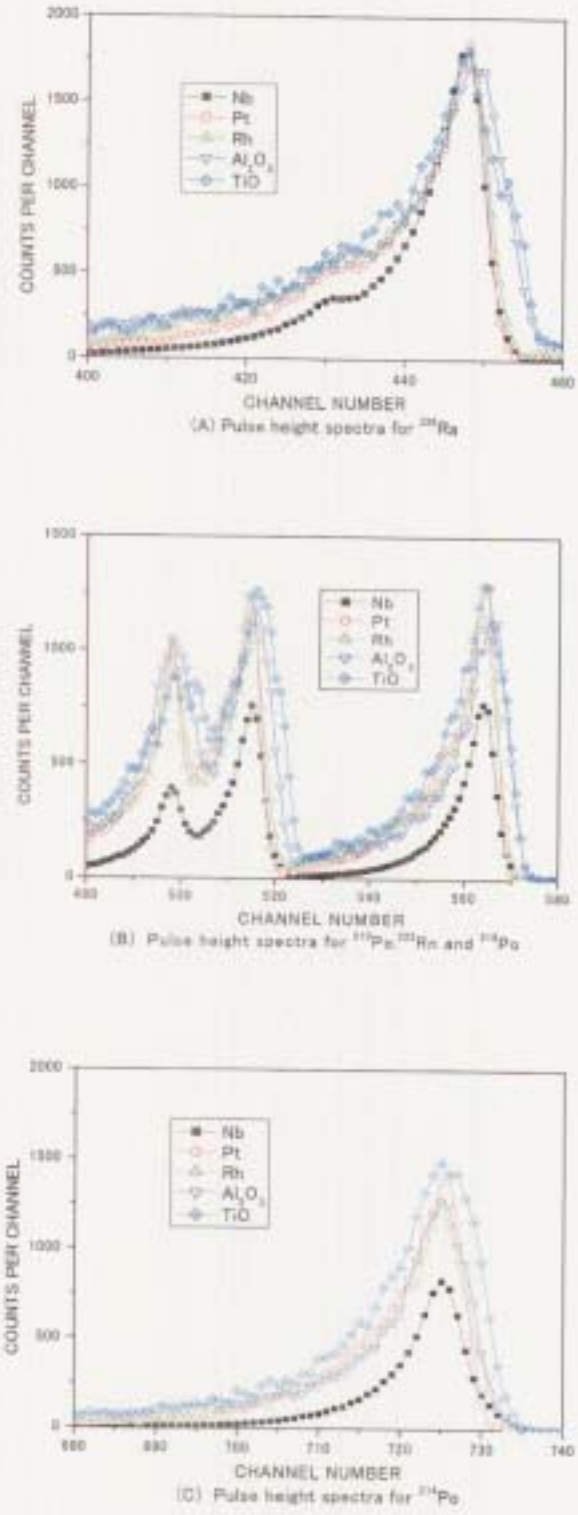


Fig. 1 パッキング材による Ra 線源から放出されるα線スペクトルの違い

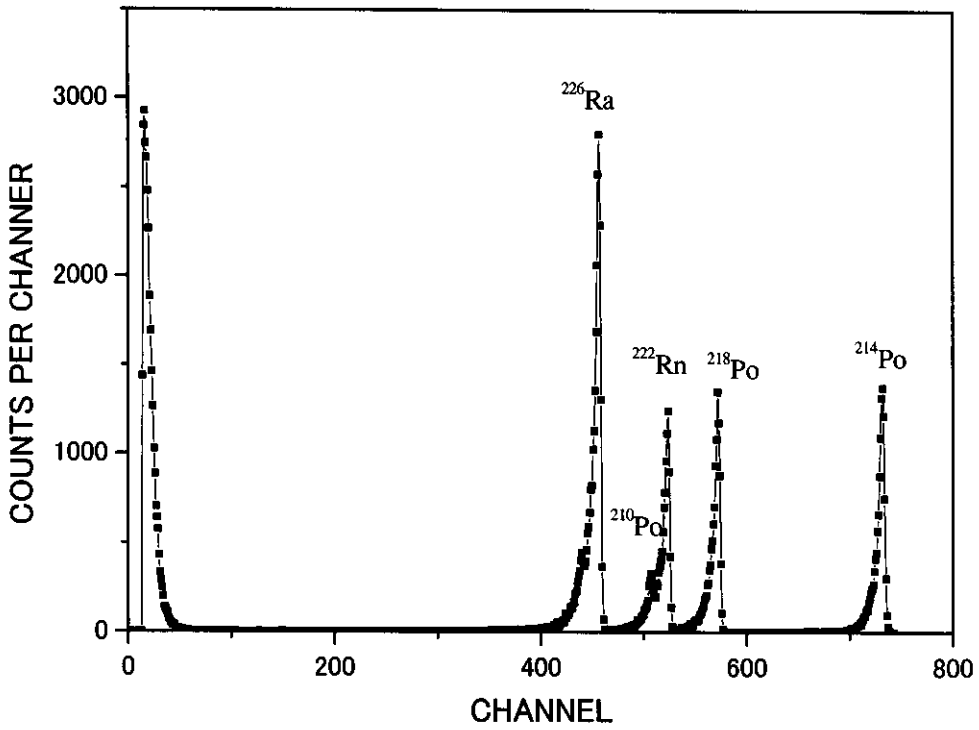


Fig. 2 バッキング材に Nb 板を使用した Ra 線源から放出されるα線のスペクトル
Si SSD(sb)による測定結果

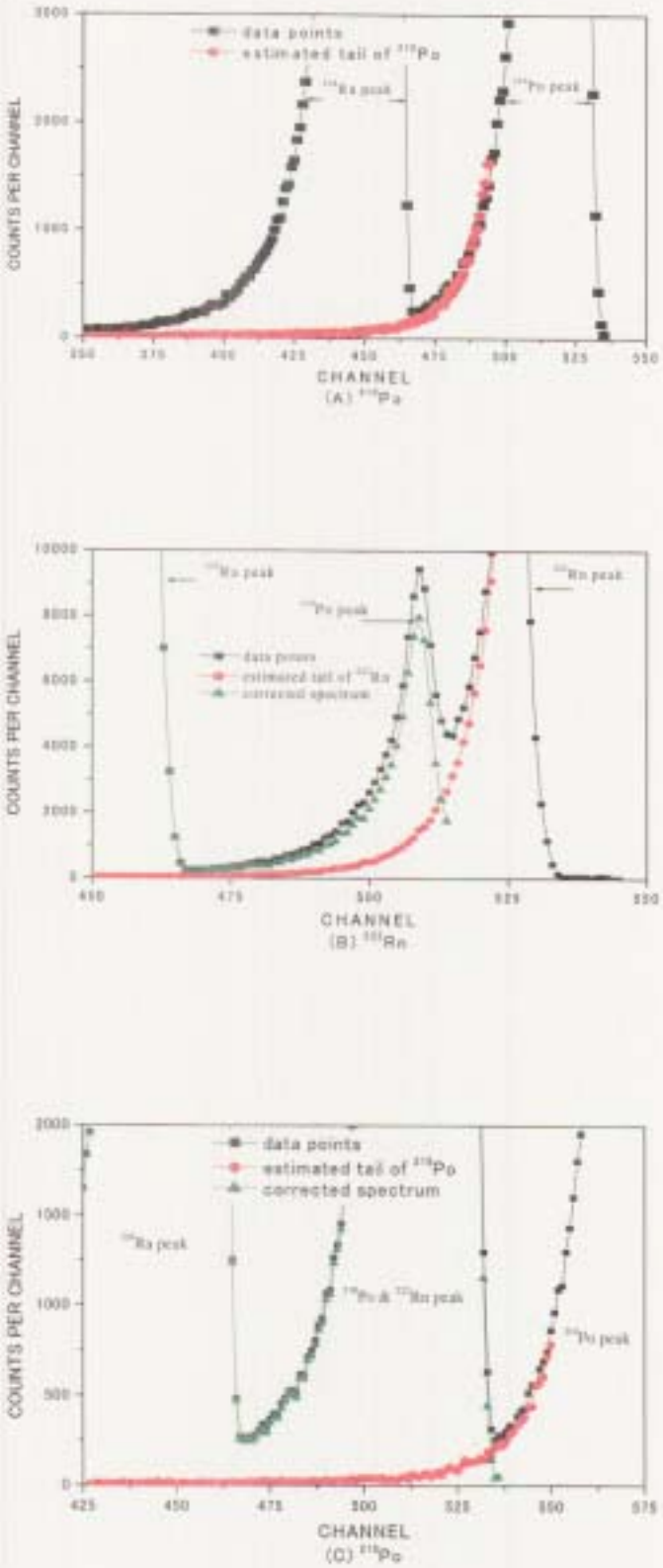


Fig. 3 高エネルギーα線によるテイル成分の除去

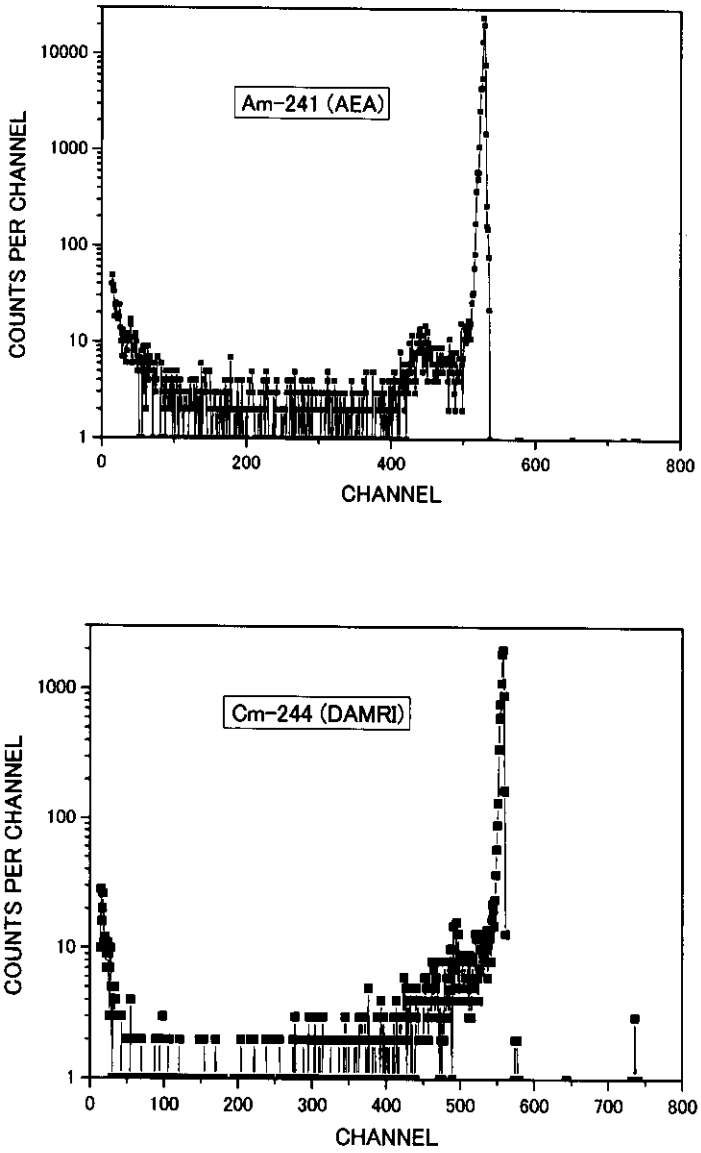


Fig. 4 α線比較測定法によるRa放射能定量のためSi SSD (sb)
により測定したα線標準線源の波高分布スペクトル

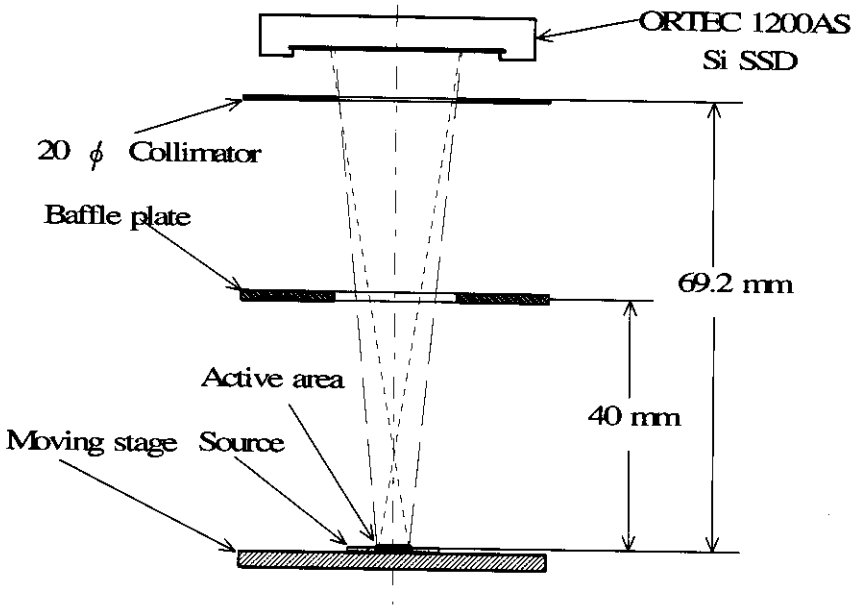


Fig. 5 定立体角法によるα線測定の検出部配置図

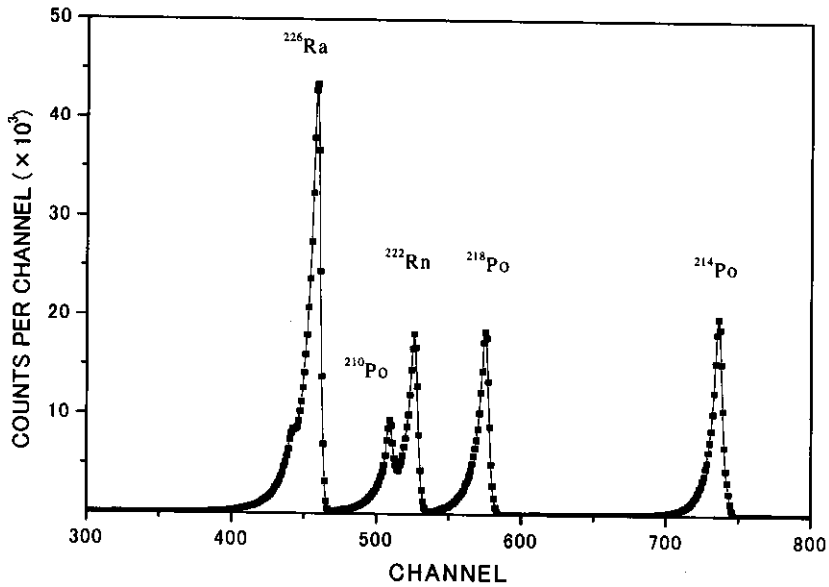


Fig. 6 Si SSD(ip)により測定されたRa線源の波高分布スペクトル

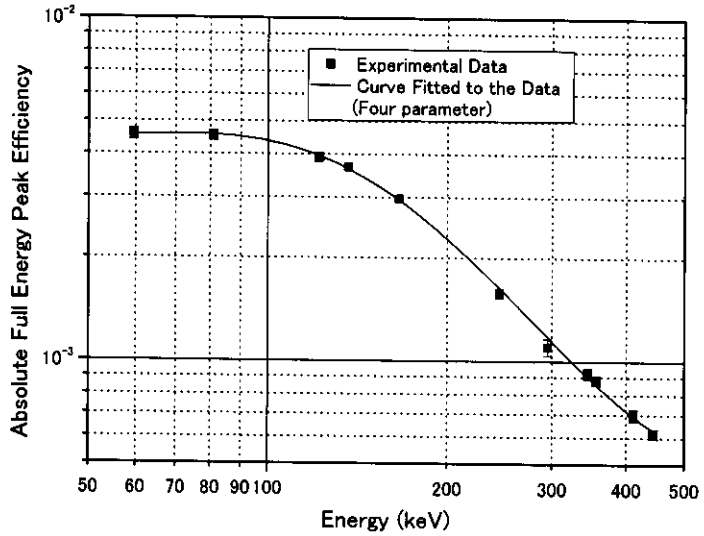


Fig. 7 線源距離 99.8 mm における Planar Type HPGe 検出器の
エネルギー依存絶対検出効率曲線

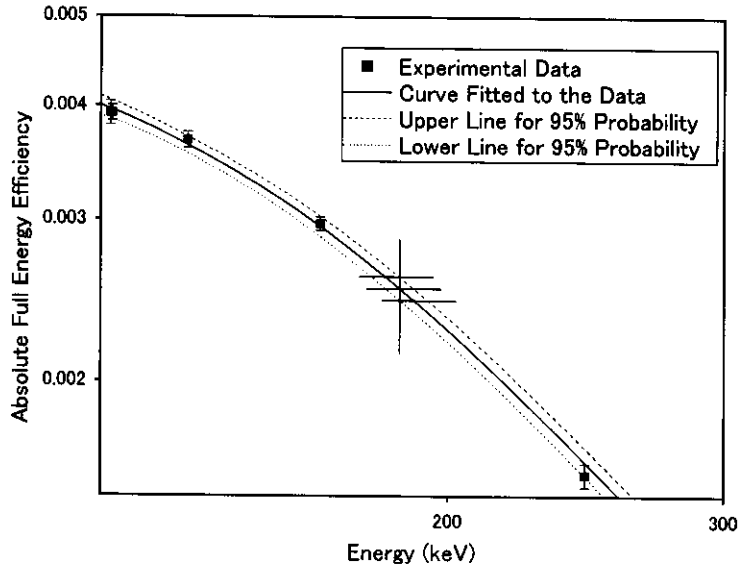


Fig. 8 Planar Type HPGe 検出器の絶対検出効率曲線(該当部分の拡大図)

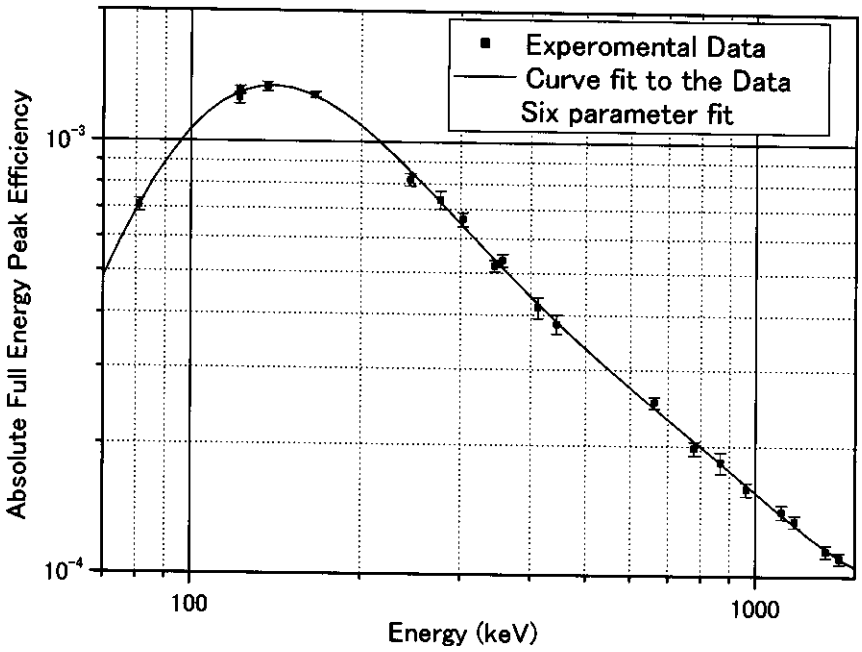


Fig. 9 線源距離 170 mm における Coaxial Type HPGe 検出器のエネルギー依存絶対検出効率曲線

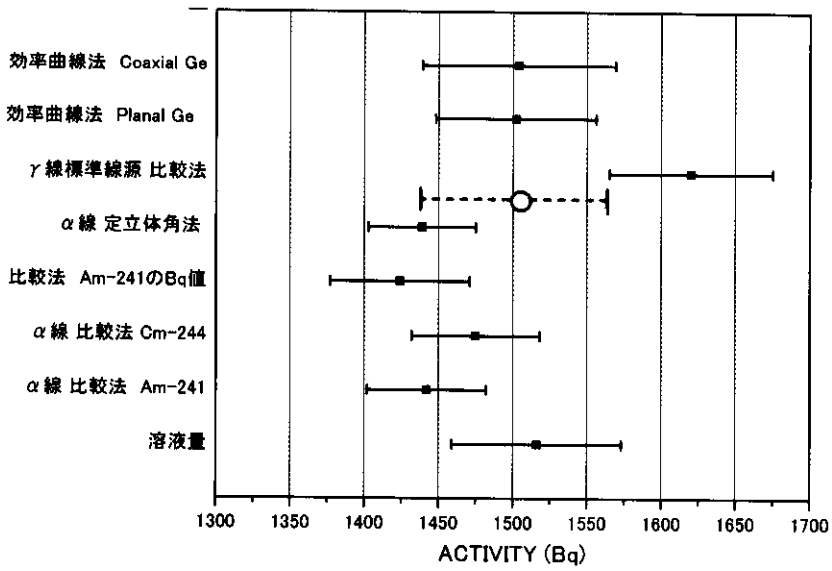


Fig. 10 各種測定法により得られた Ra 線源の放射能

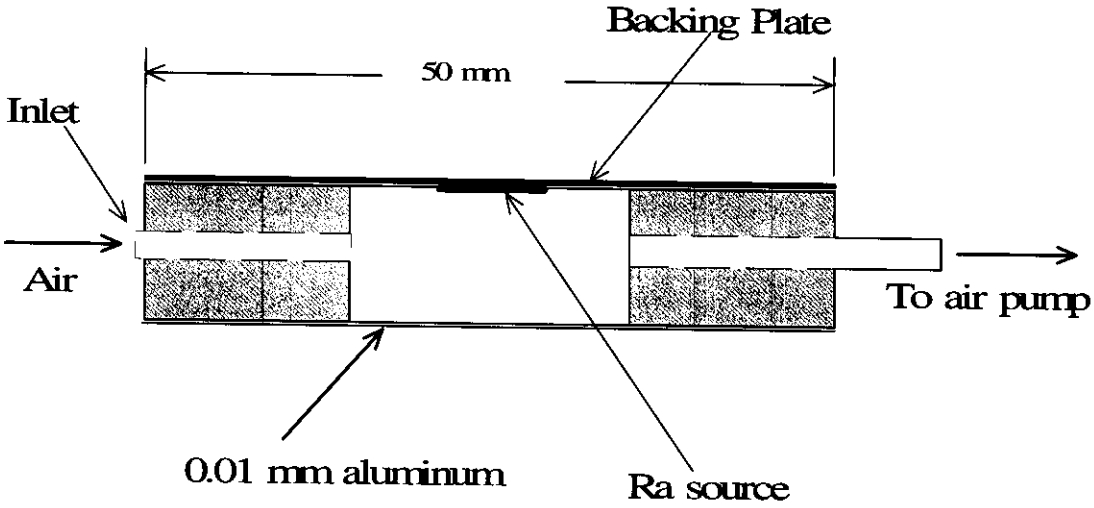


Fig. 11. Ra 線源に残存する Rn 崩壊生成核測定法

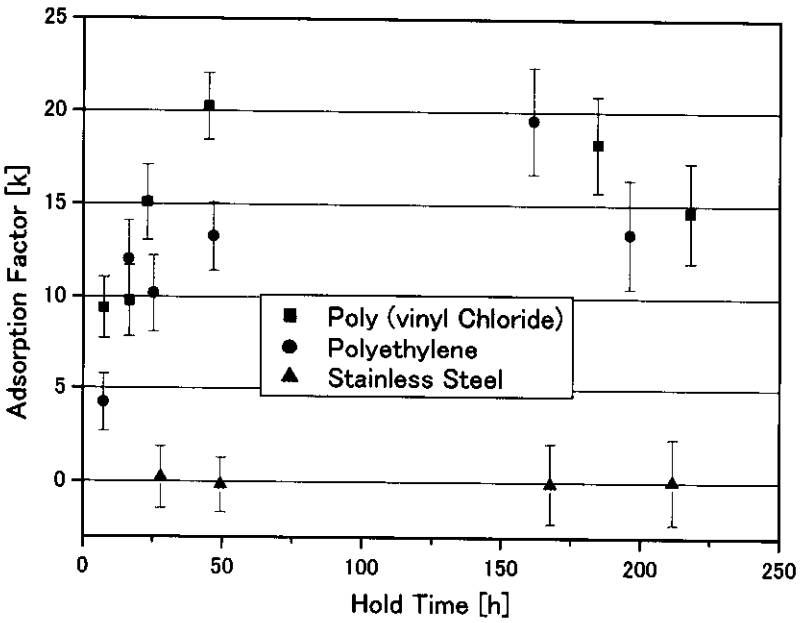


Fig. 12 ラドンガスの材料表面への吸着（その1）

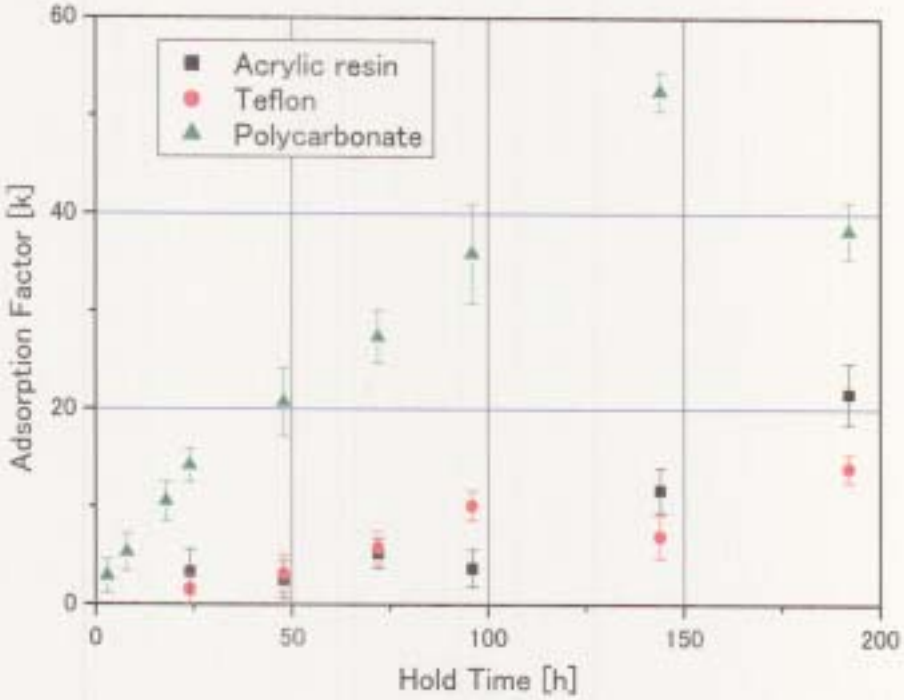


Fig. 13　ラドンガスの材料表面への吸着（その 2）

Fig. 14 線源容器(右)と分注容器(中央と左)の写真

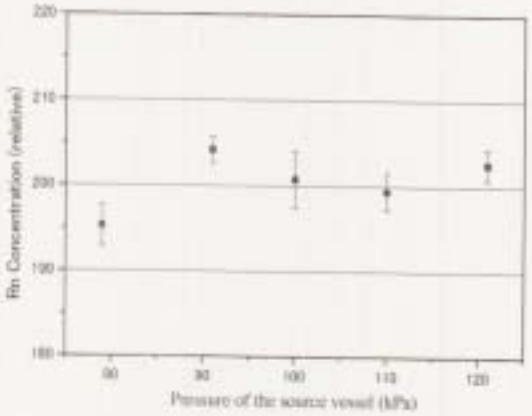


Fig. 15 ラドン標準線源内の絶対圧力とラドン濃度の関係

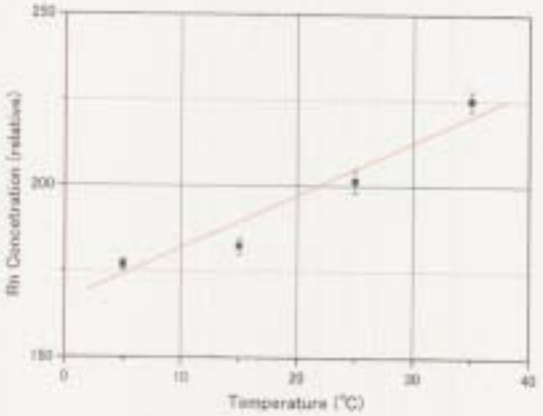


Fig. 16 ラドン標準線源の温度とラドン濃度の関係

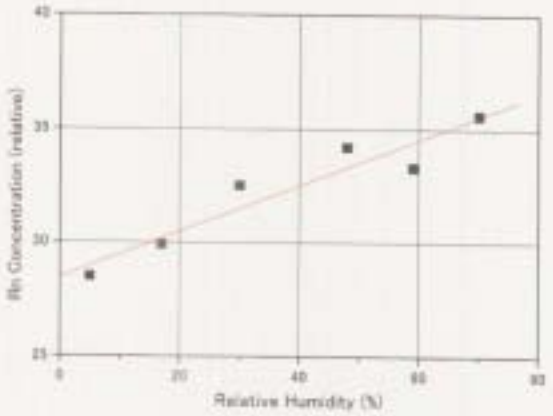


Fig. 17 ラドン標準線源容器内の相対湿度とラドン濃度の関係

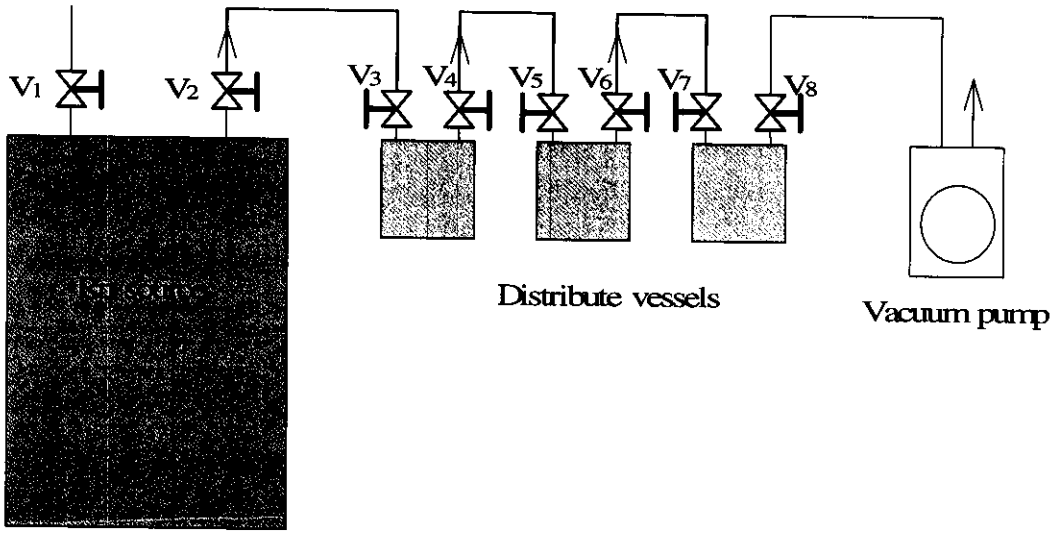


Fig. 18 真空にした複数の容器にラドンガスを分け取る方法

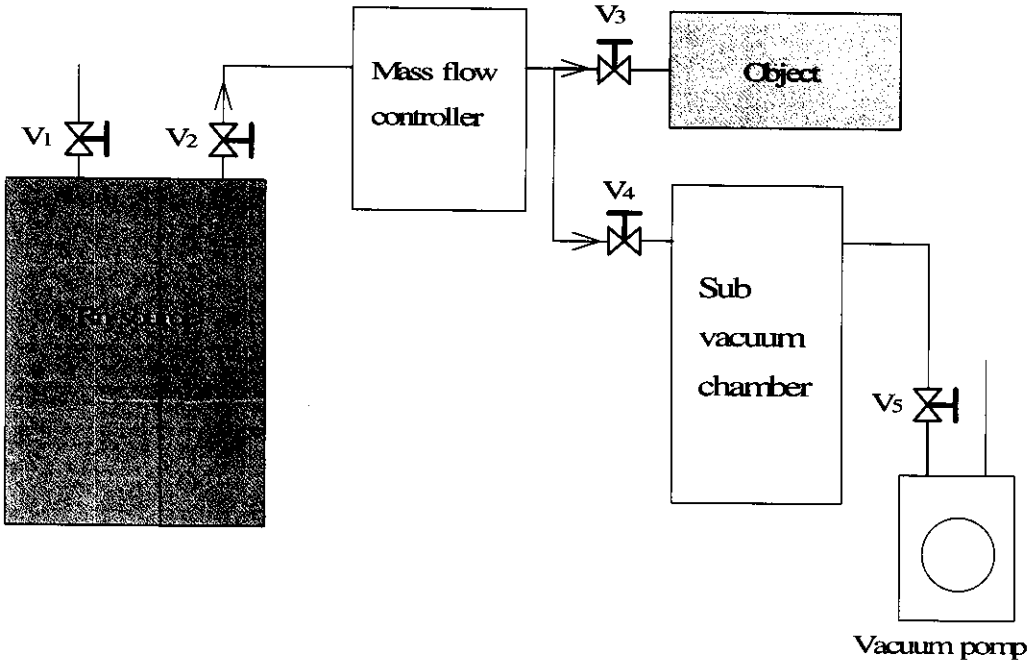


Fig. 19 マスフロー・コントローラを使用して任意量の
ラドンガスを検出器あるいは容器に取り出す方法

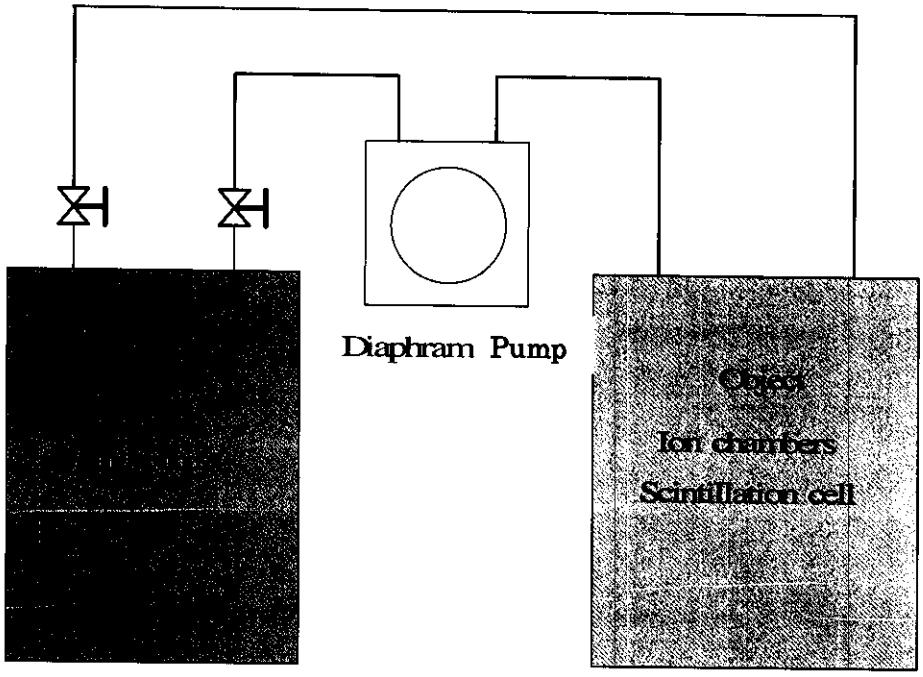


Fig. 20 減圧することが困難な検出器、容器などにラドンガスを移送したり高濃度のラドンガスを必要とする場合の移送方法

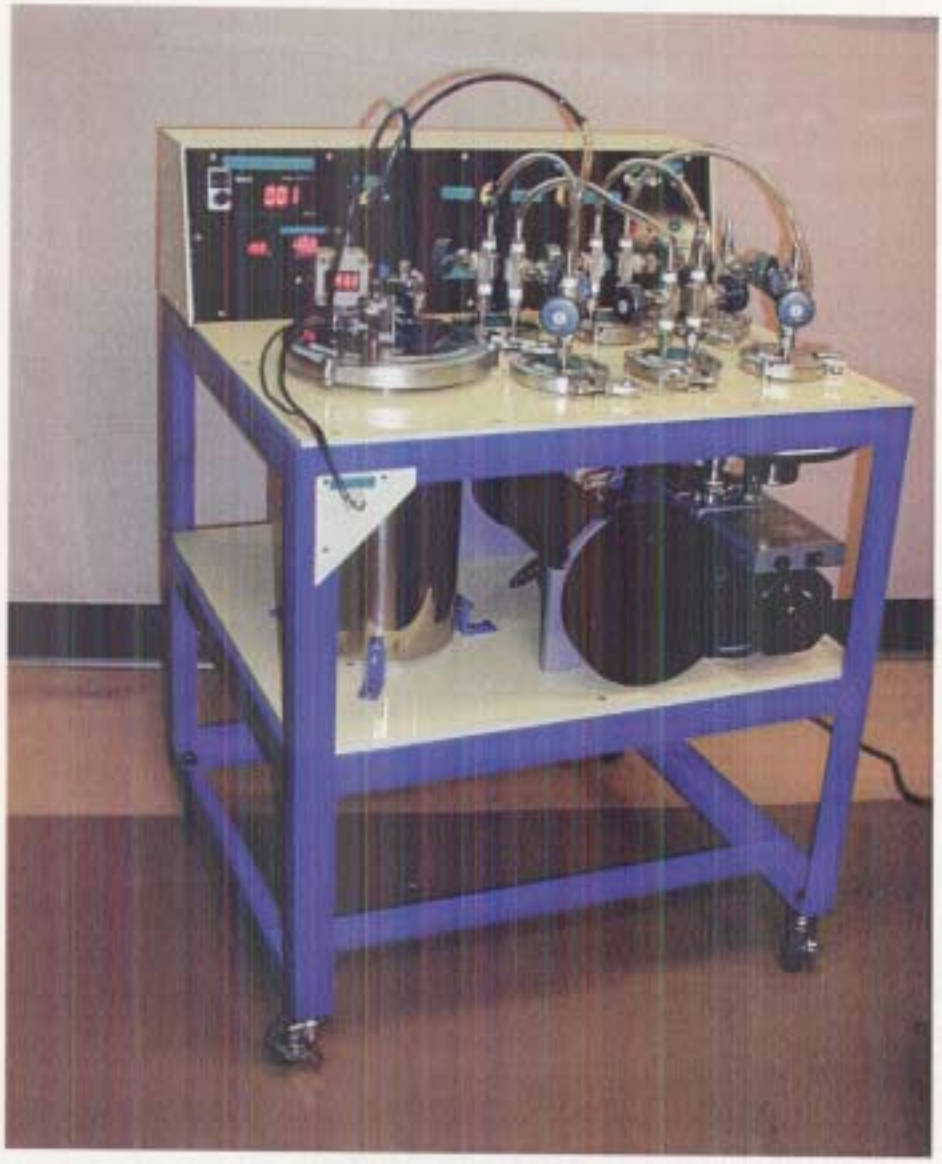


Fig. 21 製作した校正用作業ベンチ

付録 1. 各種材料に対するラドンガスの吸着

ラドンが不活性気体であることから、ラドンの測定においては、ラドンと測定に使用する機器・器材との間の相互作用について、ほとんどの場合特別な配慮はされていない。

しかし、ラドン標準線源の開発においては、容器など長期間ラドンガスと接する部分については、吸着などの現象が好ましくない影響をもたらす可能性がある。そのため、線源容器を初めとする主要器材に使用する可能性のある材料について、ラドンの吸着の有無を確認するため実験を行った。

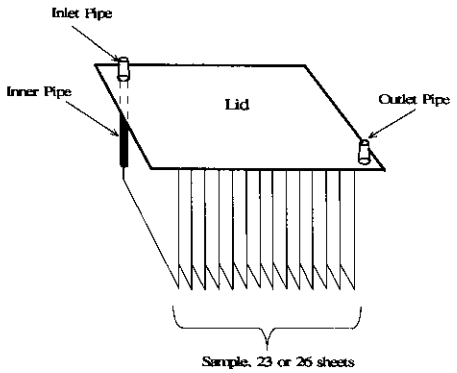


Fig. 1 Illustration of the sample mounting

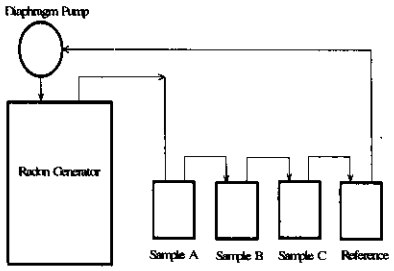


Fig. 2 Filling method of radon gas.

測定対象となる物質の薄板を、Fig. 1 に示すように密封容器の蓋から吊り下げて容器内に入れる。3 種類の試料を入れた3つの容器と基準とする空容器、循環ポンプ、ラドン線源を Fig. 2 のように直列接続する。

ラドンガスを循環させて、各容器内のラドン濃度を均一にしてから所定の時間放置し、各容器内のラドンガスを電流電離箱に移送し(Fig.3)、Rn 濃度を測定し(測定時刻、実効体積の差などの補正を行い)基準容器内のラドンガス濃度と比較することにより、吸着率を求めた。

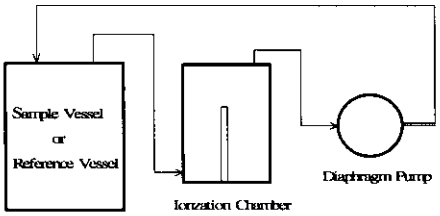


Fig. 3 Transfer method of radon gas to the ionization chamber.

その結果、材料によっては吸着が無視出来ないことが明らかとなった。

第一報として、塩化ビニル、ポリエチレン、ステンレスの3種類の材料に対する実験結果については既に学会誌で報告を行った。

その後、さらにポリカーボネート、アクリル樹脂、テフロンについて実験を行った結果、塩化ビニル、ポリエチレン、ポリカーボネートの3種類のプラスチックスについては、強い吸着が確認され、アクリル樹脂とテフロンについても吸着が確認されたが、特にテフロンに付いては、吸着量が少ないことがわかった。また、ステンレスについては、有意な吸着は観測されなかった。

なお、実験から得られた放置時間と吸着量の関係は、本論の Fig. 12, 13 に示した。

付録 2. 大型シンチレーションセルの開発

筆者の一人は空気中ラドン濃度を測定する目的で、大容積のシンチレーションセル(略称 LVSC)を開発してきたが、本文で示した線源レベルでの校正を補完する目的と、標準線源の開発過程における様々な状況でラドン濃度を確認必要性から、高感度の大型シンチレーション検出器を製作した。屋外空気中ラドン濃度程度の低レベルラドン濃度測定における電流電離箱に代わる2次標準測定器としての可能性も視野に入れ、これまでのものと比較して検出感度が高く、測定電子装置が簡素な装置とした。

検出感度を向上させるためには、セル容積を大きくすることが考えられるが、セル内径の増加は、α線の飛程が有限であることから限界がある。一方、セルの長さを増加させる場合には、光電子増倍管の光電陰極に到達する光子数の減少による検出限界による制約がある。

本研究では、主としてシンチレーション光の収光効率を改善することによって、セルを長くすることにより検出感度の向上を図ったが、そのための集光効率の改善は、厚肉のアクリルセルの使用、ZnS(Ag)蛍光体の塗布量の最適化、従来より口径の大きい(75 mm φ)光電子増倍管の使用などによって実現した。

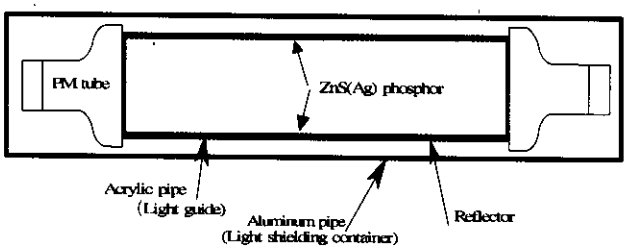
Fig. 4 にこれまでのセルと改良されたセルの断面図を示す。

測定用電子装置の簡素化は、2次標準器としての利便性向上のために重要である。

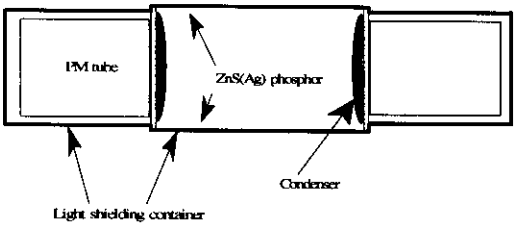
今回の改良では、専用の MCS を製作すると共に全体の構成を簡素化した。その結果、MCS を含む測定装置を NIM モジュール4幅に収め、データ収録・表示には USB 接続した PC を使用した。なお、MCS は内部メモリーを持っており、ラドン濃度測定装置の校正などの場合には、PC を使用しなくとも単独でのデータ収集が可能となっている。

MCS のチャネル幅は、0.1～6500 sec の間で設定が可能であり、PC を接続して使用する場合には、チャネル数は 65 kch までの設定が可能で、測定終了後ファイルを作成し、その後自動的に測定を再開できるので、実用上測定時間の制限はない。

Fig. 5 に電子装置のブロック図を、Fig. 6 に装置の写真を示す。



Cross sectional view of new LVSC
420 mm length and 65 mm inside diameter with 3" photomultiplier tubes



Cross sectional view of our old type LVSC
300 mm length and 75 mm inside diameter with 2" photomultiplier tubes

Fig.4 Cross section view of the new and old scintillation cell.

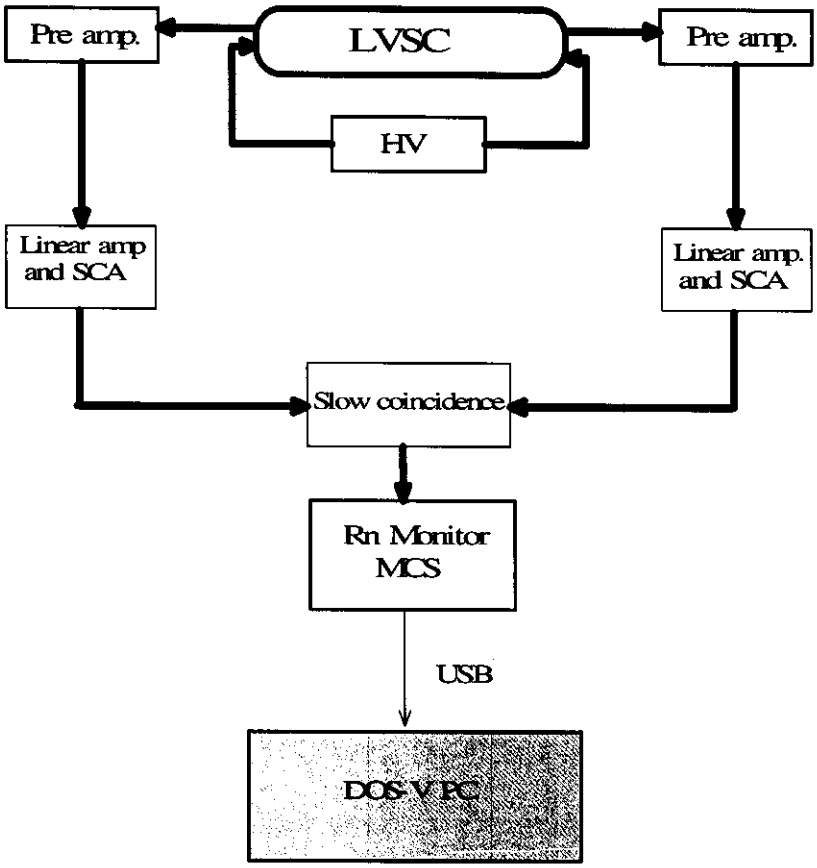


Fig. 5 Block diagram of the electronic for the LVSC

この新しい LVSC の特性測定は現在継続中であるが、これまでに得られている検出感度の暫定値と、他のシンチレーションセルにおける同種の値を Table 1に示す。Rn 及びその子孫核種が放出するα粒子に対する、平均検出効率は Lucas のオリジナルセルに近く、セル容積が大きいために検出感度は 10 倍以上高く、屋外空気など低レベルの濃度測定に使用できることが示された。また、今回改良を行った LVSC のバックグラウンドは、2 × 10^{-3} [sec^{-1}] であり、検出限界を DBG (測定計数率がバックグラウンドの 2 倍の計数率となる放射能)とすると、空気中 Rn 濃度で 0.62 [Bq/m^3] となる。

Table 1 Cell sensitivities and volume of scintillation cells

Nuclide E-α	LUCAS Cell[1]	LUCAS Cell[2]	LVSC Type□[3]	LVSC Type□[4]	Present
^{222}Rn 5.48 [MeV]	−[c/α]	0.76 [c/α]	0.27 [c/α]	0.48 [c/α]	−[c/α]
^{218}Po 6.00	−	0.77	0.36	0 .55	−
^{214}Po 7.68	−	0.91	0.46	0 .61	−
Average efficiency [c/α]	0.86	0.81	0.36	0.55	0.85
Cell volume [cm^3]	96	125	1200	1130	1267
Sensitivity [$c/Bq/m^3$]	2.48×10^{-4}	3.04×10^{-4}	1.30×10^{-3}	1.86×10^{-3}	3.2×10^{-3}

1) H.F. Lucas, Rev. Sci. Instr. 28, 680 (1957).
2) T.M.Semkow et al. Nucl. Inst. Methods, A353, 515 (1994)
3) S.Sakamoto and H.Takakura, J. Radioana. Nucl. Chem. 236, 257 (1998)
4) S.Sakamoto and H.Takakura, J. Radioana. Nucl. Chem. 248, 345 (2001)

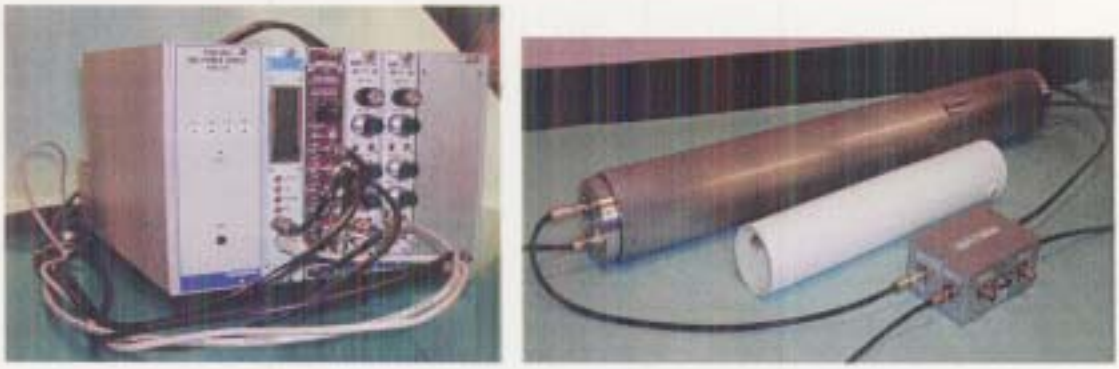


Fig. 6 Electronic equipment and LVCS

以上に示すとおり、これまでの 2 倍近い 3.2×10^{-3}[$c/Bq/m^{-3}$]の高感度が得られ、低レベルの空気中ラドン濃度などの測定において、標準測定器としての可能性を持つことを確かめたが、現在 2 次標準器として広く使用されている電流電離箱との優劣を判断するには至っていない。また、検出器として Rn 濃度を精度良く測定できる封じ切りセルと Rn 濃度の時間変動を測定できる通気セルを製作し、後者について、低レベル空気中ラドン濃度連続測定における実用化試験として、静電捕集方式シンチレーション検出器との間で長期比較測定実験を現在も実施中である。