

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]

ラドン及び崩壊生成核種の環境中 挙動に関する研究 (I)

(動力炉・核燃料開発事業団)
(委託研究成果報告書)

1995年3月

近畿大学原子力研究所

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)

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

安全部

社 内 資 料
PNC 1630 95-001
1 9 9 5 年 3 月

ラドン及び崩壊生成核種の環境中挙動に関する研究 (I)

森嶋彌重**、古賀妙子**

要 旨

活性炭によるラドン吸着を利用したピコラド検出器および液体シンチレーションスペクトロメータを使用して、鳥取県三朝地域における空気中および水中ラドン濃度の測定を行い、ラドンおよび崩壊生成核種の環境中挙動に関する研究を行った。

ピコラドシステムによるラドン濃度測定は、簡便迅速に測定可能で、採取期間 24 時間、計測時間 200分で、空気中ラドン濃度の最小検出限界は 1.7 Bq/m^3 、水中 0.43 Bq/l と有効な方法である。三朝周辺地域では、屋内ラドン濃度は $19 \sim 158 \text{ Bq/m}^3$ 、屋外ラドン濃度は $19 \sim 69 \text{ Bq/m}^3$ に変動、浴室においては換気などに大きく影響されるが、 $100 \sim 2200 \text{ Bq/m}^3$ と高く、そして巾広い範囲に変動した。温泉水中のラドン濃度は $48 \sim 1066 \text{ Bq/l}$ 、三徳川、用水路などの水中ラドン濃度は最高 14 Bq/l の範囲に変動している。

* 本報告書は、近畿大学が動力炉・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 : 070D0197

事業団担当部課室および担当者 : 安全部長 谷山 洋

** 近畿大学原子力研究所



OFFICIAL USE ONLY
PNC/J163095-001
March, 1995

Study on the environmental movements of Radon and its decay nuclides.

Hiroshige Morishima** and Taeko Koga**

Abstract

A radon detecting device using radon absorption with active charcoal (Packard Pico-Rad System) and a liquid scintillation spectrometer for the purpose of study on environmental movements of radon and its decay nuclides is described. Its minimum detection limits of radon in the air are 1.7 Bq/m³ and 0.43 Bq/l in the water with the accuracy of about 4% on counting time of 200 minutes. This method is able to measure conveniently and rapidly on sampling period for 24 hours. Radon concentrations at Misasa hot springs in Tottori prefecture were measured using this method. They were widely varied 19~158 Bq/m³ indoor, 19~69 Bq/m³ outdoor, 100~2200 Bq/m³ in bathroom and were effected on room air condition etc. Radon concentrations in hot springs were 48~1066 Bq/l and ~14 Bq/l in Mitoku river water and irrigation water.

* Work performed by Kinki University under contract with Power

Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

P N C Liaison : Safety Division Hiroshi Taniyama

** Kinki University Atomic Energy Research Institute

目 次

1. はじめに	・・・ 1
2. 材料および方法	・・・ 3
2.1 空气中ラドン濃度測定方法	・・・ 3
2.1.1 ピコラドシステム	・・・ 3
2.1.2 液体シンチレーションスペクトロメータによる測定	・・・ 3
2.2 試料採取	・・・ 6
2.3 ラドン濃度測定の試料調製	・・・ 6
2.4 土壌中の γ 線核種分析	・・・ 9
3. 結果と考察	・・・ 9
3.1 ピコラド検出器のラドン基準校正等特性	・・・ 9
3.2 鳥取・三朝周辺地域における空气中ラドン濃度	・・・ 12
3.3 三朝旭地区大柿におけるラドン濃度	・・・ 19
3.4 三朝温泉街における空气中ラドン濃度	・・・ 19
3.5 東大阪における空气中ラドン濃度	・・・ 24
3.6 土壌中 γ 線放射性核種分析	・・・ 24
4. まとめ	・・・ 27
5. 参考文献	・・・ 28

1. はじめに

UNSCEAR 1988,1993年国連科学委員会報告書によると、自然に存在する放射線源の一つであるラドン (Rn-222) とその短寿命崩壊生成核種の吸入による内部被ばく線量は、世界の平均的な値として、自然放射線源から受ける被ばく線量が年間 2.4 mSv の約半分を占め、被ばく線量の最も大きな要因で生活環境中における自然放射線による被ばく問題が世界的に注目されている¹⁻⁴⁾。

ラドン (Rn-222) は 10^9 年オーダーの非常に長い半減期を持つ U-238 を親核種とするウラン放射性壊変系列の中で Ra-226 より α 崩壊後、生成してPo-218 に壊変後、次々に崩壊して空気中に浮遊する微粒子に付着して放射性エアロゾル(100~400 nm)を形成する。Po-218 は空気中の水分子や不純物ガス分子と作用し、イオンクラスターを生成し、数nm 程度の大きさでフリー成分⁵⁾と呼ばれる。ラドンは α 線を放出する無色・無臭の放射性希ガスで、半減期 3.8日、気体中でもっとも重く(密度: 9.96 kg/m³)、地上でもっとも存在量が少ない元素で水に溶けやすい性質を有する。また、 α 線を放出するので、外部被ばくより内部被ばくによる影響が心配される。トリウム (Th-232) 系列における Rn-220、Rn-218、Rn-219 も半減期が短く生成しても消滅が早く、生活環境では存在し影響が大きいのはRn-222 と思われる。

土壌中にはウランやラジウム等を含む鉱物が広く分布しているため、これらがラドンの発生源として種々の形態で人の生活環境に関与している。これら天然放射性核種による放射能は一般的に低いとされているが、近年の住宅構造の気密化などによって家屋内でのラドンの蓄積が見られ、それが世界的傾向になっている。このため、わが国でも全国的に生活環境におけるラドン濃度の実態を把握し、それによる線量の評価が急がれるとともに、屋内のラドンとその崩壊生成核種の吸収によって引き起こされる恐れのある人体への影響に関する研究が多く報告されている。

屋外におけるラドンは、土壌、地下水、天然ガスなどを発生源として、濃度は線源-散逸率-と大気の希釈過程によって支配され、これらは共に地域、季節、気象条件によって影響を受ける。鉛直分布は大気安定度に依存し、大気安定度は大気成分の鉛直輸送を支配し、気温の鉛直勾配によって決まる。水平方向の変化は風向、風速などにより大きく変動する⁶⁾。ラドンの発生は地質により決定され、花崗岩類が多い西日本が、玄武岩類(火山灰)などの多い東日本よりラドン濃度は高くなる。

一般に大気中の平均ラドン濃度は約 5Bq/m^3 であるが、場所により $10^2 \sim 10^3 \text{Bq/m}^3$ の範囲で分布している。屋内空気中ラドン濃度は屋外より一般的に高く、約 2~20 倍程度の範囲である。UNSCEAR 1988年、1993年報告¹⁾によるとスウェーデン、フィンランドなど北欧において、屋内に非常に濃度が高いところが報告されている。屋内ラドンは建物周辺の土壌や岩石、建材、給水、天然ガスおよび屋外空気といった異なった起源から建物内へ進入する。これらに含有する U-238(Ra-226)、Th-232 の量の多少が、建物の構造、換気などが流入量、流入系路に大きく関与し、地下室、床下空間などでも問題となる。

住宅屋内外におけるラドン濃度の測定⁷⁾ や、昼夜間の濃度差⁸⁾、舞鶴市大気中ラドン濃度の季節変動⁹⁾、その他ラドンの挙動と分布に関する研究¹⁰⁻¹³⁾、ラドン被ばくとがんとの関係¹⁴⁾、阪神大震災前の地下水ラドンの異常¹⁵⁾などラドンに関する研究は多い。

ラドン濃度の測定には動力を必要とするアクティブ型の測定器が必要であるが、通常小型で無騒音の簡易な方式パッシブ型のラドンモニタを使用し、ラドンの3種の崩壊生成核種から放出する α 放射能濃度を測定する。これら核種の測定法¹⁶⁾は、捕集法、検出器の種類、時間配分解析法による違いなどにより多岐に渉る。捕集法に注目すると、フィルター法^{17,18)}によるものが多いが、他に直接電離箱法や、静電捕集法、活性炭による吸着法¹⁹⁾などがある。検出法としては、液体シンチレーション法²⁰⁻²⁴⁾、固体飛跡検出法^{25,26)}などがある。しかし、比較的長期間の設置が必要で、測定期間の平均濃度として、示される。

そこで、今回ラドンの捕集に用いたのは、活性炭によるラドンの吸着を利用した、パカードインスツルメント社のピコラド検出器で、測定は液体シンチレーションスペクトロメータにより行った。ピコラド検出器は24~48時間で自然のバックグラウンドレベルの測定が可能である。生活環境では様々な要因によってラドン濃度は時間的にも空間的にも変動し、変動巾も大きい。そこで、環境大気中のラドン濃度の経時変動および場所的な濃度レベル分布を簡便にしかも、正確に評価をするためにピコラドシステムを採用し、基礎的な特性を検討するとともに、日本でも有数のラドン温泉である、鳥取県三朝温泉と、その周辺地域の空気中および水中ラドン濃度の測定を行ったのでその結果について報告する。

2. 材料および方法

2.1 空气中ラドン濃度測定方法

2.1.1 ピコラドシステム

ピコラド検出器 (Fig.1) はラドンが活性炭によく吸着し、有機溶媒に抽出されやすい、等の性質を利用し、実用化したもので、

- 1 短時間 (12~96時間) で空气中のラドンの捕集が行え、
- 2 サンプル調製が簡単で、
- 3 湿気の問題が少ないため演算の工程が簡素化でき、
- 4 小型、軽量等の利点を持つ空气中ラドン濃度測定法である。

2.1.2 液体シンチレーションスペクトロメータによる測定

液体シンチレーションスペクトロメータ (Fig.2) は、液体シンチレータに溶出した放射性物質からの放射線による発光を計数する装置で、Fig.3 に構成図を示す。液体シンチレータからの蛍光は、試料をはさんで対向した2本の光電子増倍管により電気的パルスに変換される。2本の光電子増倍管で同時計数することにより、個々の雑音を除去することが出来る。各光電子増倍管から生じたパルスは、加算され増幅されてアナログゲートに入る。このゲートは同時回路からパルスが入ったときだけ開き、増幅された出力パルスを通す。こうして、パルス部分以外の雑音をカットしている。こうしてできた様々な波高のパルスは、波高分析器により分析され、データ処理機により処理される。

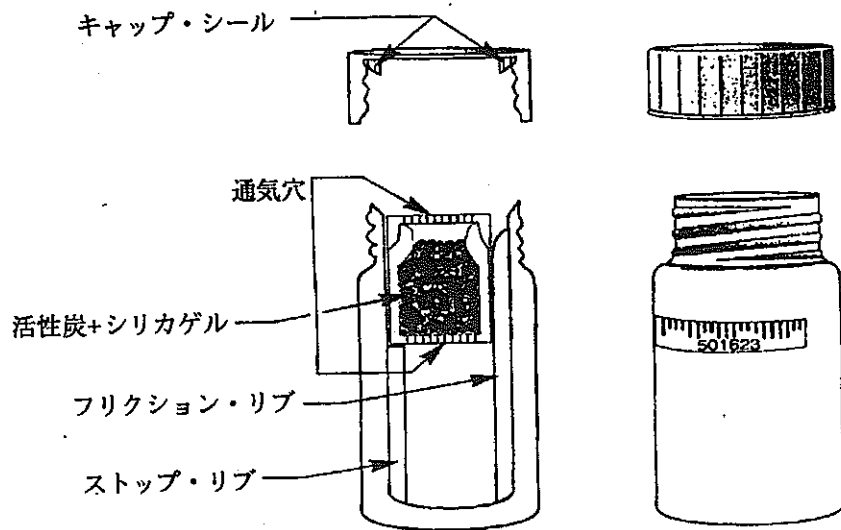


Fig.1 ピコラド検出器



Fig.2 液体シンチレーションスペクトロメータ
(Packard TRI-CARB 2250 CA/LL)

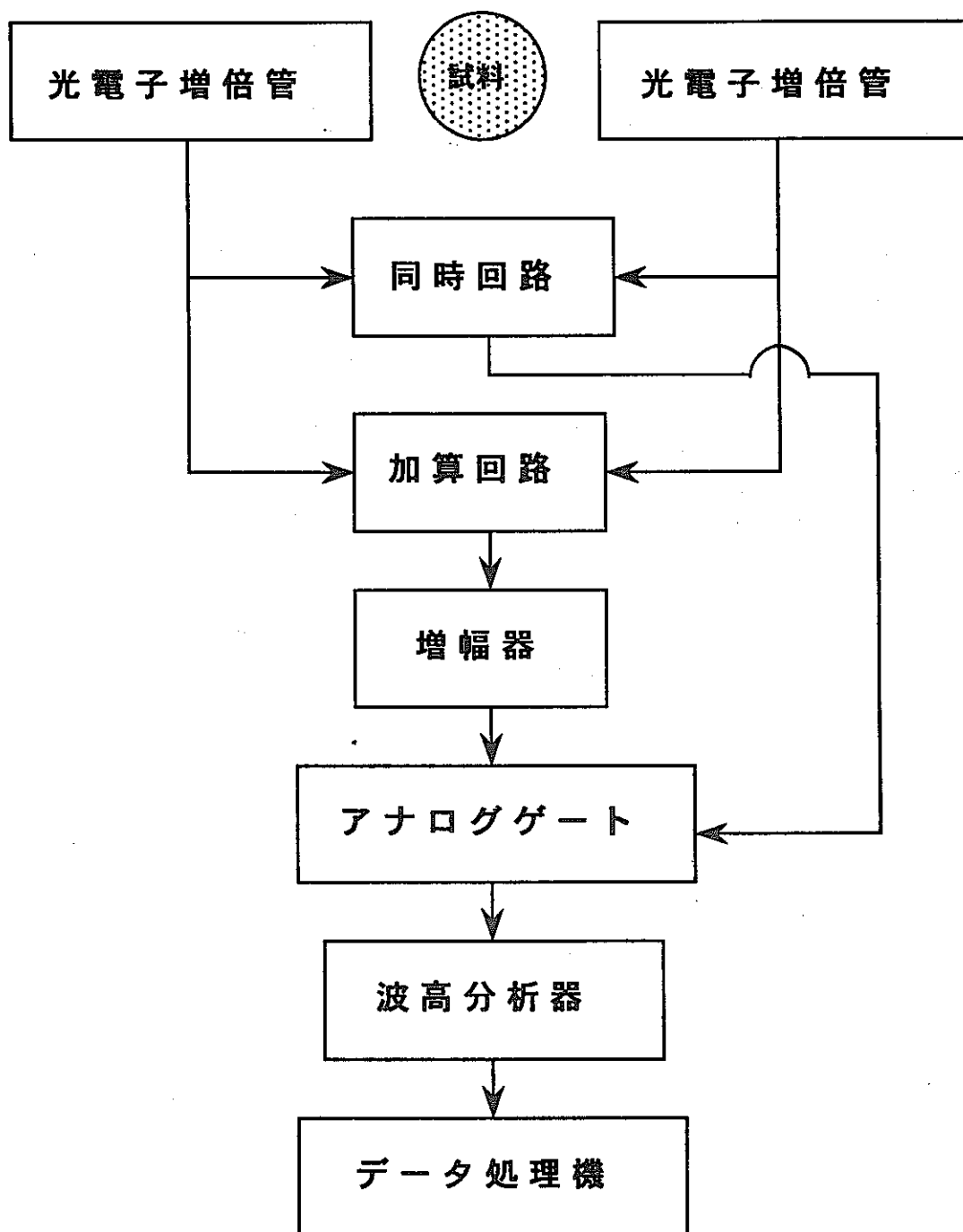


Fig.3 液体シンチレーションスペクトロメータ構成図

2.2 試料採取

三朝温泉は、鳥取市の西南西約 30km の、鳥取県東伯郡三朝町にあり、山陰の名湯として名高い。疲労回復、神経痛、リウマチなどに効能があり、二日湯につかれれば3日目の朝には病が治ることから、この名前がついたと言われる。主要成分は、ナトリウム、カルシウムの陽イオンと、塩素、炭酸水素、酸化硫黄の陰イオンである。泉温は平均で 53.6℃で、色は無色透明、pH は中性ないし弱アルカリ性で、世界で第3位のラドン含有量を誇る。

三朝温泉地区は、鳥取県の中央部を北流する天神川の支流の三徳川の兩岸の三朝、山田地域で温泉水が湧出する。水温は36～85℃、一日の総湧出量は約3000 m³で、泉質は主として含Rn-Na-Cl泉、または含Rn-Na-Cl-HCO泉である²⁾。三朝温泉地区の三徳川兩岸沿いにおいて、ラドン濃度および空間線量測定を行った場所を Fig.4 に示した。屋内外及び水中ラドン濃度、空間線量率の測定は、鳥取県三朝周辺地域、三朝温泉街及び三徳地区、旭地区、竹田地区及び人形峠でウラン鉱床露頭発見の地において行った。対照地区としては、東大阪市において近畿大学原子力研究所構内、研究室、倉庫等で空气中ラドン濃度の測定を行った。

2.3 ラドン濃度測定 of 試料調製

ラドン濃度の測定法は Fig.5 に示したように、パッカー社製のPICO-RADシステムを用いて、水中および浴室、室内および屋外における空気中について、ラドン濃度の測定を行った。

(1) 空气中ラドン濃度の測定は、現地でPICO-RAD検出器のフタを開放、地表面から1mのところ、開口部を下にして設置し、24時間ラドンを捕集し、その後、この検出器にシンチレータ溶液 (INSTA-FLUOR) を10ml添加した後、フタを閉めて約15秒間振とうし、持ちかえり、パッカー社製液体シンチレーションスペクトロメータ (TRI-CARB 2250 CA/LL型) を用いて測定を行った。

(2) 水中ラドン濃度測定は、現地にて20ml ガラスバイアル瓶にシンチレータ溶液 (OPTI-FLUOR) を10ml入れ、次に試料水を10ml採取して添加し、約15秒間振とうし、液体シンチレーションスペクトロメータで測定を行った。

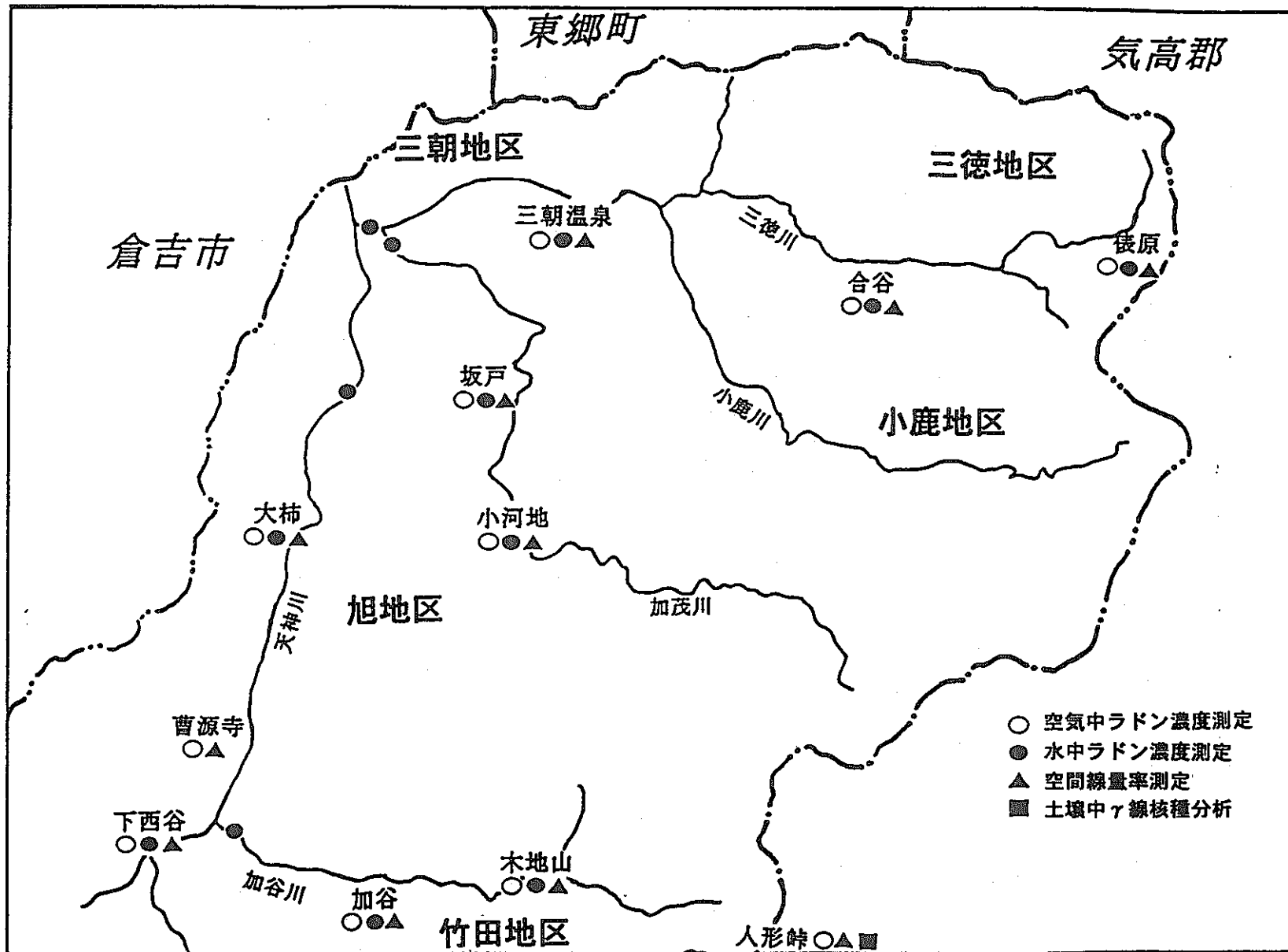
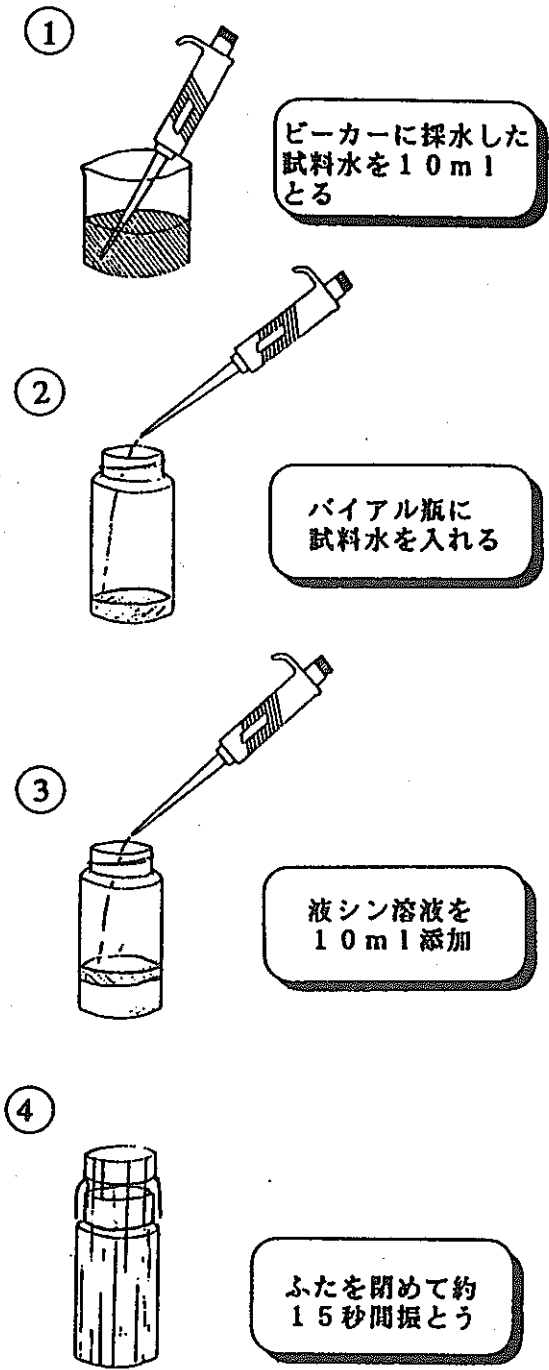
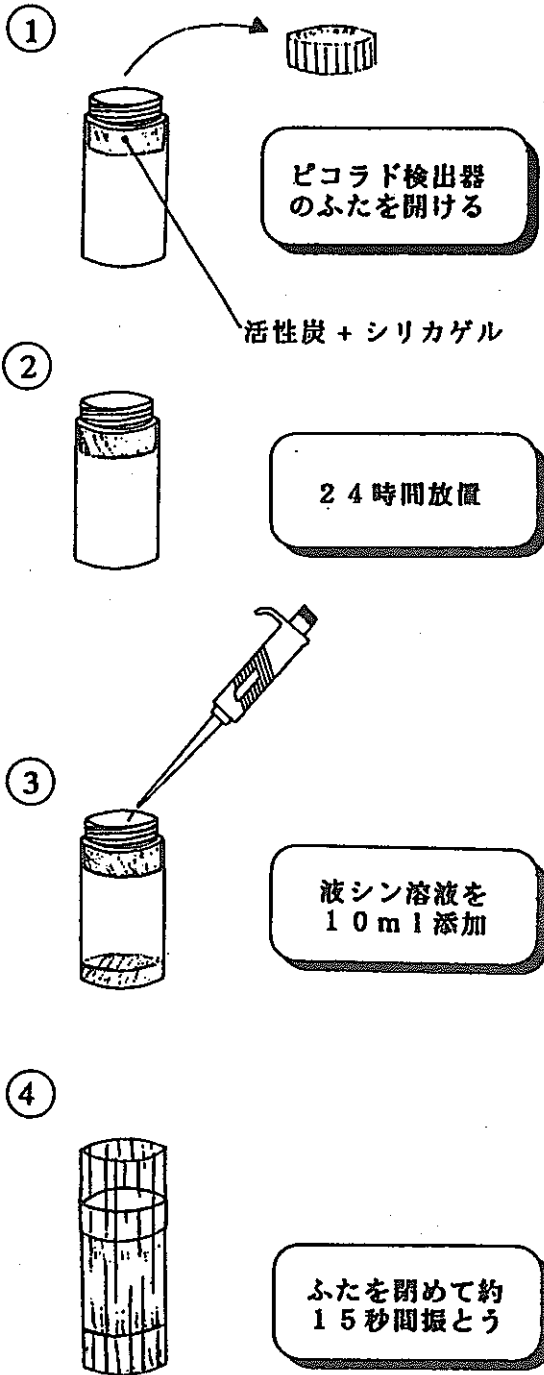


Fig.4 三朝周辺地域各測定場所

空气中ラドン濃度

水中ラドン濃度



⑤ 液体シンチレーションスペクトロメータで測定

Fig.5 ラドン濃度測定法

2.4 土壌中の γ 線核種分析

ラドン濃度を測定した地域の土壌中の γ 線核種分析を実施した。ラドン濃度を測定した地点の土壌を採取し、乾燥細土にした後、U-8容器に秤量し、 γ 線核種分析は、Ge (INT) 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメータで測定し、NAIG社製 NLAB-MCA2/Gamma で、データ処理を行った。

3. 結果と考察

3.1 ピコラド検出器のラドン基準校正など特性

動力炉・核燃料開発事業団人形峠事業所内において、ラドン標準校正チェンバー (Fig.6) を用い、ピコラド検出器の基準校正を行った。

校正係数は、ラドン標準校正チェンバー内のラドン濃度を測定値で割ることで求める。チェンバー内にピコラド検出器20本を設置し、標準ラドンガス 145 Bq/m^3 を封入し、24時間放置した。ピコラド検出器10本については回収後、直ちに液体シンチレータを添加し、残りの10本については近畿大学に持ちかえり液体シンチレータを添加し、採取後の経過時間によるラドンの液体シンチレータへの溶出の経時変化を検討した。測定はその後、液体シンチレーションスペクトロメータで行い、その結果を Table 1 に示した。

これによると、サンプル採取直後に液体シンチレータを加えたものは、10本の平均ラドン濃度 157.8 Bq/m^3 となり、チェンバー内に封入された標準ラドン濃度値 145 Bq/m^3 より校正係数(ラドン濃度/計測値)を求めれば0.92であった。10本の測定したラドン濃度の相対標準偏差を精度あるいは変動係数とすると、4.0%となった。

回収直後に液体シンチレータを加えた場合、ピコラド検出器へのラドンの吸着性は安定しているが、28時間後に液体シンチレータ溶液を加えたものについては、濃度は15%減となり、校正係数は1.07で、精度は若干悪くなった。ラドンの捕集を行っていない未使用のピコラド検出器に、液体シンチレータを加えたものをバックグラウンド試料として求めた。バックグラウンド計数の標準偏差の3倍を検出限界とすると、Table 1 により、空気中のラドン濃度の最小検出限界は200分測定で 1.7 Bq/m^3 、水中のラドン濃度は 0.43 Bq/l であった。

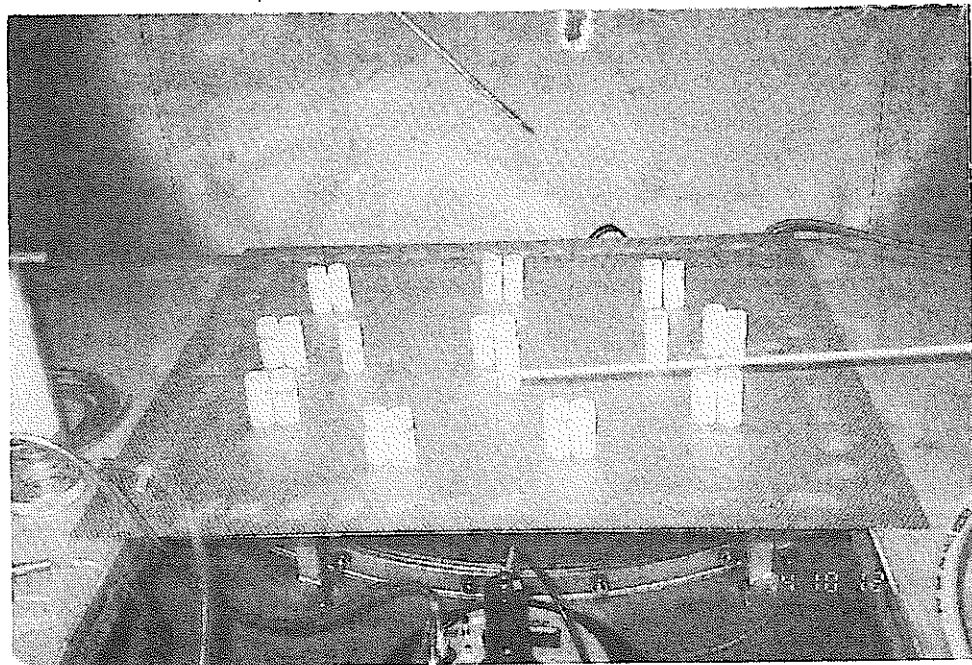
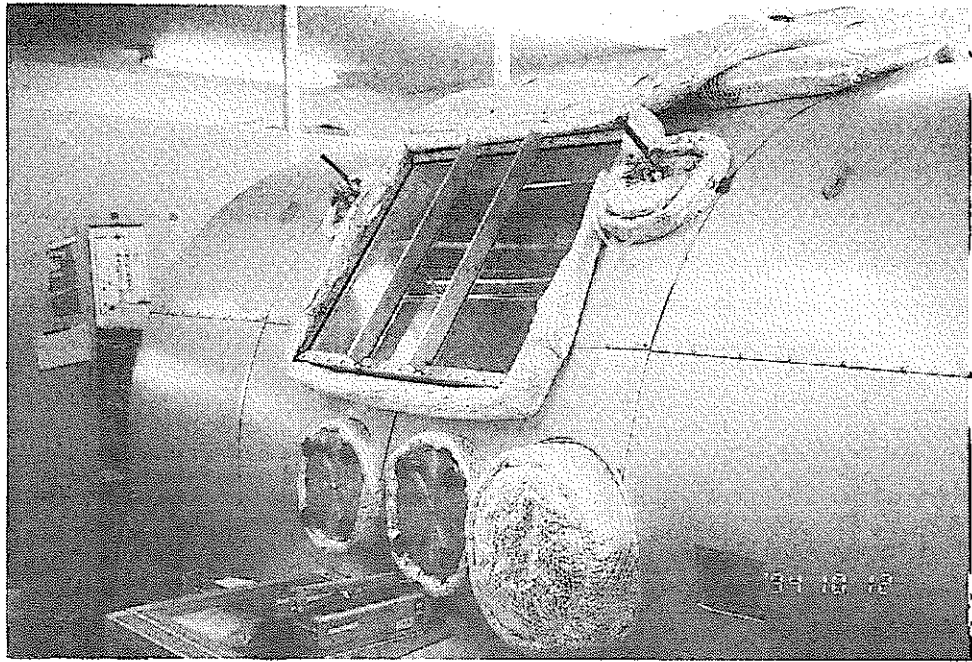


Fig.6 ラドン標準校正チェンバー

(動燃人形峠事業所)

Table 1 ピコラド検出器による空气中ラドン測定の特徴

[Bq/m³]

	直後に 液シン溶液を添加	28時間後に 液シン溶液を添加
1	160.95 ± 3.14*	121.14 ± 2.97
2	167.84 ± 3.21	133.82 ± 3.08
3	163.92 ± 3.18	134.27 ± 3.07
4	150.91 ± 3.08	137.84 ± 3.08
5	161.65 ± 3.18	132.22 ± 3.03
6	151.59 ± 3.10	129.68 ± 3.00
7	159.25 ± 3.17	154.45 ± 3.20
8	147.54 ± 3.08	139.74 ± 3.07
9	158.02 ± 3.18	130.38 ± 3.01
10	155.86 ± 3.16	139.51 ± 3.09
平均	157.75 ± 4.0%* ²	135.31 ± 6.4%
校正係数* ³	0.92	1.07
精度 (変動係数)	4.0%	6.4%
最小検出限界	30分測定 5.0 Bq/m ³	200分測定 1.7 Bq/m ³

* 計数誤差

*² 標準偏差

*³ 校正係数 = ラドン標準濃度 / 計測値

3.2 鳥取・三朝周辺地域における空気中ラドン濃度

1994年10月、三朝周辺地域において、測定場所30カ所の屋内外における空気中ラドン濃度の測定を行った。その結果を Table 2、Fig.7、Fig.8 に示した。これによると、屋内ラドン濃度は $19\sim 158.1\text{ Bq/m}^3$ 、屋外ラドン濃度は $19\sim 69.1\text{ Bq/m}^3$ の範囲で変動した。地区ごとにみると、旭地区がほかの三徳及び竹田地区に比べて、平均値で屋内及び屋外いずれも約2倍高い傾向を示した。高いところでは東大阪のラドン濃度の数倍の値を示し、旭地区の坂戸、大柿が高く、三朝温泉街の濃度とほぼ同じレベルのラドン濃度を示した。三朝周辺地域全体で低い三徳、竹田地区では、屋内濃度は対照地区東大阪の3～4割高いにすぎないが、屋外では2.5倍の濃度を示した。

次に、人形峠付近における屋外ラドン濃度は $13\sim 21\text{ Bq/m}^3$ であった。平均は 16.6 Bq/m^3 で東大阪の約2倍程度であった。また、ウラン鉱床露頭発見の地では、地上よりの高さが70cmのところでは 421 Bq/m^3 であり、地表面より5cmでは 1700 Bq/m^3 という高濃度を示した。

一方、三朝周辺地域の農業用水、河川水などの水中ラドン濃度は、Table 3 に示した。これによると最高値は坂戸の用水路で 14 Bq/l であった。三朝温泉街地区の水中ラドン濃度が高いのは、温泉水の河川への流入が考えられ、三朝温泉街の河川水中に検出されるが、水量も少ない用水路においては水中のラドン濃度が検出されたのは俵原および坂戸に限られ、俵原地区は空気中ラドン濃度は低かったが、坂戸は空気中ラドン濃度も高かったことから、ラドン放出の影響があるものと思われる。

Table 4 に三朝周辺地域の空間線量率の測定結果を示した。これによるとサーベイメータの測定値の変動係数10～20%を考慮すると、屋内、屋外線量及び対照地域の東大阪の線量との差に有意な差があると思われませんが、しかし屋内及び屋外線量率とラドン濃度との相関関係を Fig.9 に示した。試料数がまだ少ないが、ラドン濃度 $20\sim 60\text{ Bq/m}^3$ の範囲でラドン濃度と線量との間に正の相関が見られる。

Table 2 三朝周辺地域空气中ラドン濃度

(1994.10.13~17) [Bq/m³]

測定地区	測定場所 (試料数)	屋内 (I)	屋外 (O)	I/O
三 徳	俵 原(1)	27.7 ± 1.9	23.8 ± 1.8	1.16
	合 谷(1)	19.4 ± 1.8	21.1 ± 1.8	0.92
竹 田	木地山(1)	21.5 ± 1.7	21.3 ± 1.7	1.01
	加 谷(1)	19.7 ± 1.7	18.9 ± 1.7	1.04
旭	柿 谷(1)	44.3 ± 2.1	25.6 ± 1.8	1.73
	曹源寺(1)	64.7 ± 3.3	28.0 ± 1.8	2.31
	下西谷(1)	48.1 ± 2.1	37.8 ± 2.0	1.27
	小河内(1)	30.4 ± 1.9	38.0 ± 2.0	0.80
	大 柿(14)	75.3 ± 0.7	49.8 ± 0.6	1.51
	坂 戸(1)	70.5 ± 2.4	65.1 ± 2.3	1.08
人形峠	動燃事務所付近(3)	—	16.6 ± 4.1	—
	鉍床露頭(5cm高)(1)	—	1703.0 ± 10.0	—
	鉍床露頭(70cm高)(1)	—	420.8 ± 5.4	—
三朝温泉街(6)		72.3 ± 1.2	52.5 ± 1.1	1.38
対照地区	東大阪(6)	17.4 ± 0.7	8.55 ± 0.61	2.03

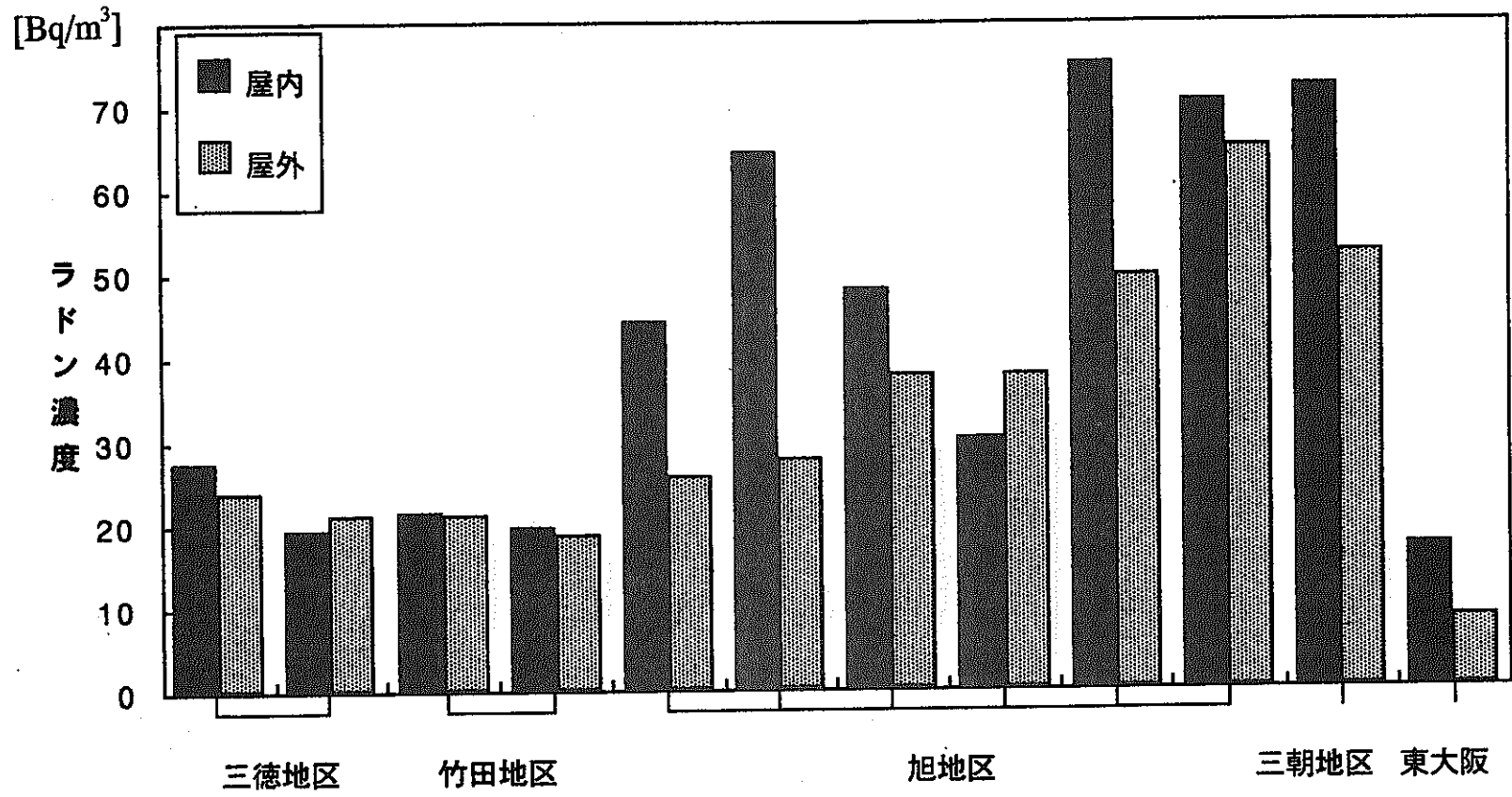


Fig.7 鳥取県三朝周辺地域における空气中ラドン濃度

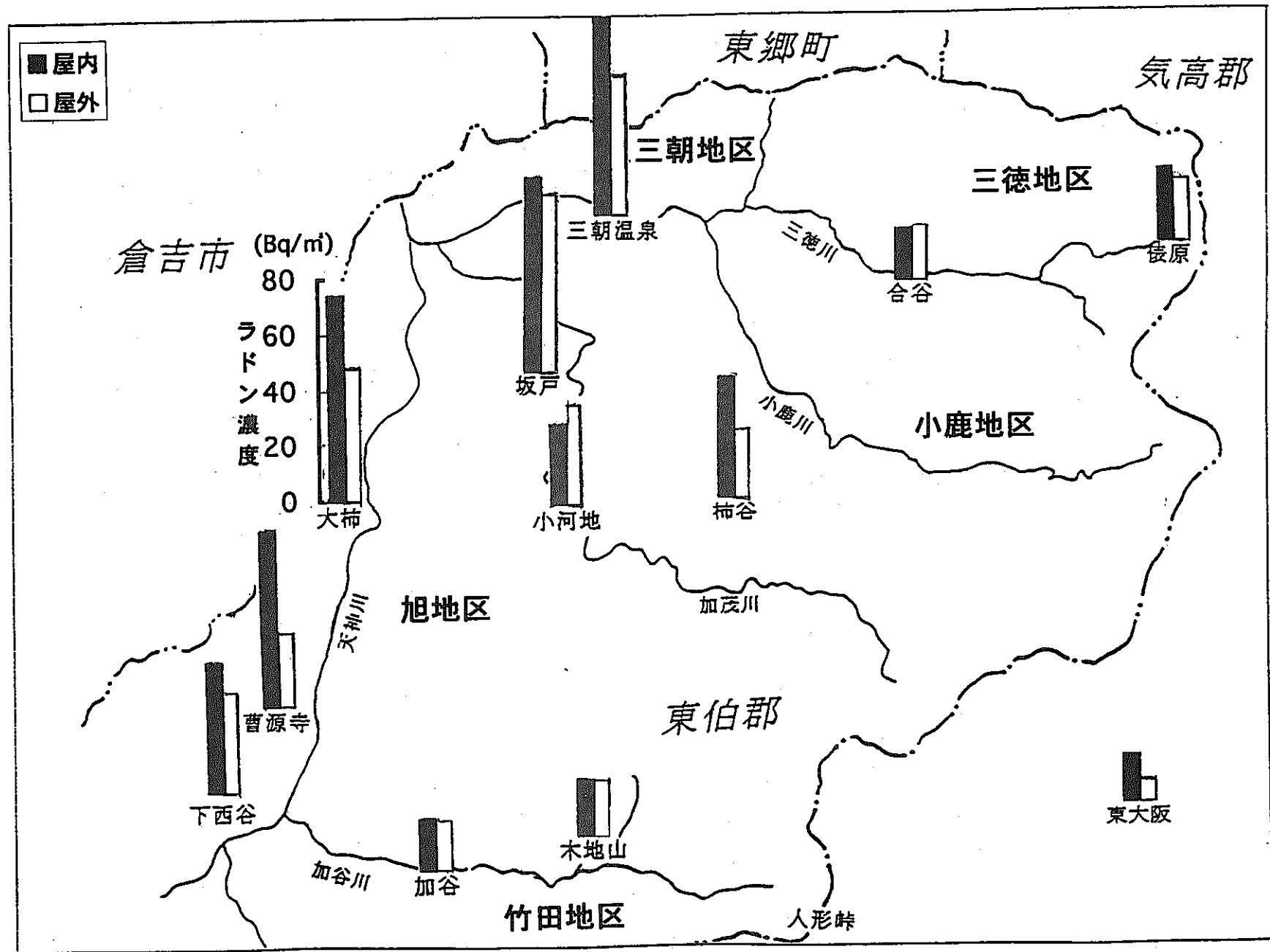


Fig.8 鳥取県三朝周辺地域における空气中ラドン濃度

Table 3 三朝周辺地域水中ラドン濃度

測定場所			水温(°C)	水中ラドン濃度 (Bq/ℓ)	
竹田	木地山	用水	15.0	ND	1994.10.13
	加谷	用水	15.0	ND	
三徳	合谷	用水	17.0	ND	
	俵原	用水	15.0	3.98 ± 0.35	
旭	下西谷	用水	15.0	ND	
	下西谷	天神川	17.5	ND	
	穴鴨	加谷川	18.0	ND	
	坂戸	用水	18.0	14.0 ± 0.60	
	小河内	用水	17.5	ND	
	大柿	用水	17.0	ND	
	湯谷橋	天神川	17.0	1.59 ± 0.29	
三朝	若鳥大橋	三徳川	18.0	7.54 ± 0.48	1995.2.12
	三朝中学北	賀茂川	18.0	2.28 ± 0.38	
	恋谷橋	三徳川	5.2	ND	
	大橋旅館前	三徳川	5.8	3.87 ± 0.24	
	大瀬国体橋	三徳川	6.2	1.25 ± 0.23	

Table 4 三朝周辺地域空間線量率

($\mu\text{Gy/h}$)

(1994.10.13~17)

測定地区	測定場所	屋内	屋外	屋内/屋外比
三徳	俵原	0.08	0.07	1.15
	合谷	0.09	0.07	1.21
竹田	木地山	0.09	0.10	0.85
	加谷	0.10	0.07	1.46
旭	柿谷	0.10	0.10	1.05
	曹源寺	—	0.09	—
	下西谷	0.11	0.11	1.00
	小河内	0.10	0.12	0.83
	大柿	0.12	0.12	1.00
	坂戸	0.12	0.10	1.20
対照地区	東大阪	0.09	0.08	1.13

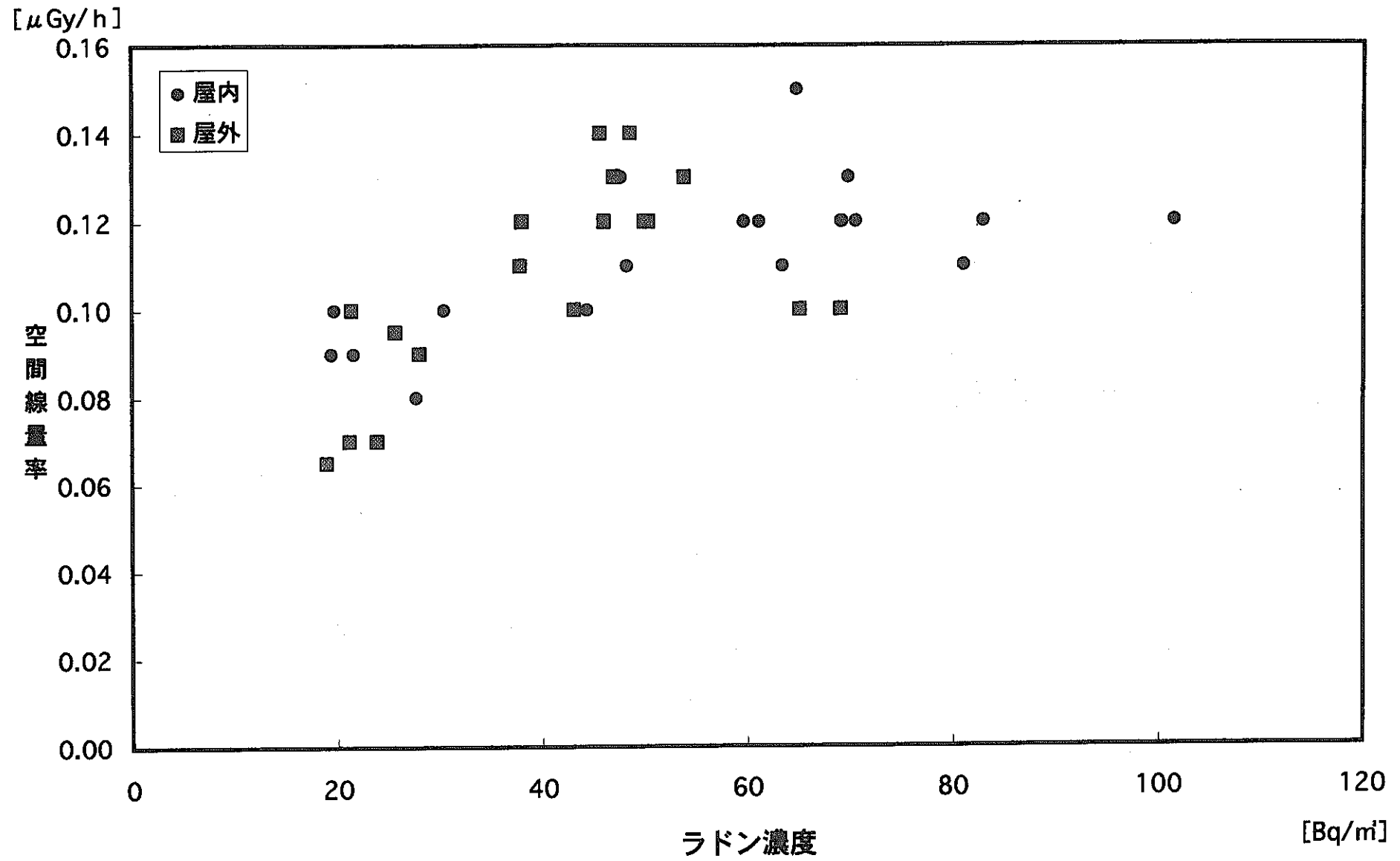


Fig.9 ラドン濃度と空間線量率の相関関係

3.3 三朝旭地区大柿におけるラドン濃度と野外空間線量

現在までの調査結果より、旭地区のラドン濃度が、他の地区よりも高いことが分かった。そこで旭地区内でもラドン濃度が高い大柿において、14軒の民家の屋内外ラドン濃度と野外空間線量の測定を行った。大柿は、西に山、東に天神川にはさまれた集落である。得られた結果を Table 5、Fig.10 に示した。これによると、屋内ラドン濃度は48~158 Bq/m³ であり、屋外では30~69 Bq/m³ の範囲に変動し、平均すると屋内で75.3 Bq/m³、屋外で49.8 Bq/m³ となり、三朝温泉街とほぼ同じ程度の値となった。東大阪を対照地区として平均値で比較すると4倍であったが、平均屋外ラドン濃度は6倍となり屋外に対する屋内のラドン濃度の比は1.5であった。

旭地区大柿における屋内外のラドン濃度は特に、屋外濃度において、三朝周辺地区においては高いレベルの地区であるが、この大柿地区内におけるラドン濃度レベルの変動に大きな分布傾向は見られなかった。空間線量率も0.11~0.15 μGy/h と対照地区の約1.5倍と、若干高かった。

3.4 三朝温泉街における空气中ラドン濃度

三朝温泉街の6ヶ所の温泉旅館などの屋内外及び浴室などのラドン濃度を測定した結果を Table 6、Fig.11 に示した。三朝温泉街の浴室内のラドン濃度は100~2233 Bq/m³、屋内では38~104 Bq/m³、屋外では39~72 Bq/m³ の範囲に変動し、今回の測定では浴室内の最高値2233 Bq/m³ は、東大阪の屋内ラドン濃度の130倍にもなったが、最低濃度 39 Bq/m³ は屋内ラドン濃度とほぼ一致しており、非常に巾広い変動分布している。屋内ラドン濃度の屋外に対する比も大きく変動し、屋内より屋外の方が高い結果を示した所もあり、泉源が屋外にある温泉あるいは生活様式の違い、比較的開放的な状況にあり、大きく変動していると思われる。

温泉水中のラドン濃度は、Table 6 に示した結果によると、48~1066 Bq/l で、最高値は最低値の20倍の変動巾があり、浴室内のラドン濃度と水中ラドン濃度に大きく影響しているものと思われる。温泉街旅館における浴室線量結果によると、測定器の変動巾10~20%を考慮に入れても、たばこや旅館、グンゼ等においては約倍の線量を示した。この2カ所は屋内ラドン濃度も高く浴室線量と良い相関を示している様に思われる。

Table 5 旭地区大柿におけるラドン濃度と空間線量率

No.	ラドン濃度 [Bq/m ³]			空間線量率 [μ Gy/h]	
	屋内	屋外	屋内/屋外	屋内	屋外
1	158.06 ± 3.43	43.02 ± 2.23	3.67	—	0.10
2	69.75 ± 2.55	46.88 ± 2.27	1.49	0.13	0.13
3	69.15 ± 2.53	48.43 ± 2.28	1.43	0.12	0.14
4	50.31 ± 2.19	30.43 ± 1.93	1.65	—	—
5	64.67 ± 2.47	53.73 ± 2.33	1.20	0.15	0.13
6	63.33 ± 2.44	45.54 ± 2.22	1.39	0.11	0.14
7	101.50 ± 2.84	59.23 ± 2.37	1.71	0.12	—
8	81.04 ± 2.71	69.06 ± 2.57	1.17	0.11	0.10
9	82.93 ± 2.75	54.17 ± 2.41	1.53	0.12	—
10	76.31 ± 2.56	49.84 ± 2.25	1.53	—	0.12
11	47.53 ± 2.21	45.92 ± 2.18	1.04	0.13	0.12
12	69.05 ± 2.44	50.25 ± 2.21	1.37	0.12	0.12
13	59.57 ± 2.34	56.25 ± 2.30	1.06	0.12	—
14	61.05 ± 3.30	44.57 ± 2.28	1.37	0.12	—
平均	75.30 ± 0.71	49.81 ± 0.61	1.54	0.12	0.12

Table 6 三朝温泉街における空気中および水中ラドン濃度

(1994.10.13~17)

測定場所	空気中ラドン濃度(Bq/m ³)			浴室内線量率 (μ Gy/h)	水温 ($^{\circ}$ C)	水中ラドン濃度 (Bq/l)
	屋内	屋外	浴室内			
中屋	75.06 \pm 2.49	71.97 \pm 2.45	99.42 \pm 2.75	—	37	181.2 \pm 1.83
グンゼ寮	104.0 \pm 3.0	60.22 \pm 2.52	1043 \pm 8	0.17	76	63.23 \pm 1.14
たばこや旅館	53.74 \pm 2.46	45.80 \pm 2.35	2233 \pm 12	0.2	44	1066 \pm 5.33
石湯	38.00 \pm 2.27	45.63 \pm 2.38	243.2 \pm 4.2	0.14	45	48.19 \pm 1.01
御船薬局	90.65 \pm 2.91	38.92 \pm 2.30	119.1 \pm 3.9	0.12	50	57.69 \pm 1.09
岡大病院	—	—	881.6 \pm 7.5	—	46	432 \pm 2.81
平均	72.28 \pm 1.18	52.51 \pm 1.07	769.8 \pm 2.9			

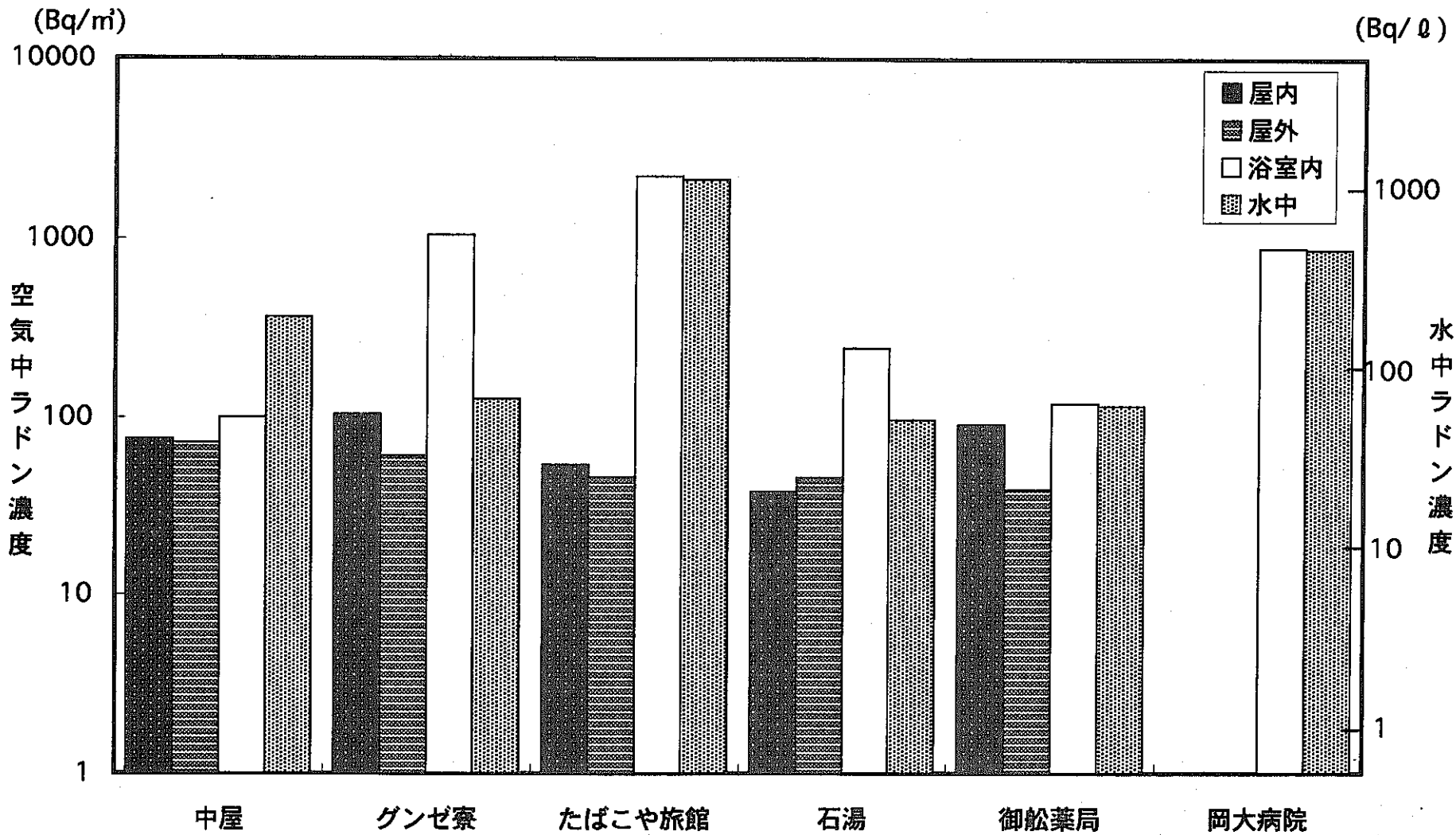


Fig.11 三朝温泉街ラドン濃度

3.5 東大阪における空气中ラドン濃度

対照地区（低自然放射線地域）として、東大阪市近畿大学原子力研究所内において、1994年7月より1995年2月における屋内外の空气中ラドン濃度測定を行い、その結果を Fig.12 に示したが、屋内外の空气中ラドン濃度とも月によって大きく変動している。

これによると、屋外の地表面より 0.05 m、1 m、13m（5F）の高さにおけるラドン濃度の違いは、試料数が少ないので、あまりはっきりと見られなかったが平均値で比較すると屋内ラドン濃度は屋外（地上1 m）における濃度より高く1.4倍であった。ラドンは土壌中のU崩壊生成核種 Ra-226 に起因し地表面から放出されるので、人形峠ウラン鉱床露頭発見の地での高さによる濃度は Table 2 に示したように、地表面 0.05m における空气中ラドン濃度は1700 Bq/m³、70cmの高さでの濃度は421 Bq/m³ と地表面の1/4で拡散され、希釈されている。東大阪ではラドン濃度が低いために明確な違いが見られなかったものと思われる。

倉庫などでの空气中のラドン濃度は、通常閉め切られていて換気がまったく行われていないために、三朝温泉街、屋内ラドン濃度に比べても3~4倍高い値になり、屋内のラドン濃度が、換気状態に大きく左右されるのが分かる。低レベルのバックグラウンドのラドン濃度は約2倍から4倍の変動巾があり、地表面での空气中のラドン濃度は最も大きい変動巾で約4倍であった。

3.6 土壌中 γ 線放射性核種分析

東大阪の1994年一年間の γ 線放射性核種濃度の平均値及び人形峠ウラン鉱床露頭発見の地の土壌中の放射性核種濃度と比較し、Table 7 に示した。これによると、Th 系列の放射性核種は東大阪で採取した土壌についても人形峠と同じレベルか、2~3倍高い値を示したが、U 系列の核種は人形峠が東大阪に比べて数倍もの濃度を示した。この場所のラドン濃度が大変高く、東大阪市の屋外のラドン濃度の地表面で175倍、43倍とウラン崩壊生成核種とよく相関しているが、より試料数を増やして検討したい。

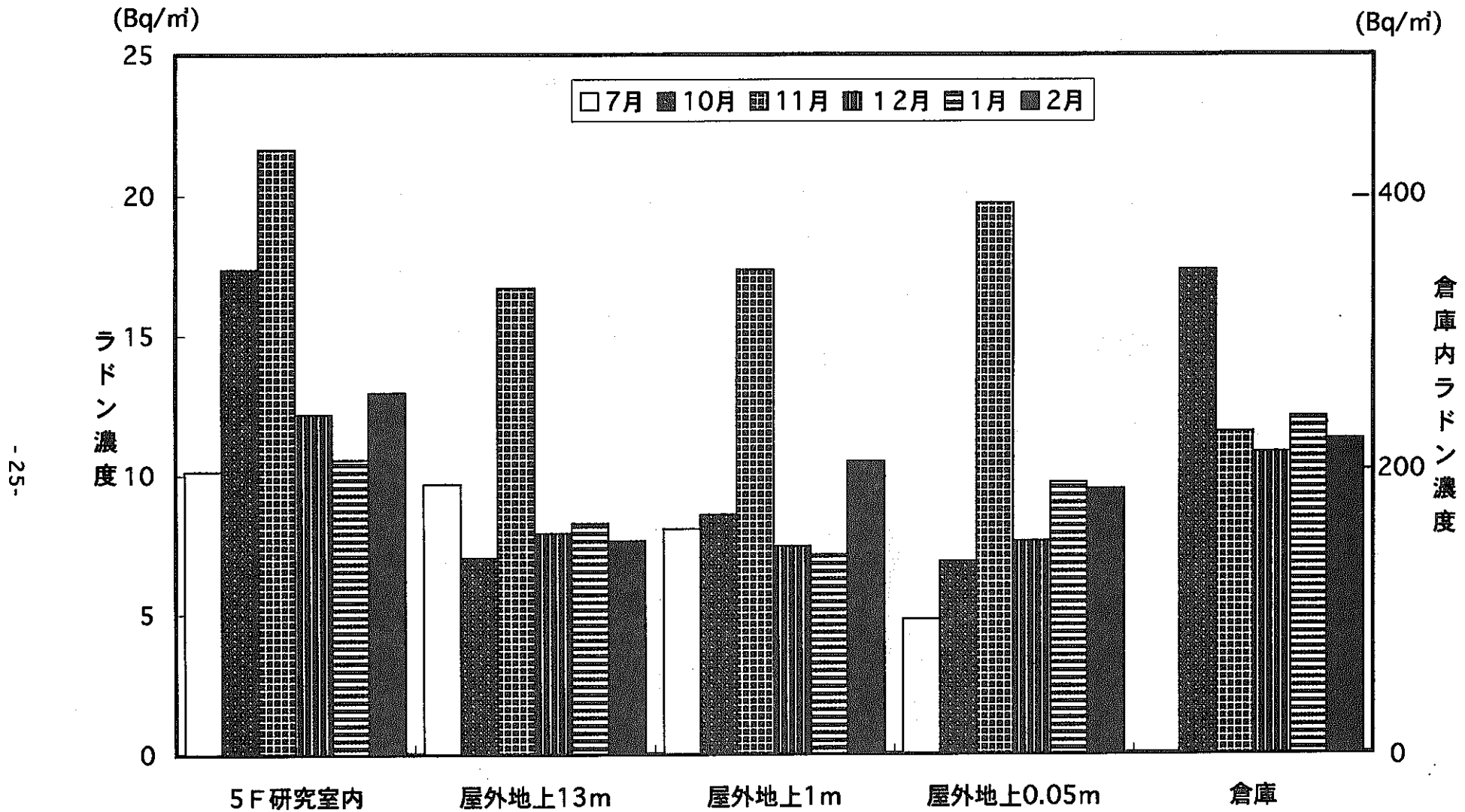


Fig.12 東大阪における空气中ラドン濃度

Table 7 人形峠と東大阪の土壌中 γ 線放射性核種濃度の比較

採取地		人形峠		東大阪	
		1994年 (平均値)			
核種					
K-40		413	$\pm 26^*$	695	$\pm 12^*$
Be-7		ND		ND	
Th系列	Pb-212	27	± 3	74.0	± 1.3
	Tl-208	13	± 3	58.0	± 1.8
	Ac-228	36	± 7	54.0	± 2.0
U系列	Pb-214	1410	± 11	42.0	± 1.0
	Bi-214	1210	± 9	25.0	± 1.0
	Ra-226	3293	± 51	73.0	± 9.3
Cs-137		ND		3.6	± 0.5

* 計数誤差 [Bq/kg]

4. まとめ

鳥取県三朝地区において、液体シンチレーションスペクトロメータ（パッカー社製 PICO-RAD システム）を使用して、空気中および水中ラドン濃度の測定を行い、次の結果を得た。

（1）標準ラドン濃度ガス 145 Bq/m^3 による、ピコラド検出器の標準校正の結果、校正係数即ち、標準ラドン濃度を計測値で割った値で示すと、0.92、10本の試料による変動係数（精度）は4%であった。ピコラド検出器を用いたラドン濃度測定において、液体シンチレータを現場でなく、28時間経過後に検出器に添加した場合でも校正係数1.07で補正すれば、回収直後に添加した場合と精度は6%とよく測定できる。最小検出限界は空気中のラドン濃度で測定時間200分では 1.7 Bq/m^3 である。

（2）三朝周辺地域における空気中ラドン濃度は、三朝温泉街と旭地区が高く、その他の地区においては東大阪の約2倍程度のラドン濃度で、屋外濃度より屋内濃度の方が高かった。三朝周辺地区では屋内ラドン濃度は $19\sim 158 \text{ Bq/m}^3$ 、屋外ラドン濃度は $19\sim 69 \text{ Bq/m}^3$ の範囲で変動した。温泉街ではそれぞれ $38\sim 104 \text{ Bq/m}^3$ 、 $39\sim 72 \text{ Bq/m}^3$ で、特に温泉街の浴室内のラドン濃度は $100\sim 2200 \text{ Bq/m}^3$ と高く、変動巾が大きく温泉源の水中ラドン濃度および換気などにも大きく影響されている。

（3）温泉水中ラドン濃度は $48\sim 1066 \text{ Bq/l}$ 、三徳川および用水路など水中のラドン濃度は $1.3\sim 14 \text{ Bq/l}$ の範囲に変動している。

5. 参考文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) 1988, 1993 Reports, "Sources, effect and risks of ionizing radiation", United Nations, New York (1988, 1993).
- 2) 御船政明 ; 三朝温泉地環境の自然放射能について、放医研環境セミナーシリーズ No.15、生活環境におけるラドン濃度とそのリスク (実業広報社) 、259-269 (1987)
- 3) 放射線医学総合研究所、放射線とその人間への影響 (国連科学委員会 1982年報告)、テクノプロジェクト (1984) .
- 4) 岡部 茂 ; 1 自然界のラドン族に関する概論、続大気中のラドン族と環境放射能、1-16 (1990) .
- 5) 辻本 忠 ; 制御可能な自然放射線に対する放射線防護に関する研究、平成6年度科学研究費補助金研究成果報告書、2-28(1995)
- 6) 放射線審議会基本部会 ; 放射線審議会基本部会ラドン報告書-ラドン、トロンとその娘核種の発生と測定(1991)
- 7) 山崎 直、飯田孝夫、下 道国、池辺幸正 ; 屋外ラドンおよびラドン娘核種濃度の連続測定、保健物理、30、149-154(1995).
- 8) 山崎 直、飯田孝夫、下 道国、池辺幸正 ; 昼間と夜間のラドン、トロン娘核種濃度差、Radioisotopes、44、251-255(1995)
- 9) 藤波直人、江坂 忍 ; 舞鶴市大気中ラドン濃度変動、保健物理、26、127-128 (1991)
- 10) 下 道国、飯田孝夫 ; ラドン・トロンとその娘核種－測定法の現状と課題－、JCAC、No.18、12~29(1990).
- 11) 松本 譲、石橋健夫 他 ; 標準 γ 線を用いた室内ラドン濃度測定用電離箱の較正法、続大気中のラドン族と環境放射能、53-63(1990).
- 12) 下 道国、飯田孝夫 ; ラドンとその娘核種の総合比較、続大気中のラドン続と環境放射能、113-118(1990).
- 13) Bernard L. Cohen ; Relationship between exposure to radon and various types of cancer ; Health Physics , 65(5), 529-531(1993)

- 14) G. Igarashi, S. Saeki et al., ; Ground-water radon anomaly before the Kobe earthquake in Japan, *Science*, 269, 60-61, 7 July (1995)
- 15) 下 道国、飯田孝夫 ; ラドンとその娘核種の測定法、放射線、17(2)、6-27 (1991)
- 16) J. W. Thomas, P. C. LeClare ; A study of the two-filter method for Rn, *Health Physics*, 18(2), 113-122(1970).
- 17) 下 道国 ; ZnS(Ag) シンチレーション検出器を用いたフィルター法における測定効率、保健物理、23(3)、209-215(1988).
- 18) 下 道国、池辺幸正、前田 淳、上村力也、林 叶、石黒 明 ; 活性炭を用いた空气中ラドンの測定法—実用上の基礎的検討—、日本原子力学会誌、25(7)、562-570(1983).
- 19) 御船政明、御船正樹 ; 液体シンチレーションカウンターを用いた Rn-222 濃度計算の電算化の試み、温泉工学会誌、21(1)、1-4(1987).
- 20) 堀内公子、鉱泉中ラドンの抽出—液体シンチレーションカウンターによる新定量法について、温泉工学会誌、13(2)、95-103(1978).
- 21) 堀内公子、石井 忠、村上悠紀雄 ; 伊豆半島温泉群のラドン、トロン、ラジウムの同時定量について、温泉科学 (日本温泉科学会誌) 、30(2)、84-89(1979).
- 22) Kimiko Horiuchi, Yukio Murakami ; Determination of Radon in Soil gas by opened counting vial and liquid scintillation counter, *Chemistry Letters (The Chemical Society of Japan)*, 159-162(1983).
- 23) K. Horiuchi, Y. Murakami ; A new method for the determination of in soil air by the "Open vial" and integral counting with a liquid Scintillation counter, *J. of Radioanalytical Chemistry*, 80(1-2), 153-163(1983).
- 24) 山本正隆、半田 茂、中西 孝 ; 固体飛跡検出器 CR-39 による屋内ラドン濃度測定、続大気中のラドン族と環境放射能、221-228(1990)
- 25) 飯田孝夫 ; 固体飛跡検出器を用いたラドンの濃度測定法、'放射線科学'、27(12)、217-220(1984).