

分置

社内資料

PNC IJ1615 95-001

本資料は 年 月 日付けで登録区分、

変更する。

01.10.-4

[技術情報室]

堆積場周辺の ラドン濃度に関する研究

(ラドン校正用チェンバーを用いた校正手法の検討Ⅱ)

(動力炉核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1995年2月

早稲田大学
理工学総合研究センター

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ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松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, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

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



堆積場周辺のラドン濃度に関する研究

(ラドン校正チェンバーを用いた校正手法の検討Ⅱ)

黒澤龍平*

要旨

人形事業所に設置した校正用ラドンチェンバーは、本格的なテストチェンバーとして我が国唯一のものである。従ってPassive、Activeのいずれの形式を問わず、ラドンモニターの校正施設として多くの潜在的利用者があるものと考えられる。チェンバーは動力炉核燃料開発事業団のラドンモニターの校正用として設置されたものではあるが、動燃の置かれた現状から、限られた規模ではあるが適切な対象者（機関）に対する開かれたテストチェンバーとして位置づけてもよいのではないかと考えられる。そのため本年度は人形峠事業所が対象としているラドンモニター以外の多くの種類のモニターに対するチェンバーの適応性について、本年求められたデータを基に検討し、測定手法の高度化に対する基本的な対応と将来必要となるであろう設備等について考察した。

本報告書は早稲田大学理工学総合研究センターが動力炉核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：060D0191

事業団担当部課室及び担当者：人形峠事業所 安全管理課 鹿志村 攻

*早稲田大学理工学総合研究センター

堆積場周辺のラドン濃度に関する研究 ラドン校正チェンバーを用いた校正手法の検討（Ⅱ）

1.目的

ラドン濃度測定装置の校正法には、測定器を個別に標準のラジウム溶液などから作った標準となるべきラドン濃度の試料空気を利用して各自で測定器を校正する方法と、あらかじめ準備された既知濃度の校正場、即ちRadon Chamberを利用して供試測定器の校正を行う方法とがある。動燃人形峠事業所には校正用のラドンチェンバーが設置され、校正場として整備されている。しかし使用されるモニターの形式はさまざまであり、また持ち込まれた測定の内容について使用者自身が充分把握していない場合もあって、供試測定器に対する適確な校正法が常にとられているとは限らない。

一般的にラドンチェンバーによる校正は、供試測定器を設置し、一定ラドン濃度の雰囲気中で長時間曝露させるといったような方法で行われ、さらにその雰囲気中の湿度などを適当に選択するなどして外的条件に対する測定器の特性の評価が行われる。しかし供試測定器によってはこのような静的な評価法では不十分で、ラドン濃度を始め温湿度が時間と共に変化するような、いわば動的な状況で評価すべき場合もある。従って実モニターのレベルでのラドンチェンバーによる校正法やチェンバー自身に要求される特性などを十分に検討しなければならない。

昨年（平成5年）度は主としてパッシブ型の積分型のラドンモニターについて検討し、さらに時間的変動をも記録できるモニターの校正法についても実験の結果に基づいて提言を行った。本年度はそれらについて再度検討を加えると共に、他の形式のモニターの校正法やラドンチェンバー自身が具備しなければならぬ要件などについても考察する。

2.ラドンチェンバーを使用する測定器の種類

人形峠事業所のラドンチェンバーのような規模のチェンバーを使用し校正を行うことが適当と考えられるラドン濃度測定器は、長時間の平均値を求めるためのpassive型のラドンモニターである。active型もしくはラドン濃度の時間的変化を求めることを目的としたpassive型のラドンモニターもある程度は校正に使用できるが、現状ではチェンバーの付帯

設備の点から充分であるとは言えない。しかし我が国のこの種の校正施設はこのチェンバーが唯一であり、従って本チェンバーも active型もしくは時間変化対応型のモニターの校正に対しても充分機能する必要があると考えられる。さらに測定器の校正のみならず測定器の特性の解析に対してもある程度適応するような設備を整えることが望ましい。

長時間の平均値を求めるための passive型ラドンモニターのほとんどすべては拡散流入型で、捕集・検出法が拡散捕集や静電捕集型である。これらはラドン濃度の変動に対する応答性は良くないが、構造が簡単のため広く使用されている。このうち静電捕集型はラドンから生成した娘核種の約87%が正の電荷を持っていることを利用し、それを電極に捕集し検出する方式である。そのため測定容器中に負の電荷をもつ水分子があれば中和されるおそれがある。このためモニターの周辺環境中の水蒸気分圧による影響を考えねばならない。またこれらのモニターの検出部はそのエネルギー分布から考えて、ラドン・トロンいずれに対しても感度を有しているため、何らかの方法で両者を弁別する必要がある。弁別のための最も簡単な方法は拡散捕集時の時定数を長くすることである。この結果モニターの時定数、即ち換気率を小さく設計しているため、チェンバー内での曝露時間を長くし、チェンバー内の濃度を一定もしくは自然（物理的）減衰状態に保ち、環境の濃度変動による不測の感度変動を避ける傾向が見られる。一方測定器によっては絶対湿度の影響が大きいため、校正用モニターではモニター内の湿度を大幅に変え、それを持続する必要がある。また1日程度の短時間の曝露で大略のラドン濃度を求める目的で活性炭吸着法を利用したラドンモニターも広範囲で使用されている。このモニターも空気中の湿度が活性炭の吸着能力に影響を与えるため、きわめて重要な因子であるが、それと同時に活性炭のラドン吸着が物理吸着であるため、ラドン濃度の変化も吸着能に影響を与えることが知られている。

環境中のラドン濃度は時間と共に大きく変動していることは良く知られている。従ってチェンバー内濃度を一定に保った校正のみでは不十分ではないかと考えられる。passive型ラドンモニターにはラドン濃度の時間的変化を測定し得るよう製作されている測定器もあり、今後この型式も増加するのではないかと考えられる。このような状況に対処するためチェンバー内のラドン濃度を可変にする必要があるだろう。

現在種々の形式のactive型のラドンモニターが製作されている。active型では当然ラドン濃度の変動や温湿度などの環境条件の変化に対する測定器の対応性が重要であるが、測定系の一部、例えば検出部のみをチェンバー内に入れ、記録・操作部等をチェンバー外に置くこともあり、そのような要求に対しても対応し得る付帯設備も考慮しなければならない。

3.測定系から見たチェンバーの特性

現在、チェンバーを使用した校正のプロセスは次の通りである。

- i) 校正されるべき測定器をチェンバー内に設置し、チェンバーのドアを密封する。
- ii) チェンバー内に、テドラバッグ中に移した高ラドン濃度の空気をポンプにより移送する。
- iii) チェンバー内の大気条件（湿度・気圧など）を所定の値にセットし運転する。要すれば開始時点でのラドン濃度を電離箱法で測定する。
- iv) チェンバー内のラドン濃度は、Pylon社のTELアクティブモニターで監視しながら放置（ラドン濃度はラドンの物理的減衰に従って減少する）する。要すれば、曝露の間時点でチェンバー内のラドン濃度を電離箱法で測定する。
- v) 所定の曝露が終わったときのラドン濃度を測定するため、チェンバー内の空気を電離箱に移した後、ポンプにより外気をチェンバー内に送りながらフィルターを介してチェンバー内空気を排出し、ラドン濃度が充分低下したところで、
- vi) チェンバーのドアを開き、校正されるべき測定器を取り出す。

パッシブ型ラドンモニターの拡散によるラドンの交換時間が2時間程度の場合ならば、モニター容器内のラドン濃度は主としてこの交換時間に支配され、モニターの周辺のラドン濃度の時間変化にあまり依存しないため、ii) の場合でのモニター容器内のラドン濃度の上昇とv) vi) の場合における容器内のラドン濃度の下降とがバランスし、チェンバー内のラドン濃度の時間的積算濃度が供試モニター内のラドン濃度の時間的積算値と一致

すると考えられている。

しかしながらモニターによってはかなり早い交換時間を示すものもあり、チェンバー内のラドン濃度もこれに対応させる必要がある。この場合チェンバー内のラドン濃度のモニタリングが重要になる。しかしながらPylonのラドンモニターはラドン濃度を直接測定せず、内部の静電圧を与えた電極にラドン娘核種を捕集し、それらの放出する α 線をZnSシンチレーション検出器で計数するようになっている。捕集される娘核種は ^{218}Po (RaA)であるが、 α 線を放出する核種にはRaAのみならず ^{214}Po (RaC')もあるためRaC'が生成するまでの時間の影響が重なるため時間おくれを生ずる。その上捕集時の静電圧が比較的低いのでRaAイオン（正に帯電している）の加速速度が不充分のため、容器内の負に帯電した水分子と再結合し電荷が失われ、その結果捕集効率が低下し感度が下がることも知られている。測定環境のラドン濃度のおよその傾向を把握するためには多少の時間のずれや感度変化を不問にしても良いかも知れぬが校正用チェンバーのラドン濃度モニターとしては不充分だと考えられる。このため以下のようなアクティブ型のラドン・モニターを試作し、チェンバーを使って性能の試験をすると共にチェンバー自身の特性も測定した。このモニターは厚さ0.5mmのステンレスの容器（内径136mm、高さ155mm）の内部にシリコン・フォト・ダイオード（以下SPD S-3204-4）を設置してある。このSPDの受光面は18×18mmで25.5×25.5mmのエポキシ基板の上にマウントされている。SPDはもともとPN接合の半導体検出器と同一の構造であり通常受光面は透明なセラミック板で保護されているが、それを取り外すと光のみならず α 粒子までも検出することが可能となる。しかしながらPN接合であるため、受光面に薄いP層がありこれによるエネルギー損失が考えられ、 α 粒子が斜め方向から入射した場合などではエネルギー分解能を悪化させる原因となる。SPDはステンレス容器の内部に設置され、容器外壁に正の5KV、SPDに0Vの電位が与えられている。容器の底に拡散板があり、SPDは約1.35ℓの容積内の正の電荷を有するRaAが捕集されるようになっている。SPDの出力はアクリル管内に通した同軸ケーブルによって容器外に取り出し、この部分を接着剤でシールしたがケーブル自身はシールできないのでこの部分から空気のリークが起きる可能性がある。この部分を真空用のハーメチックシール・BNC・コネクタ（レセプタクル）に変更すればリークは起きないが絶縁板を入れる

など構造は複雑となる。SPD出力はcharge sensitive pre-amp.で処理した後MCAでエネルギー弁別を行った。charge sensitive pre-amp.によっては出力ケーブルを利用して電源を供給できるものもあり、チェンバーのような密閉系の外に信号を簡単に伝送できるが、ほとんどのpre-amp.に供給される電源は2種類以上のため、チェンバー内に電源供給装置を設置しない限り出力信号をチェンバー外に伝送できない。そのためチェンバー内の空気をステンレス容器内に送り、それを再びチェンバーに戻すことにした。チェンバー内外の気圧差がない場合はそのようなループも問題とはならないが、内外に圧力差がある場合は上記の同軸ケーブルの取り出し部分でリークが発生する。しかし試料空気は測定容器に入った後リークし、容器内ラドン濃度は常時チェンバー内のラドン濃度と大略同じであるため濃度評価上はそれ程問題にはならないが、正確な流量を求めることができず現在改装されている。このラドンモニターで測定したチェンバー内ラドン濃度の時間的変化をFig.1に示す。モニターの特性については後項に述べるがFig.1はRaAの計数率から評価したラドン濃度であるため遅れ時間は400秒程度である。ラドン濃度は時間と共に減少するがその傾斜はラドンの物理的な減衰曲線と一致する。もともとこのチェンバー自身のリークはほとんどないためチェンバーの特性というよりは試作したラドンモニターの追従性が良いことを示している。チェンバーのラドン濃度の上昇部と下降部の拡大図をそれぞれFig.2、Fig.3に示す。いずれの場合もFig.1とは異なりチェンバー外のラドン濃度を 0 Bqm^{-3} としてその分を差し引いて上昇もしくは下降の正味の形状を表現するようにしている。ラドン濃度はFig.1で見ると約 2×10^4 秒の周期で僅かながら振動しているようではあるがこの詳細は今のところ不明である。立上り時の形状はラドン試料の送入方法で異なるがFig.2では飽和値の約63%に達するのに約1450秒を要している（50%まで1250秒）。一方チェンバーより急速にラドンを排出するため、チェンバーの扉を開いた場合のラドン濃度の減少はFig.3で示すように飽和値の36.7%まで下降するのに上昇時と同様1450秒を要している。両者の時間的一致は恐らく偶然のこととしか思えないが一応理想的状態と考えることができよう。ただこの場合はラドン濃度を急速に下げるためチェンバーの扉を開放しているので必ずしもnormalな運転とはいえず、もしポンプなどによりゆっくりラドンを排出したとすると下降曲線はFig.3よりはるかに長くなるものと思われる。早大のラドンモニターのこ

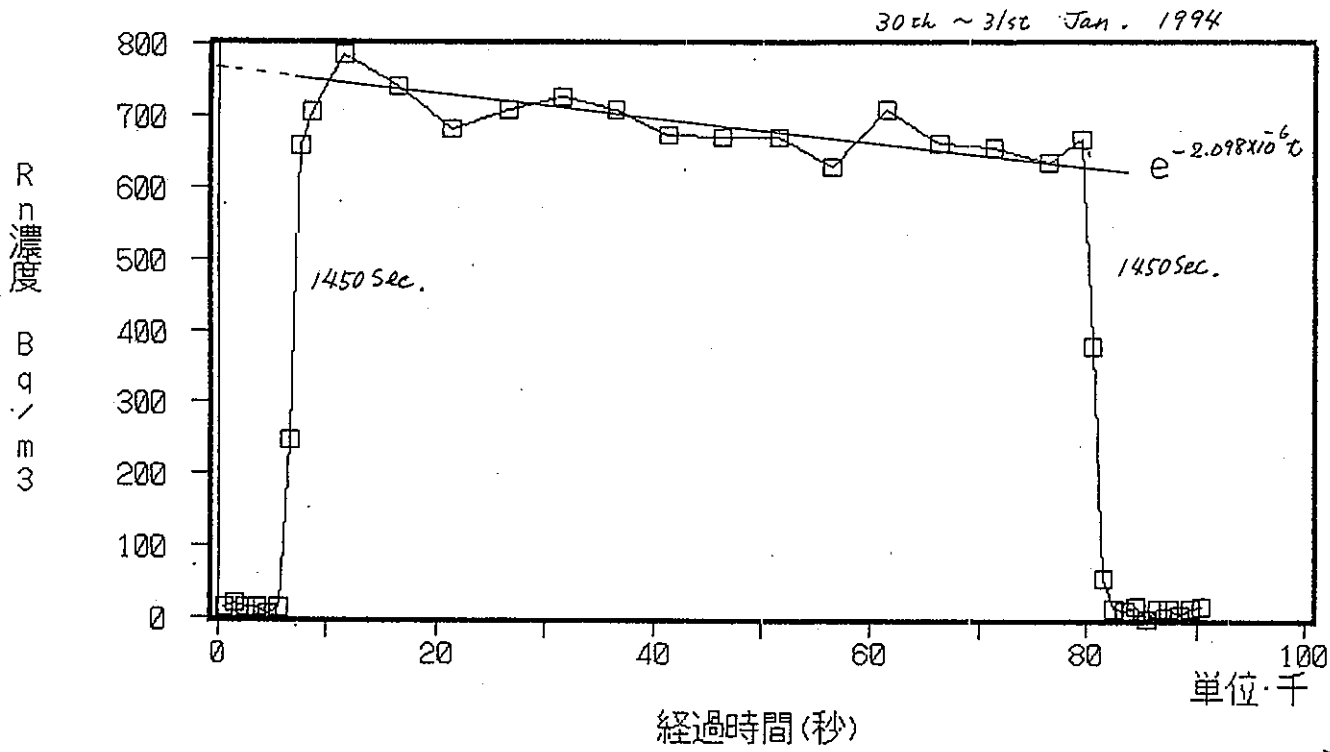


Fig. 1 校正用チェンバー内のラドン濃度の変化. (^{222}Rn の壊変定数: $2.098 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$)

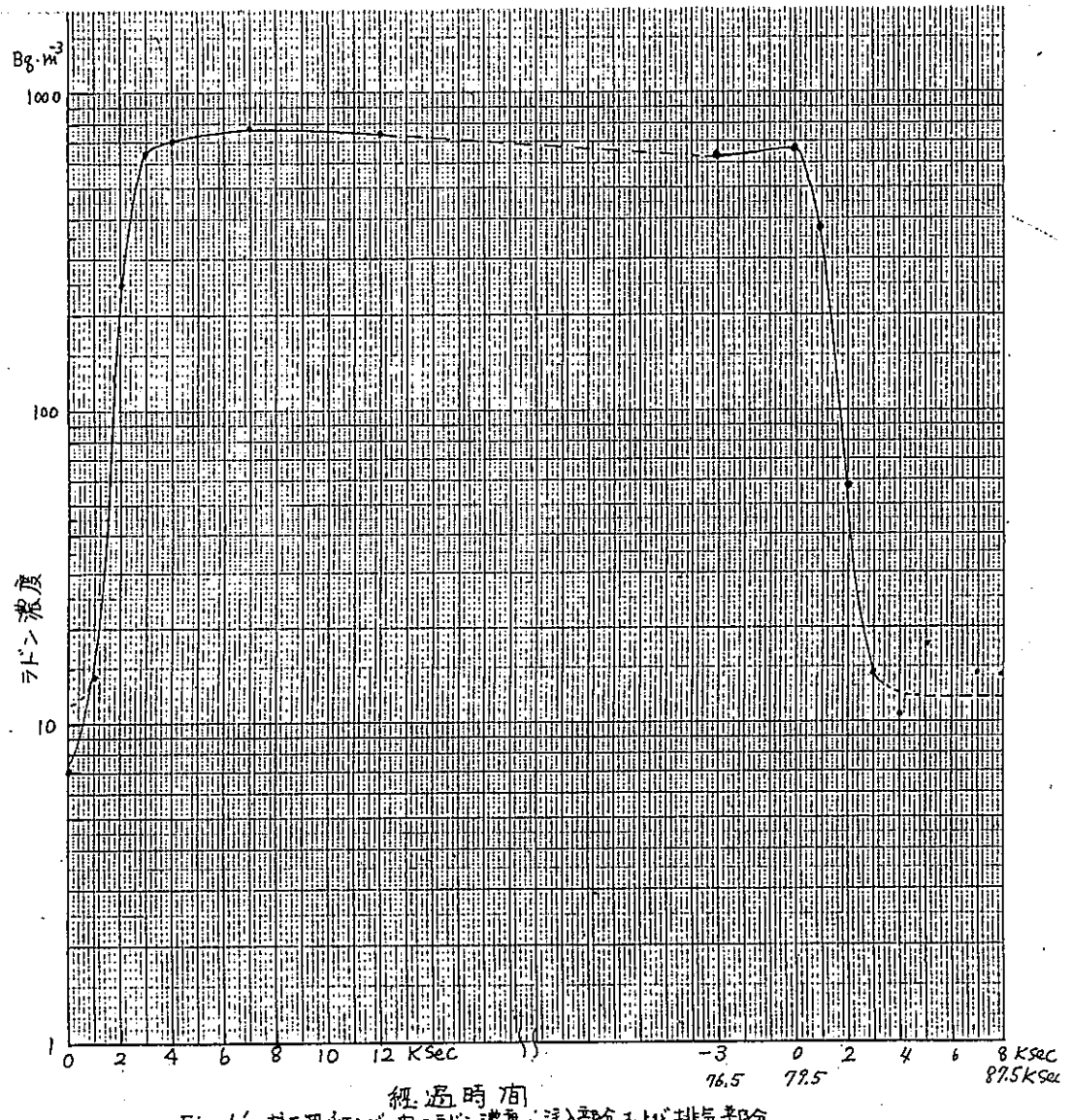


Fig. 1' 校正用チェンバー内のラドン濃度: 注入部分および排気部分

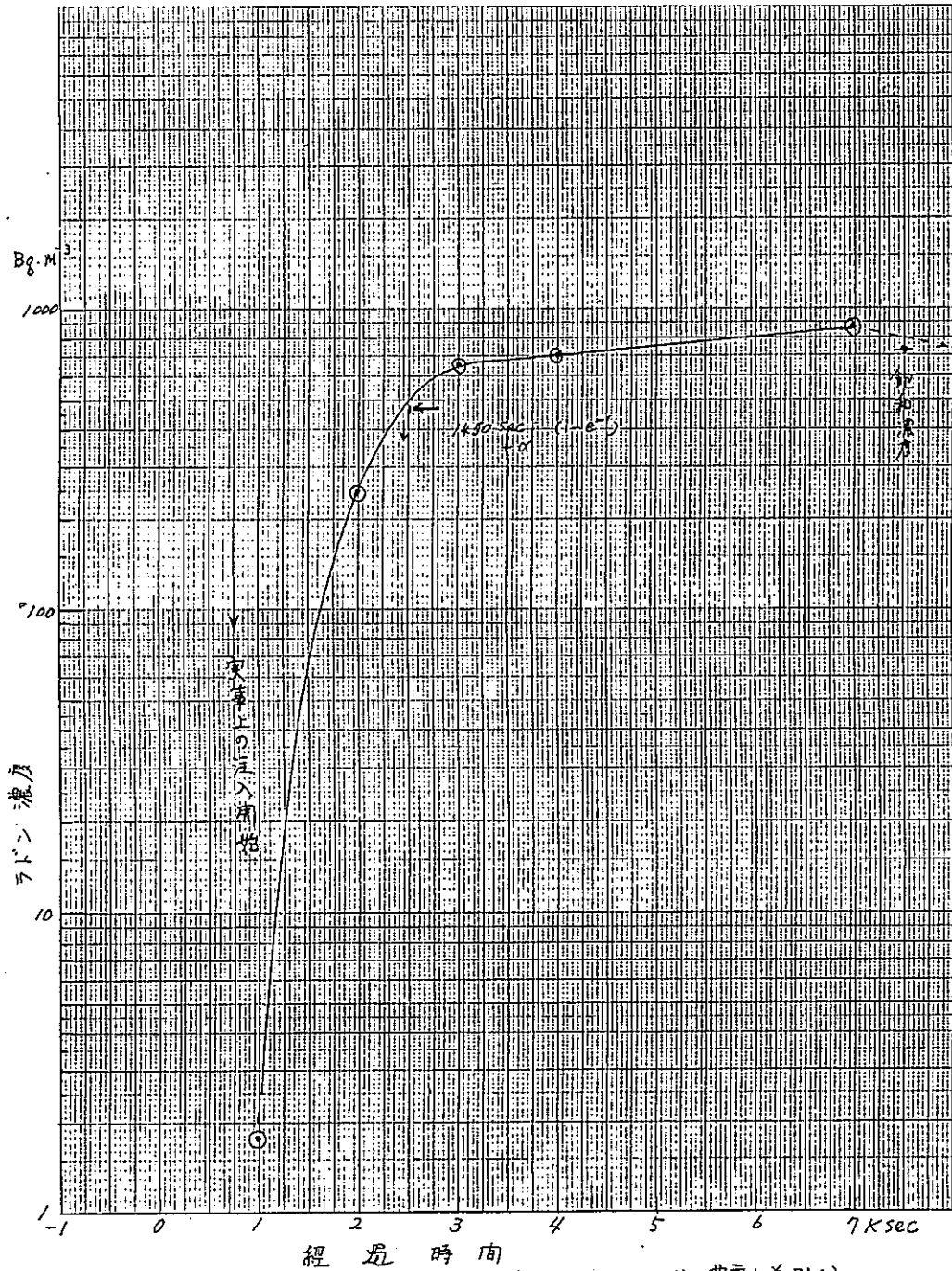
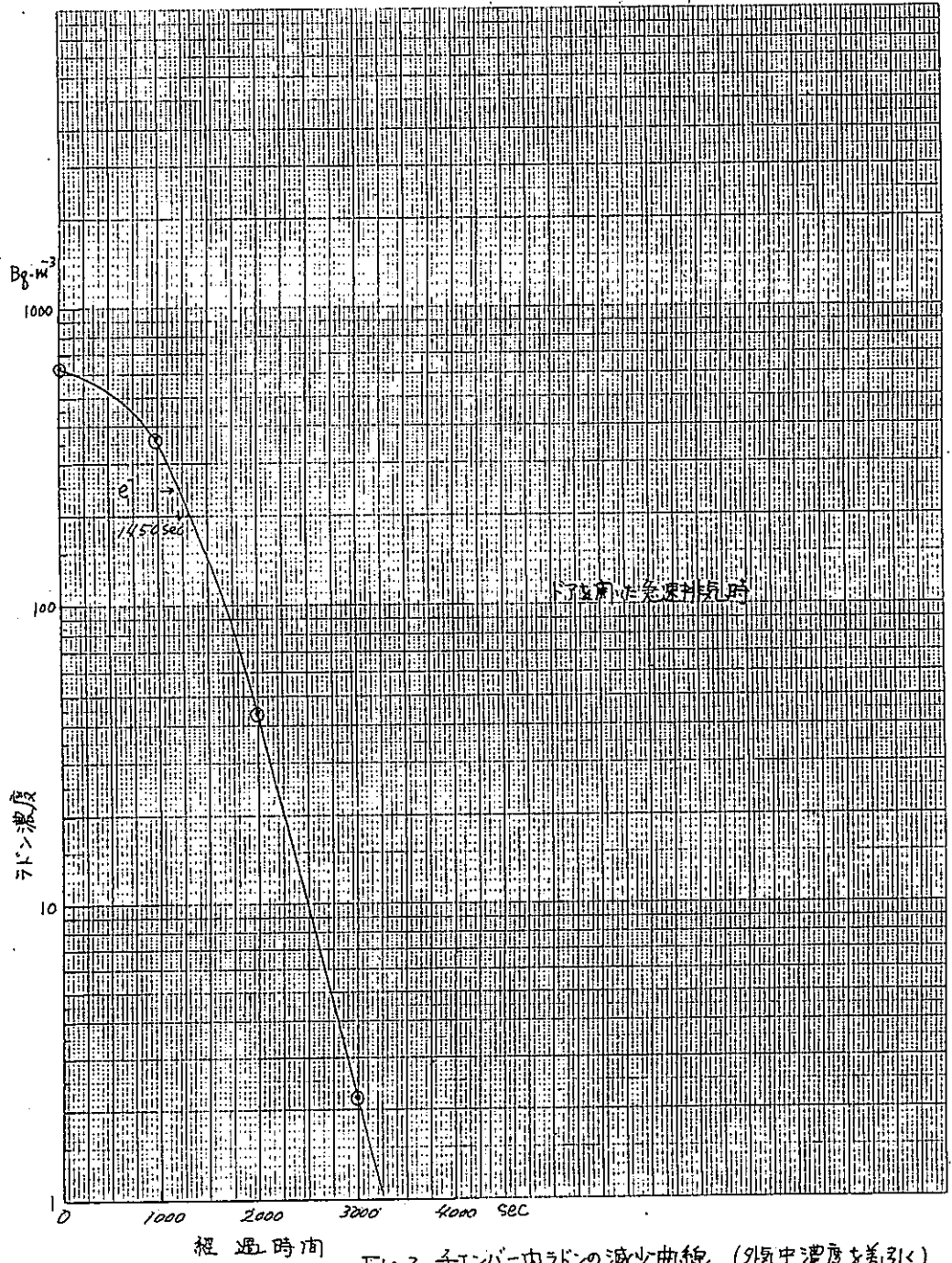
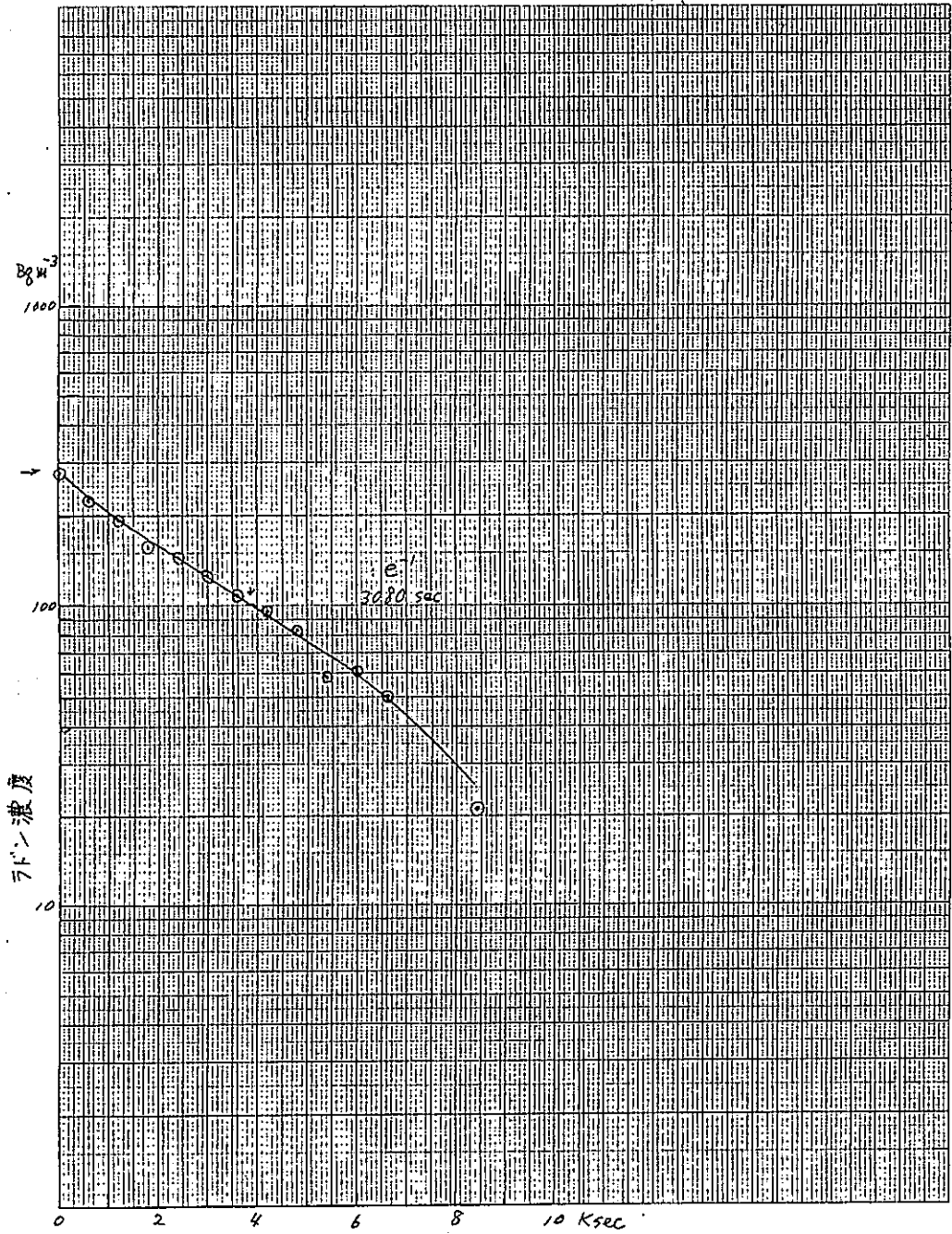


Fig. 2 チンバー内ラドン濃度の上昇曲線. 上昇のみ(外気濃度を差引く)





経過時間
Fig. 3' 通差の排出時の4エンパ-内ラドンの減少曲線

の部分欠落しているためTELで測定した濃度の変化をFig.3'に示す。この場合は36.7%まで下降するのに3080秒を要している。passiveモニターではその指示値はモニター周辺の濃度変化ではなく濃度の積算値にのみ依存するが、チェンバー内ラドン濃度の積算値を求めるにはこのFig.1,2,3程度の実測データが必要ではないかと考えられる。また上昇、下降の速度も短時間（1日）の曝露試験の時はもう少し早い方が好ましく、できれば900秒（15分、0.01日）以内になるよう取扱法を改善すべきであろう。

このチェンバーは運転中の加湿が可能である。静電捕集型のラドンモニターでは容器内の水蒸気分圧は感度に与える影響が大きいことは良く知られている。加湿時のモニターの感度変化をFig.4、Fig.5に示す。またこの拡大図をFig.6に示す。これより分かるごとく加湿直後感度は24%程度減少し時間と共に回復する。回復する時間は約8000秒である。これはモニターの内部における除湿特性Fig.7 (P₂O₅) に示すように電極付近の湿度が36.7%まで下がるのに約130分（7800秒）を要していることと一致する。一方このチェンバーでは湿度を下げることは困難のようで、また例えば湿度を下げたとしてもモニターの感度が上がることはない。しかしながら例えば加湿、除湿を繰り返した場合はその回数に応じてモニターの感度は変化するので校正法というよりもそれに付随した試験法の一つとして行われるべきものと考えられる。そのためチェンバーは運転中の加湿のみならず除湿も可能なように除加湿の系統を改善すべきではないかと思われる。除加湿のサイクルは3～4時間程度で良く、2～3回程繰り返すことができれば充分であろう。モニターの特性上加湿は急速の方が良く除湿はどのような速さでも影響は少ない。

チェンバーにはエアコンが取り付けられている。これを動作させるとチェンバー内は通気状態に、また停止させると静止空気状態になる。いずれの状態でも校正すべきかを検討した。もしこの通気によってチェンバー内のラドン濃度が一様になると言うのであれば曝露期間中、エアコンでなくとも良いが、何らかの方法で空気を攪拌する必要がある。一方、passive型モニターにこの影響があるというのであればやはり試験項目に組み入れる必要もあるのではないかと考えられる。その結果をFig.8およびFig.9に示す。いずれも低湿状態で実験し、Fig.8はエアコンを入れFig.9は使用していない。ラドン濃度の変動はFig.9の方が烈しいがその理由は不明である。ただこれが校正に直接影響を与えるか否かは校正して

途中から湿度をあげる実験
11/10-11

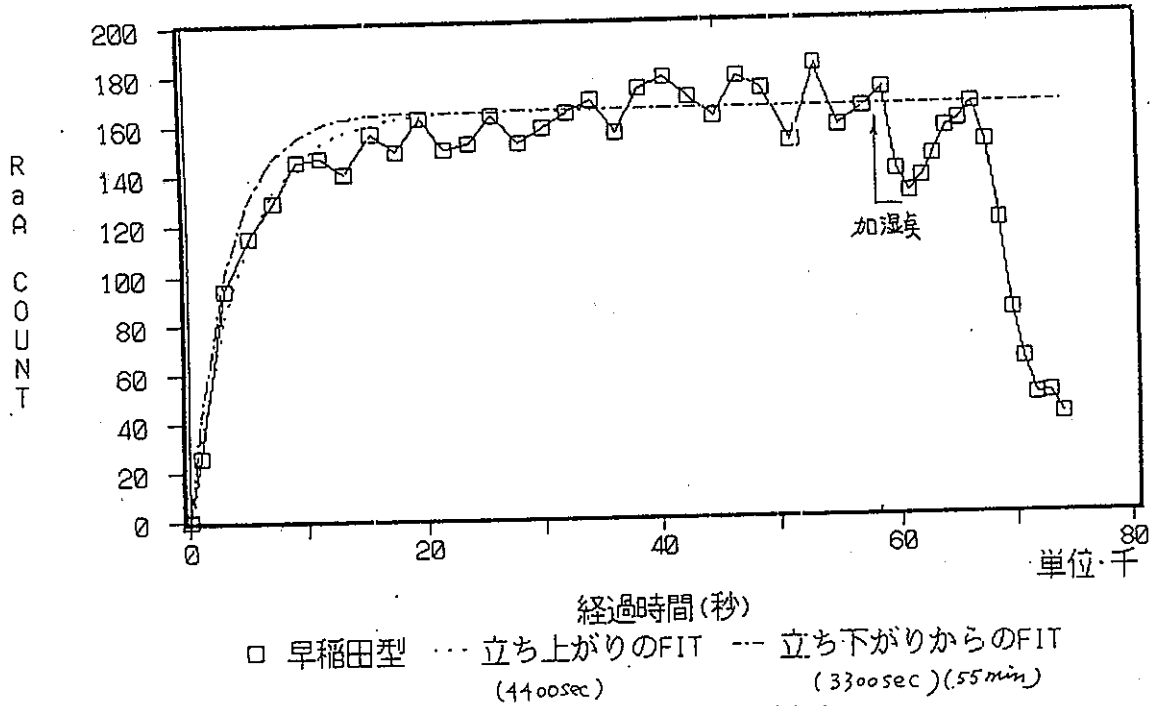


Fig.4 早稲田型静電モーターの立ち上り、立ち下り曲線と加湿時における感度変化

途中から湿度をあげる実験
11/10-11

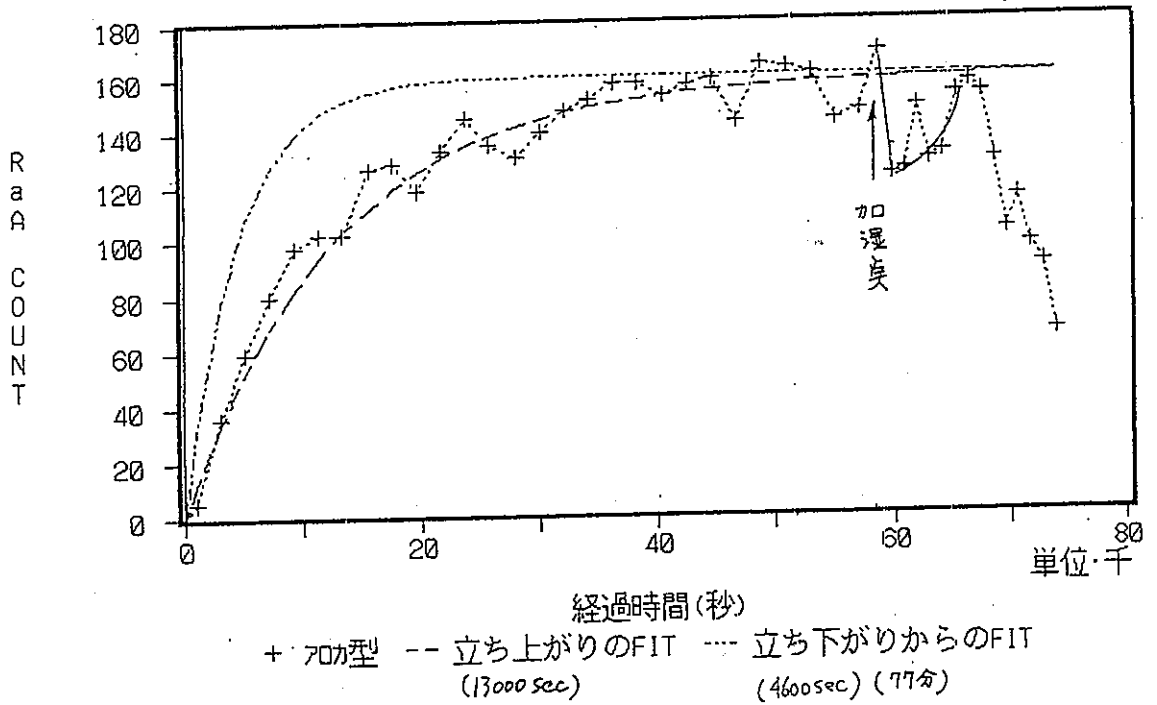


Fig.5 70k型静電モーターの立ち上り、立ち下り曲線と加湿時における感度変化

途中からチャンバー湿度をあげる実験

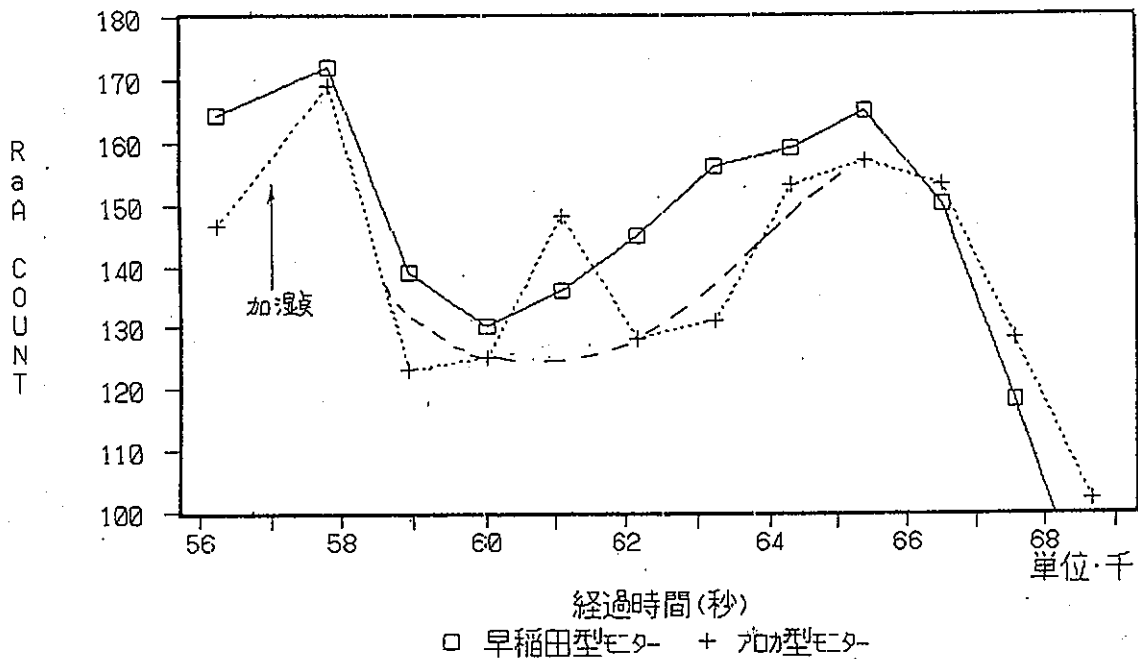


Fig. 6 早稲田型、ラジオ型両静電モーターの加湿時の感度の低下と回復曲線

計算除湿速度曲線
生データからfitさせたもの

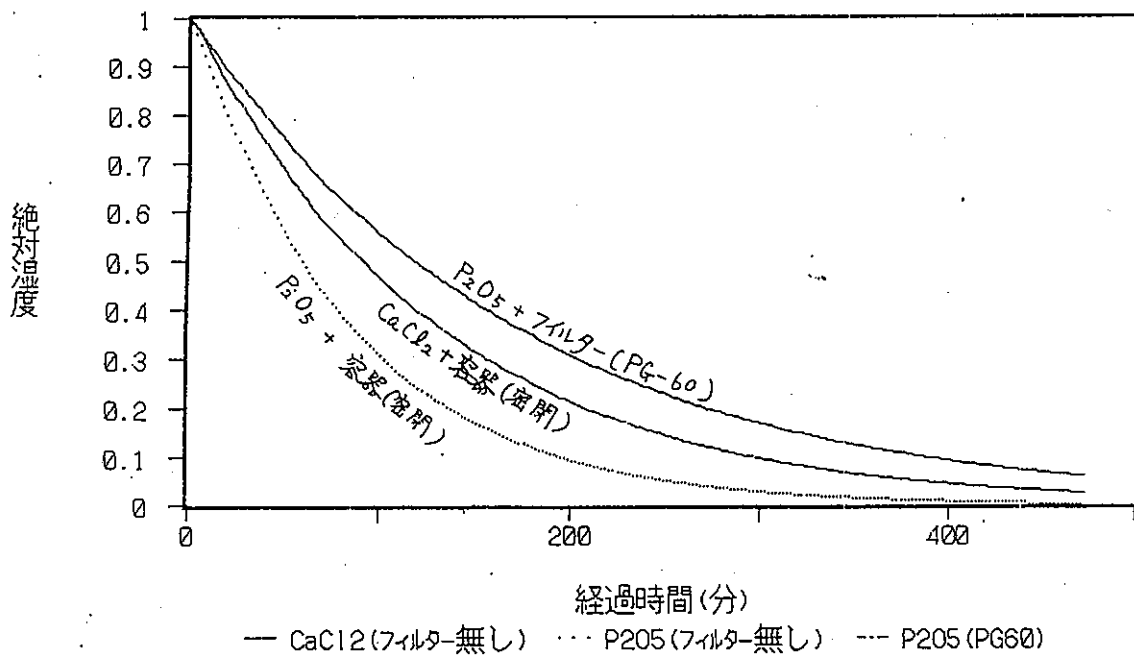


Fig. 7 ラドンモーター容器内の除湿剤による除湿効果
除湿剤: CaCl₂, P₂O₅

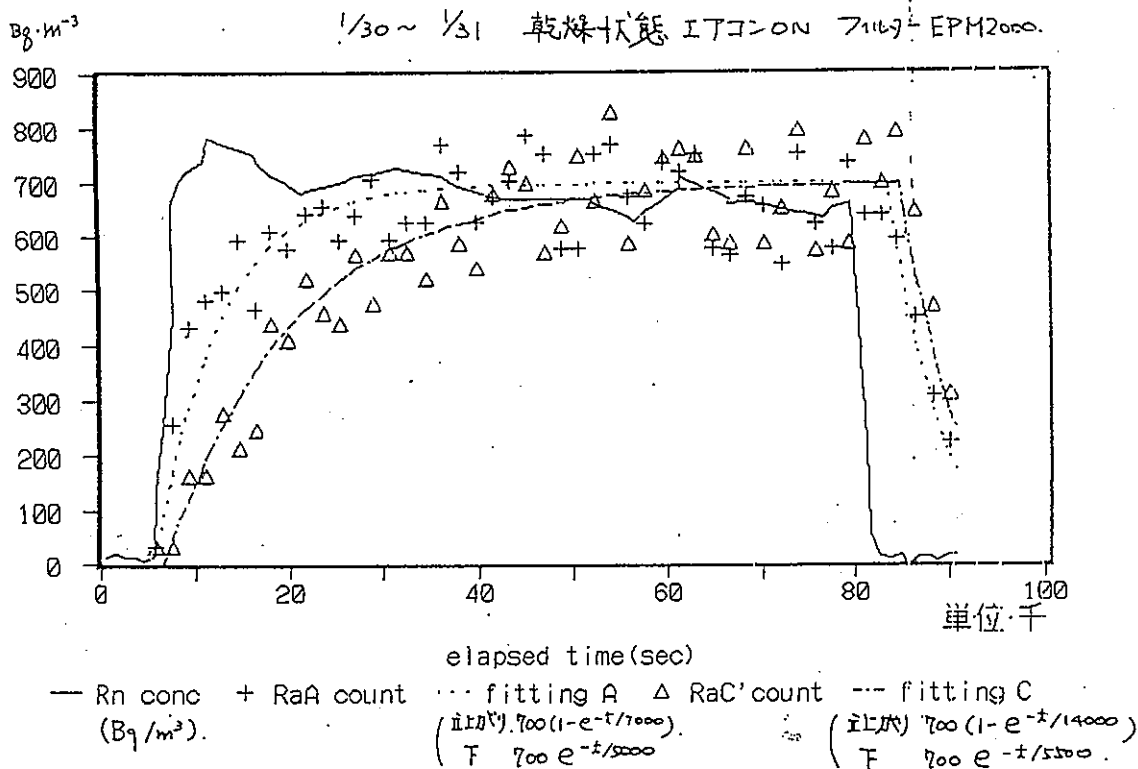


Fig. 8 校正用チェンバー内の空気流の影響 (空気流がある場合)

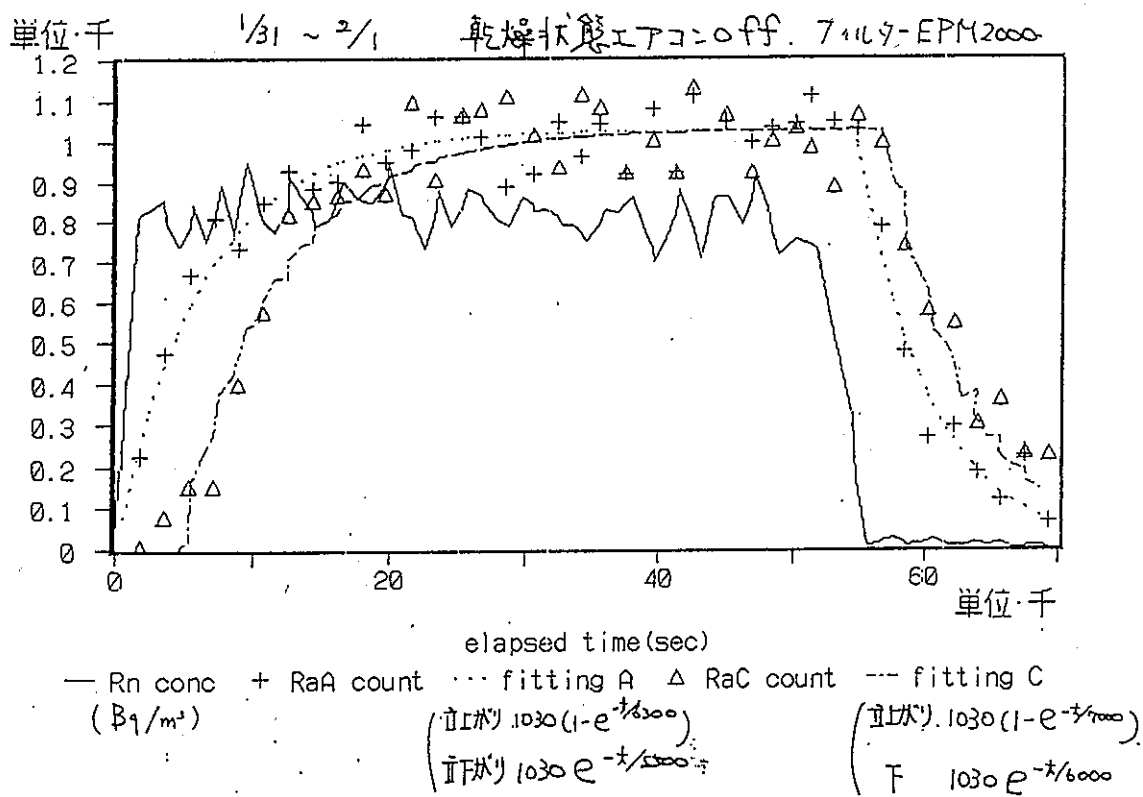


Fig. 9 校正用チェンバー内の空気流の影響 (空気流なし)

いるモニターの特性によって異なるものの、現在多く使用されているpassiveモニターの場合は、チェンバー内のラドン濃度のモニタリングの信頼性が高ければそれ程問題はないのではないかとと思われるが、将来検討する必要があるであろう。一方モニターの立上り時間についてはFig.8、Fig.9に示した通りRaAについて7000~6300秒程度で大差なく特に特性に大きく影響を与えているようにも思えない。Fig.9の立上り曲線が遅れているのは実験を中断したときの処理が悪かったためと思われる。

チェンバー内の湿度については測定中加湿した場合以外モニターの動特性に影響は現われていない。それはモニター内で除湿が行われているためである。湿度のコントロールは必要であるがpassive型モニターの方で何らかの措置、例えば除湿剤の量を曝露期間に見合う程度に減少させなければ異なった湿度を設定しても意味がない。しかしながらactive型モニターの場合は湿度の程度によっては大きく影響を受けるがこれとても除湿剤の量を減少させておく必要がある。

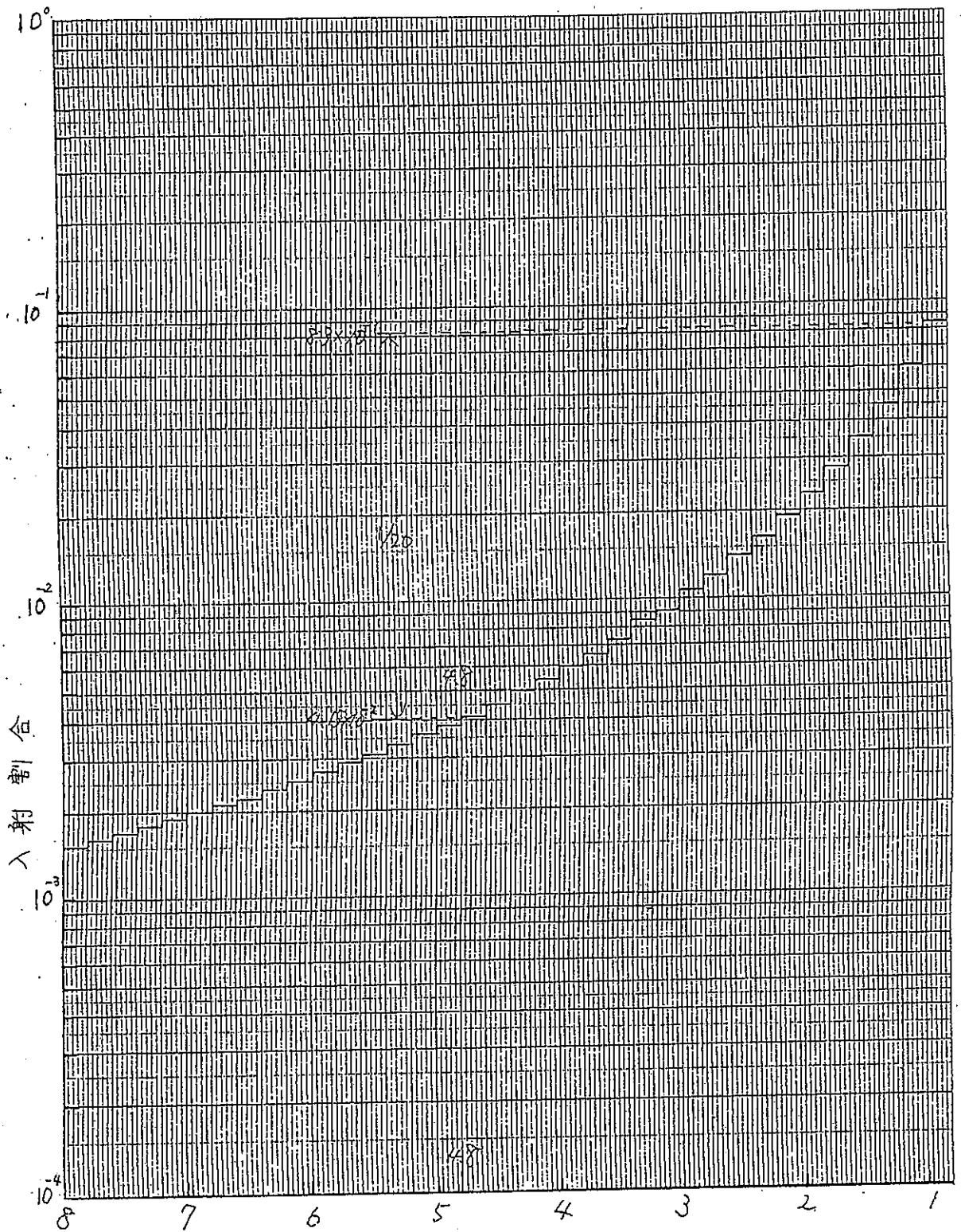
4.チェンバーの付帯設備について

ラドンチェンバーはその大きさによって用途は限定される。人形峠のチェンバーでは低レベルのラドン娘核種濃度の測定器の試験のような多量の試料空気を必要とする試験はできないが、ラドン濃度の測定器の校正ならばほとんど問題なく適用できる。しかし種々の測定器の校正を効果的に実施するためにはチェンバー側である程度の設備を保有する必要がある。

最も重要な設備はチェンバー内のラドン濃度を表示するモニターである。このモニターには2種類あり、一つはgrab samplingで測定結果が求まるまでに時間はかかるが正確な濃度が求められると考えられている電離箱型の濃度計である。この濃度計は電位計と電離箱で構成されているが必要なことは適切な機関の標準とトレーサビリティを保つことである。従来電位計についてはないがしるにされてきたが、電位計を充電法で使用する場合はコンデンサーの容量の経年変化が、電圧降下法で使用する場合は負荷となる抵抗の経年変化や補正用抵抗の変動があり、これらを年1回程度は例えばRI型の電流源で校正する必要がある。また電離箱については値付けられたラジウム溶液を使用し適確に行われなければ

ならず、特に溶液や注入回路に標準となるべきラドンが残留しないようにもしくはその適切な補正が可能となるような手法で校正を行わねばならない。これについては電総研所有のラジウム溶液を基準として統一的な校正法を近く考える予定である。

チェンバー内のラドン濃度を時間的に変化させることはactive型ラドンモニター等の校正、また早いレスポンスを有するpassive型ラドンモニターの校正や試験にきわめて有効であることは論を待たない。この場合はそれに匹敵し得る以上の早いレスポンスを有しかつ安定に動作するラドンモニターでチェンバー内のラドン濃度を常時モニタリングしかつ必要に応じて前述の電離箱による濃度測定器で指示値をチェックする必要がある。第2章に述べたモニターはそのような目的にも利用し得るものとして開発した。この方式のモニターでは $^{218}\text{Po}(\text{RaA})$ と $^{212}\text{Pb}(\text{ThC})$ の α 線を完全に弁別する必要上高いエネルギー分解能が要求される。そのため娘核種を検出面上に捕集するがその結果長寿命の娘核種 $^{210}\text{Pb}(\text{RaD})$ が累積し $^{210}\text{Po}(\text{RaF})$ の汚染が起きるばかりでなく、また放射性以外の微粒子の沈着も起きる。このためこの方式のモニターを長時間使用する場合は、適当な時期ごとに（例えば半年に1回）検出器を更新する必要も考えねばならない。このようなことを考慮し価格の安い（3.6万）シリコン・フォト・ダイオード（SPD）を検出器とした。この検出器は原理的に前述のようにPN接合半導体検出器と同じで、検出面に不感層があり、斜めから入射する α 線に対するエネルギー吸収量は、垂直に入射したものに比してかなり大きくなる。この厚さは検出面に付着したRaAやRaC'の α 線に対するこの検出器の出力波高分布より求めることができる。SPDの検出面の法線に対して角度 θ で入射した α 線は、不感層の厚さを t_d とすると、 $t_d/\cos\theta$ の厚さの不感層を通過して有感部にはいる。また検出面に付着した α 放射体から α 線が等方的に放出されるとするとそれが θ と $\theta+d\theta$ の間に放出される割合は $[\cos\theta - \cos(\theta+d\theta)]/2$ となる。 $t_d=1$ としたとき $t_d/\cos\theta$ に対する放出割合をFig. 10に示す。このSPDで測定されたRaAとRaC'の波高分布はFig. 11の通りなので両者より不感層の厚さを求めると、RaAに対して37.3keV、RaC'に対して35.4keVとなり、Alに対する dE/dx とSiのそれが大略等しいと仮定すると、それぞれ0.069、0.077mg/cm²（ dE/dx はそれぞれ0.538MeV/mgcm²、0.460MeV/mgcm²）となる。従って平均値は0.073mg/cm²（ $\sim 27\mu\text{m}$ ）となる。一方波高分布の高エネルギー側は半導体検出器としての分解能を表していると考え



α粒子が通過する吸収層の厚さ (相対値)
 Fig.10 半導体検出器の検出面に付着したα放出粒子から放出されたα粒子が通過する吸収層の厚さとその割合

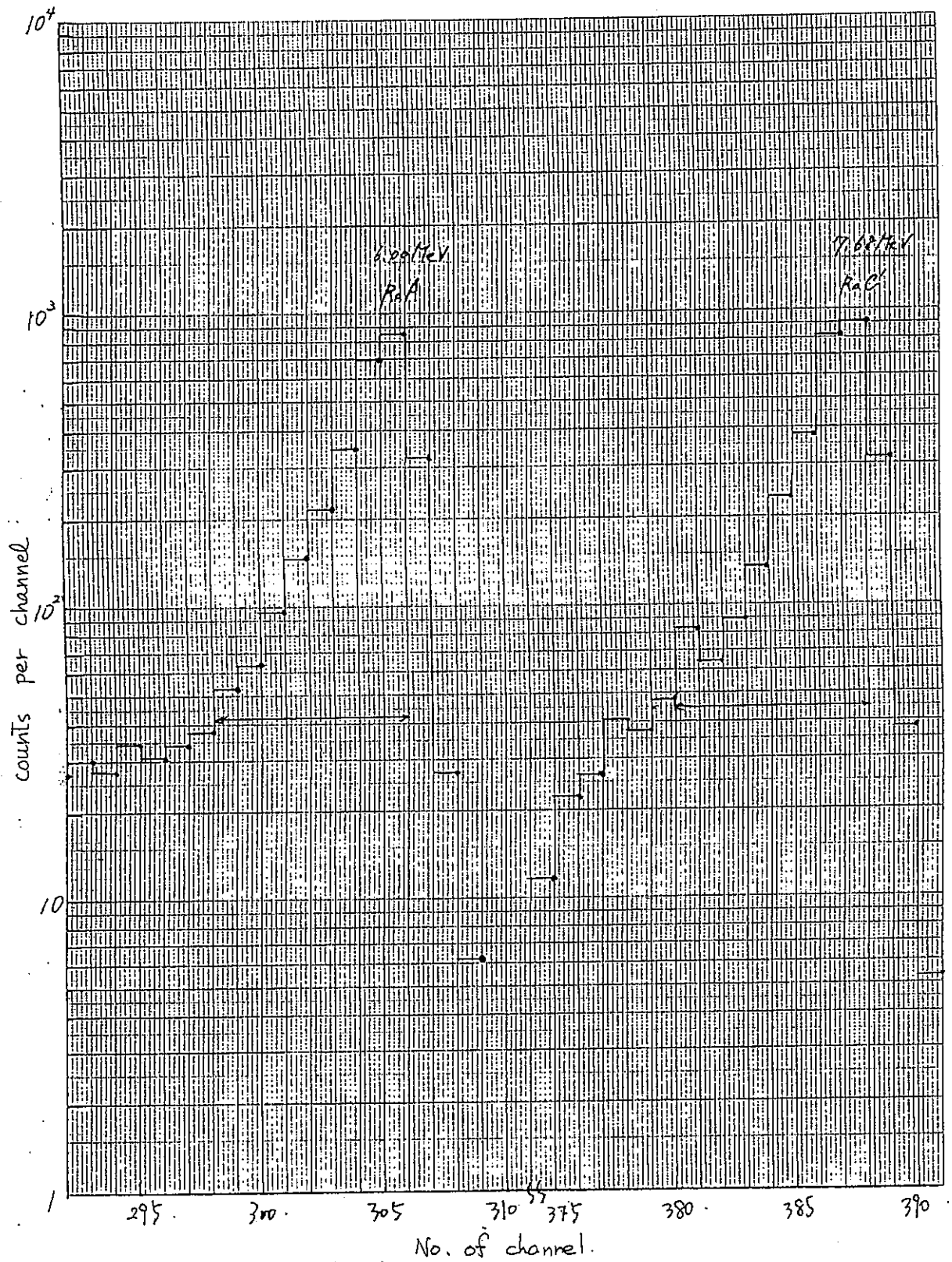
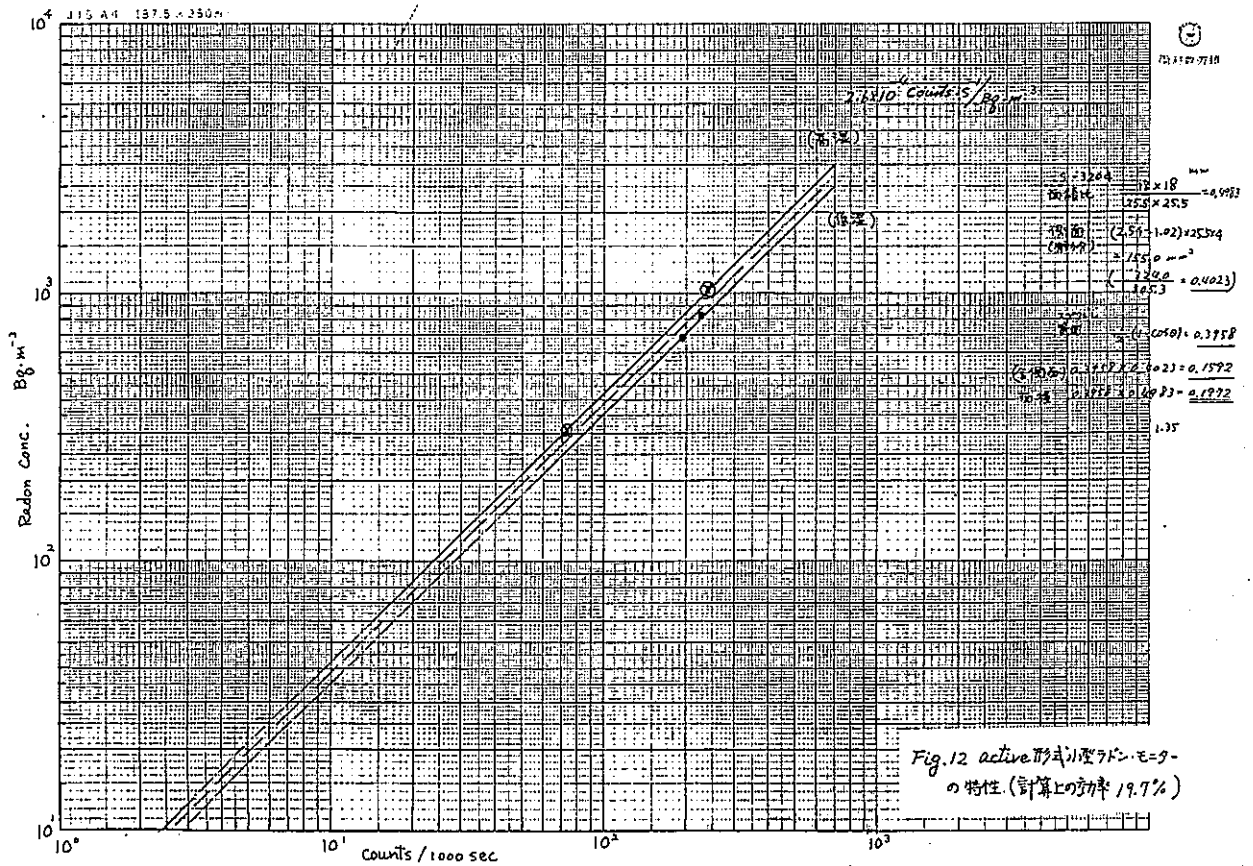


Fig. 11. 測定されたフロン線核種のα線の波高分布

と、半値幅はそれぞれ31keV、35keVとなる。また波高分布のピークの1/20までを計数対象とすると、計数効率 ϵ はFig.10より $1/2(1-1/4.8) \approx 0.396$ となる。このモニターの感度について人形峠の電離箱と比較した結果はFig.12のようになり測定した4点の平均から 2.6×10^4 counts $s^{-1}/Bq m^{-3}$ となる。測定した点を高湿状態と低湿状態に分けると、Fig.12のように2本の検量線に分離でき、その比は1.20となるが、除湿効果等が不明なため今後検討する必要がある。しかし計算上の効率の最大値は 2.66×10^4 counts $s^{-1}/Bq m^{-3}$ で上記の値はそれにほとんど一致するため、湿度の影響はほとんどないのではないかと考えている。このような小型のモニターを使用し1~2 l/minの流量で動作させ、充分高い捕集電圧(今回の実験では5kV)と充分な除湿(今回の実験ではCaCl₂で簡単に除湿した。電子冷却器で予備除湿し、かつ低温状態にした後除湿剤で除湿すれば完全であろう)ができれば良好なレスポンスでチェンバー内のラドン濃度を連続的に(15分毎位に)表示することができる。このような装置は付帯設備として必要である。



チェンバー内の濃度の制御については上記のようなレスポンスのよいモニターがあれば、1曝露期間中でも、自由に上昇下降させることが可能であるが、ラドン濃度測定器の校正のためには、1曝露期間中にラドン濃度を高もしくは低レベルに何回が変更させるものの、同一レベルを数時間以上保持するとともに、そのレベルをトレーサビリティが確立している電離箱などにより測定し、上記のラドンモニターを濃度移行の間のラドン濃度レベルの変化の状態の測定や同一濃度レベルか否かの確認など補間的な目的で使用し、チェンバーの信頼性を保つべきである。

一般的にチェンバー内でのラドン濃度の変更はできる限り急速に行うべきで、供試モニターの時定数にもよるがステップ関数で近似できるような速度が望ましい。通常のpassive型モニターの時定数は1時間以上であり、現状の濃度変更時の速度でもよいが、active型モニターの校正を行うことを考えると、10分程度で変更できることが望ましい。現在は25分程度である。

活性炭吸着を利用した商品名ピコ・ラドは、passive型ラドンモニターの一種類と考えることができるが、この校正法は他のpassive型モニターと大分異なっている。それはこの種のモニターの曝露時間が他のモニターに比して短く、かつ物理吸着を利用しているため、ラドンの飽和吸着量が周囲濃度の関数となり、さらに活性炭に吸着した水分子の影響を受けることである。従って校正にあたっては高ラドン濃度で曝露した後低ラドン濃度の環境に置いた場合とその逆の場合の吸着量の差、同一ラドン濃度で初め高湿状態で曝露させた後、低湿状態にした場合とその逆の場合の差、曝露時間による吸着速度の差（長時間になる程遅くなる）などが校正データに現われるようなプログラムを考えねばならない。これらをチェンバーの運転操作で実行できれば問題ないが、この種のモニターの占める容積は他のモニターに比して小さく、また曝露時間も短い。従って他のモニターとは独立した例えば曝露中のチェンバー内にこれらのモニターを挿入もしくは搬出する装置（ポート）を付加されることが望ましい。この場合のチェンバー内圧力は外気に対し僅かに低くしなければグローブの操作ができないが例えばその時点のみチェンバー内圧力を下げることにすれば可能である。このようなポートと外部から操作するためのグローブ（現在取り付けられるようになっている）によってチェンバーの操作性は非常に良くなるであろう。この場合

は現在のグローブ孔に内圧を高くする時のための蓋と加圧（グローブ内に加える）装置を取り付けることになるであろう。

別項にも書いたようにチェンバー内にかくはん用のブロアを取り付けるべきだと考える。拡散でラドンが混合する時間は直径2m位の球とチェンバーが等価と考えると20時間位を要するであろうが、実際にはラドンをチェンバーに注入する時点で混合しているので逆に濃度が偏在することはほとんど起きないように思われる。しかしチェンバー内でactive型のモニターの校正を行うことを考えると局部的な気流が起きその上発熱体が設置される場合もあり得るので低流量のかくはん専用のブロアが必要である。

active型のモニターを校正する場合チェンバー内と外部との間にケーブルや配管を接続する必要性が多い。またpassive型モニターの場合でも動作解析を行う場合には出力を記録するためケーブルをチェンバー外に接続することも有り得る。このため壁面にチェンバー内外を接続するコネクタや貫通管を常時準備しておく必要がある。早大で実験用に製作した接続板にはハーメチックシールのBNCコネクタ（レセプタクル）7個を取り付けたものと配管4本を取り付けたものがあるが、これらを一枚の板にまとめ（配管は8本）の方が使用しやすい。チェンバー内圧を外気圧より低くすることはまず有りえないので配管は解放型とし、チェンバー側で2本ずつ適当なビニール系の管で接続すればシールは充分である。コネクタは内部に同軸ケーブルを接続しチェンバー外面にはレセプタクル面が出るようにすれば不使用のときに整理されじゃまにはならない。

active型のモニターの全てをチェンバー内に設置する場合その出力を読みまた動作状況をモニタリングすることは当然有りえることである。このためにはチェンバー内に照明とモニター、テレビがあれば良いが、テレビが無い場合は、チェンバー内に適当な大きさのミラー（曇り難いよう加工する必要がある）と照明を置きチェンバー外より動作状況や指示値が読めるようにすべきであろう。当然のことであるが照明は必要な時に黙燈することになる。概してこのチェンバーはこのような設備が殆ど無く不便である。

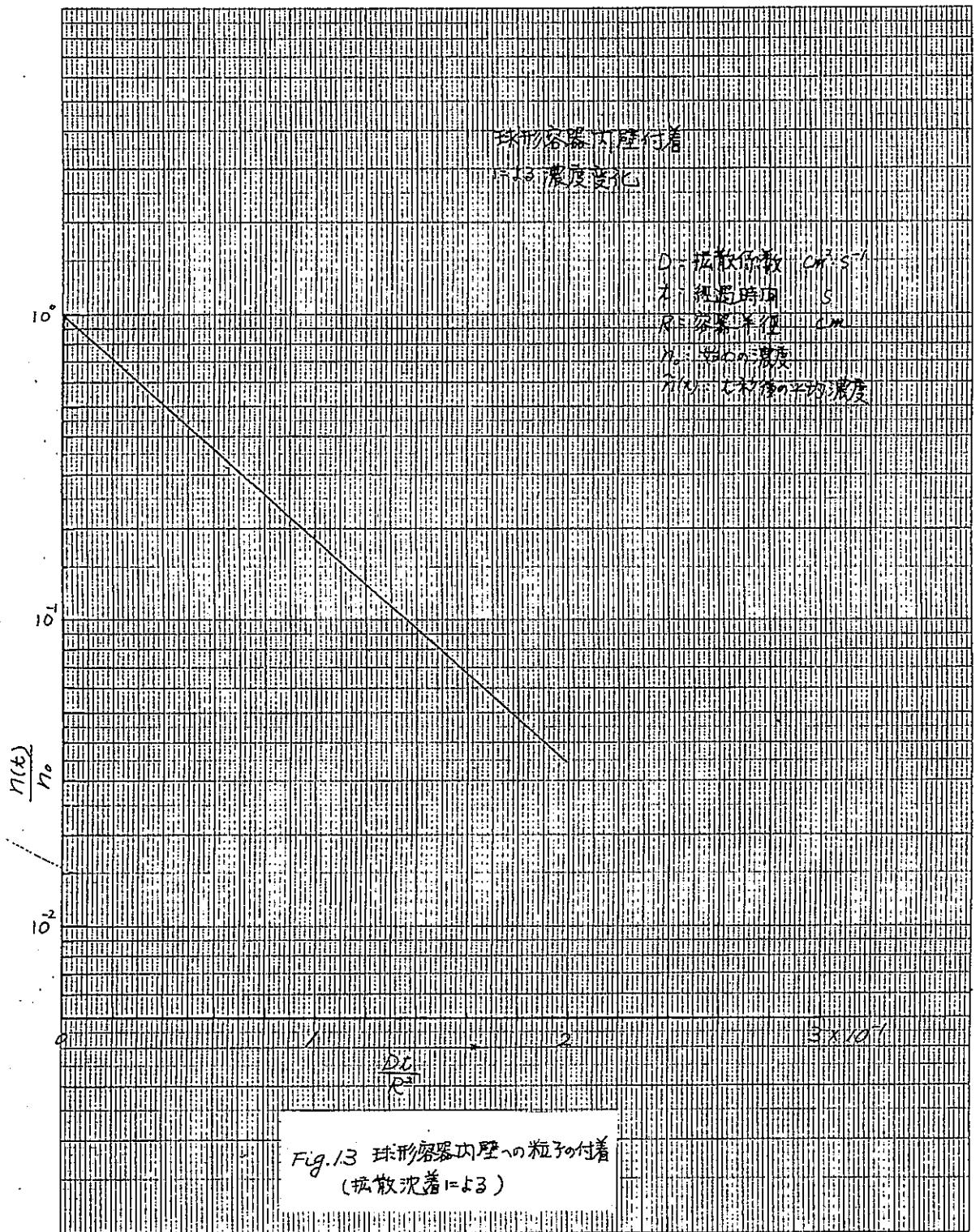
さらにチェンバー内の気圧・湿度・気温（ラドン濃度も）など校正上必要と思われる環境データはデジタルの型でチェンバーののぞき窓付近（チェンバー内の測定器の操作上最も見やすい位置）に表示すると共に、校正データにそのcopy（適当な時間間隔でデータを

表示したもの)を添付する必要がある。現在の表示は操作板上のみであり非常に見難くまた、記録紙上のデータは読み難い。

5. 供試モニターの特徴と校正法

今後多くのラドンモニターの校正を行うことになるだろうが、その際、供試モニターの特徴から校正法を選定すべきである。この際モニターの弱点もしくは欠点が表面に出たほうが良いか、全く無難な校正法を採るか議論の別れるところであるが、校正の目的はその測定器を種々の環境下で使用すると仮定した時、どの程度の信頼性のある測定値が得られるかを見積もることであり、そのためには影響が大きそうな変動要因を与えることは必要だと考えられる。ただこれについてはその測定器の使用者の考えに充分留意しなければならない。

passive型ラドンモニターには拡散付着(捕集)型と静電捕集型がある。また捕集した娘核種の検出法もしくは検出器にも幾つかの種類がある。拡散付着型ではモニター容器内に娘核種が浮遊している状況を仮定するものはなく、すべて容器内壁に付着するものと考えられ、従って容器内にはラドンのみしか存在しない。従って内壁に検出器を設置し効率良く付着した娘核種の量を求めるには容器内壁と検出器の距離が制限され、例えばRaAの α 線の最大飛程約4.6cmを超えることは考えられない。またこの距離と検出器の検出可能エネルギーの上限とを組み合わせる場合もある。いずれの場合についても α 線に対するエネルギー減速能や内壁に対する付着速度が重要な感度因子となる。前者に対しては気圧が、後者に対してはモニター封入時の娘核種の粒径分布が直接影響する。従ってチェンバー内の気圧をそのモニターが遭遇するであろう気圧の変動幅中の幾つかの気圧で校正すべきであるし、また封入時の粒径を例えばクリーンブースなどにより長期間曝露の粒径に近くする必要がある。例えばFig.13で示す図により半径2.3cmの球内で直径 $0.2\mu\text{m}$ のエアロゾルに付着した娘核種の63%が内壁に付着する時間を求めると、拡散係数Dは $2.22 \times 10^{-6} \text{cm}^2 \text{ s}^{-1}$ となるので、16.55日となる。これは通常の校正期間では考えられぬ長さではあるが、モニターを実際に使用する場合にはそれ程問題にはならぬ日数である(11Åと考えられる非付着成分の場合は0.98分で付着する)。従って校正の結果を表示する場合はそれらを考慮



し、実用上の曝露期間の下限を指定しなければならない。

静電捕集型の場合は非付着成分のエアロゾルに対する付着速度がそれ程大きくないためモニター内の水蒸気量の方がはるかに重要である。従って前項にも示したように除湿剤の量を減らし校正期間に見合うようにしなければならない。例えば3日間の曝露期間で、実用上2ヵ月の使用期間のモニターを校正するのであれば、除湿剤の表面積は変えずに1/20の量にすることになる。この状態で加湿と減湿を何回か（例えば3回）繰り返すことになろう。当然のことながらこの時のモニター内の湿度を測定する必要がある。しかしそれはユーザー側の責任のように思われる。

passive型のラドン交換速度はモニターの環境条件に支配されるようであるが現状では量的に把握されていない。もし変動が著しい場合にはラドン注入時と排出時の環境条件の設定方法が問題となる。いずれにしてもラドン濃度を変化させた時と一定にした時の差の有無を確認することが必要ではないかと考えている。

同じpassive型でも活性炭吸着法ではそれがactive型であってもラドン濃度の変化と湿度の変化は極めて重要な感度の変動要因となる。一般に高ラドン濃度で吸着させ、その後低ラドン濃度に曝した場合と湿度が上昇した場合には、いったん吸着したラドンが脱着される恐れがあるとされている。例えば昼夜のラドン濃度の比が10倍に達することも有り得るので、校正にあたっては校正時の条件を明示し適切な濃度比の変化や加湿を行わねばならない。濃度比として6~10倍、湿度として25℃で70%（相対湿度）程度が与えられるべきであろう。また曝露時間によって吸着速度が変わるため、例えば1/2日間、1日間、2日間程度の曝露時間で校正しなければならない。

active型のモニターについては前項に述べたように曝露中にラドン濃度や湿度を急変させ、そのレスポンスを校正実験の中に加える必要がある。また気圧の変化についても同様である。

6.結論

passive型の場合もactive型の場合も、ラドンモニターを適切なトレーサビリティをもって校正することは適正なラドン濃度評価値を得るための不可欠の手段である。しかし

ながら我が国では校正用チェンバーとして種々のモニターに適合し得る可能性を持つチェンバーは人形峠のチェンバー以外見られない。そのためこのチェンバーを有効かつ適切に運用することが国内の多くの関係者から望まれている。しかしながら現状では国際的にトレーサビリティがあると考えられる線源を基幹としての校正システムが構築されていない。現在電子技術総合研究所にあるラジウム溶液（IAEAのトレーサビリティが確立している）を中心に、平成7年度前半までに国内のラドン濃度測定器の校正をシステムティックに行うことができるよう計画中（放医研および早大のW.Gを中心として）である。しかしこれはgrab sampling用の測定器であり、いわゆるモニター類はそれを使用する環境条件によって種々の面で影響を受けるため、モニター類の校正のためには、容積は小さくともそのような環境を人工的に調整し得るチェンバーが必要である。

動燃・人形峠のチェンバーはその設置場所が700mの高地にあるという点と上記のトレーサビリティが未だ確立していない点を除けば多くの条件をクリアした標準に近い校正用チェンバーと考えることができる。トレーサビリティについては上記の作業を動燃・人形峠事業所などの協力を得ながらその実現について努力しているところであるが当該チェンバーを有効に使用しその効用を高めるためには、当初予定していた以上の付加設備を加え、かつ適切な運用方法で校正を実施する必要がある。現在チェンバーを設置している部屋の種類と校正時に要求されるラドン濃度（最大値）の間に整合しない部分があり、このままでは現状以上の拡大は望めないのではないかと思われる。このためチェンバーを長時間独立した系として運転し、ラドン濃度は屋外空気と適当なラドン源とのやりとりで安定化しつつ、小型の供試モニターをチェンバー外より内部に搬入および搬出できるよう改造することが必要ではないかと考えられる。現状ではラドン濃度は物理的なdecayで減少するのみのワン・パターンしか得られないし、異なった種類のモニターに対する異なった曝露法を同時に実行することもできない。またもう一つの付加設備は、チェンバー内に局所的な環境を作ることができる小型のチェンバーを設置することである。同一ラドン濃度の状況で湿度・温度などの条件を変えることが可能の小型のチェンバーを内部に設置できればモニターの特性をかなり良く把握できるものと思われる。

ラドン・モニターには多くの種類があり、その動作の細部については不明な点が多い。

例えばSPDを α 線検出体として使用した場合、SPD本体の外側にあるエポキシ基板の帯電が影響しているのではないかとと思われる現象（RaAの捕集曲線が以上に長い時定数を示す）が見られている。このようなモニターの動作解析にもこのチェンバーは極めて有効ではあるが、この種の測定に必要な配線・配管がなく、またチェンバー内の監視も極めて不便である。これはこのチェンバーを設計した時利用するであろう機関の意見を充分調査していなかったことにあると思われるが、比較的簡単に改装し得るのでこれらの点を含め今後の方法について各利用者の意見を把握して適切な改良が実施されることを期待する。そのためには委員会もしくはWGの設置なども有効ではないかと考えられる。