

# 施設内気中放射性エアゾルの 挙動についての研究

On the behaviour of radioactive  
aerosols in the air  
inside nuclear facilities

1980年5月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

1980年5月

## 施設内気中放射性エアロゾルの挙動についての研究

委託責任者	平山昭生	*
受託責任者	池辺幸正	**
報告者	飯田孝夫	**
	下道国	**
	中島敬行	**
	永井英男	**
	加藤隆夫	**
	鬼頭修	**
	山本誠一	**
	吉田守	***

調査期間 1979年6月～1980年3月

### 要旨

プルトニウム取扱い区域の作業環境で使用している $\alpha$ 線用サーベイメーターやHFCモニタがプルトニウム汚染以外の偽計数を示すことがしばしば起っている。この偽計数の発生原因の一部は、RaA<sup>+</sup>捕集機構で説明できたが（前年度委託研究），靴底の偽計数その他説明できない問題も残された。そこで、この偽計数の発生原因を更に解明し、併せて施設内の放射能モニタリングや施設の換気系の設計に際しての基礎的な参考資料を提供することも目的として、

1. 偽計数の発生条件
2. 靴底の汚染機構の解明
3. トランク・ディテクタによるRn測定法
4. 気中放射能の性状と換気
5.  $\alpha$ 核種イメージグラフの製作

などに関する研究を行なった。

\* 放射線第1課長

\*\* 名古屋大学工学部原子核工学科

\*\*\* 放射線第1課員

## 目 次

第 1 章 概 説 .....	1
1. はじめに .....	1
2. 研究結果の概要 .....	1
2-1 ラドン娘核種の放射平衡比 .....	1
2-2 ト ラ ッ ク 法 による 測 定 .....	2
2-3 偽計数の発生機構 .....	2
2-4 $\alpha$ 核種イメージグラフの製作 .....	2
3. 結 び .....	2
第 2 章 施設内放射性物質の性状と挙動 .....	4
A. ラドン娘核種の放射平衡比 .....	4
1. はじめに .....	4
2. 測 定 .....	5
2-1. 測定の場所と期間 .....	5
2-2. 測 定 装 置 .....	5
2-3. 測 定 方 法 .....	7
2-4. $\alpha$ 線ピークの評価 .....	7
3. Rn娘核種濃度の計算 .....	7
3-1. 捕集, 測定中の微分方程式 .....	8
3-2. Rn娘核種濃度の計算式 .....	9
4. 測 定 結 果 .....	12
5. Rn娘核種の挙動の解析 .....	16
5-1. モデルを考慮に入れた因子 .....	16
5-2. 方程式とその解 .....	16
5-3. 考 察 .....	17
5-4. 前回の測定結果との関連 .....	17
6. 問題点と今後の課題 .....	19
6-1. 測定上の問題点 .....	19
6-2. 結果における問題点 .....	19
6-3. 解析上での問題点 .....	19
6-4. 今後の課題 .....	19
7. 結 び .....	20
付 錄 .....	21
B. ト ラ ッ ク 法 による 測 定 .....	23
1. はじめに .....	23
2. $\alpha$ -ト ラ ッ ク 法 .....	23
2-1. フィルムの構造とエッチング理論 .....	24
2-2. エッチング方法と検出効率 .....	25

2-3. 減速材の厚さの決定 .....	26
3. $^{222}\text{Rn}$ 放射能の測定 .....	28
3-1. 測定装置 .....	28
3-2. 基礎特性 .....	29
3-3. 基礎特性についての検討 .....	32
3-4. $^{222}\text{Rn}$ 濃度測定 .....	33
4. RaA付着量の測定 .....	33
4-1. 床や壁へのRaAの沈着 .....	33
4-2. 静電場に依るRaAの付着 .....	34
5. 結び .....	34
 第3章 偽計数の発生機構 .....	36
1. はじめに .....	36
2. 偽計数の発生条件 .....	36
2-1. RaA原子の帶電率 .....	36
2-2. 静電場強度の違いによるRn娘核種の捕集効率 .....	38
2-3. 静電場によるRaA+以外の核種の捕集 .....	40
2-4. 風速と捕集容積 .....	40
2-5. エアロゾル数とRn娘核種の捕集効率 .....	41
3. 靴底に発生する偽計数の模擬実験 .....	42
3-1. 靴底の偽計数の発生モデル .....	42
3-2. 靴底の静電場によるRn娘核種の捕集 .....	43
3-3. 床に沈着したRn娘核種の靴底への移動 .....	45
4. 静電場と $\alpha$ 計数の測定 .....	46
4-1. 測定法及び測定部位 .....	46
4-2. 測定結果 .....	48
4-3. 検討 .....	49
5. 靴底の偽計数の発生機構 .....	49
5-1. 発生機構 .....	49
5-2. 対策 .....	50
6. 結び .....	50
 第4章 放射能測定器の開発 .....	52
A. $\alpha$ 核種イメージグラフの製作 .....	52
1. はじめに .....	52
2. イメージグラフの製作 .....	52
2-1. イメージグラフの動作原理 .....	52
2-2. イメージグラフ製作上の問題点 .....	53
2-3. イメージグラフの設計と製作 .....	55
3. イメージグラフによる $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影 .....	55

3 - 1. $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影方法 .....	55
3 - 2. $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影結果 .....	56
4. 考 察 .....	57
4 - 1. バックグラウンド光 .....	57
4 - 2. イメージグラフ出力面での $\alpha$ 線による発光量の相違 .....	57
4 - 3. イメージグラフとオートラジオグラフの感度の比較 .....	58
4 - 4. 接写ボラロイドカメラと標準レンズに接写リングを 装置したカメラによる写真の感度の比較 .....	59
4 - 5. イメージグラフによる $\text{Rn}$ 娘核種の撮影 .....	60
5. 結 び .....	61
B. 気中ラドンモニタの製作 .....	62
1. モニタ製作の意義 .....	62
2. 概念設計 .....	62
2 - 1. 通気式電離箱 .....	62
2 - 2. 測定系 .....	63
3. 本モニタの特徴と適用範囲 .....	64

# 第1章 概 説

## 1. は じ め に

動燃東海事業所の使用済燃料両処理施設やプルトニウム燃料開発施設内で、Pu汚染が起っていないのに $\alpha$ 用サーベイメータやHFCモニタで異常計数されることがある。この偽計数は、着衣、グローブボックス、靴底に冬季に多発しているが、発生状況は明確でなく、また発生時の予測は困難である。このため作業現場や放管では、プルトニウムであるかどうかの判定のためのモニタリングや、除染等の作業を行っている。このための作業量は無視出来ない状況にあり、また被曝の安全管理上、原因究明が望まれている。

この偽計数の発生原因を解明することを目的として、昭和54年度に次の様な研究の立案を行った。偽計数の発生原因としては、気中の自然放射能が何らかの過程を経て被検体に付着して濃縮されたものと考えられる。そこで建屋内の自然放射能（ラドンとその娘核種）の濃度、性状、および挙動などの基本的状態を把握することを試みる。次に偽計数の発生に至るまでの過程を種々想定し、その可能性を追求してみる。以上の立案に基づいて、54年度には建屋内の放射能の基本的状態の把握に努め、また発生過程については静電場に着目して、グローブボックスや着衣については発生の過程をほぼ明らかにした。

本年度も引き続き上記立案に基づいて次の研究を行なった。先ず建屋内放射能の基本的状態を知るため、前年度の測定には欠けていた、Rnの娘核種の放射平衡比の測定を行った（第2章A）。また、施設内の放射能濃度の不均一さや、Rn娘核種の壁や床面などへの沈着速度を知ることが原因解明のうえ役に立つことに着目して、両者に共通の技術を提供するトラック法による $\alpha$ 放射能測定法について基礎的検討を加え、この技術を用いて予備的測定を行った（第2章B）。

次に偽計数の発生過程については、前年度に未解決であった靴底の偽計数発生機構解明を主目的として研究を進めた（第3章）。最初に静電場によるRn娘核種の捕集効率への環境諸因子の影響を定量的に調べた。次に靴底の偽計数の発生モデルを考え、模擬実験を行った。最後に、Pu燃料施設内の偽計数の発生が報告されている場所で、静電場と $\alpha$ 放射能を実測した。その測定結果に基づいて、靴底の偽計数の発生機構を考察した。

以上の研究に加えて今年度は、上述の原因究明及び放射線管理に有用と思われる放射能測定器の開発を行った。先ずPuO<sub>2</sub>粒子の検出時間の短縮を目的に、二次元像増巾器（イメージインテンシファイア）を用いた $\alpha$ 線位置検出器を試作した。この検出器でPuO<sub>2</sub>粒子の撮影を行い、撮影時間と像の大きさの関係及び検出限界を調べた。さらにRn娘核種の撮影が可能かどうか実験を行った（第4章A）。また自然の低濃度領域においてRn濃度を連続自動測定することを目的として、大型連続通気式電離箱を使用した気中ラドンモニターの概念設計を行った（第4章B）。

## 2. 研究結果の概要

### 2-1 ラドン娘核種の放射平衡比（第2章A）

建屋内の自然放射性物質についての基本的量の1つとして、<sup>222</sup>Rnの短寿命娘核種（RaA, RaB, 及びRaC）の濃度を測定し、それらの間の放射平衡比を求めた。測定はMartzらの方法に拠った。測定の結果、プル燃の建屋内における濃度の平均値は、RaAが145, RaBが41, RaCが15 pCi·m<sup>-3</sup>であり、放射平衡比は1:0.28:0.11であった。

次に建屋内を一つの室（Compartment）と見なし、娘核種の挙動（生成・消滅、換気による外気からの供給、壁や床面への沈着など）を記述する方程式を立てて、上述の測定結果を解析した。その結果換気が重要な役割を果していること、沈着は考慮しなくともよいことなどが明らかになった。

なお、プル燃内のA-107室とA-110室の気中濃度が数倍も異なる（後者が高濃度）という測定値を得た。この差異は、後述するように、靴の $\alpha$ 汚染の発生の有無を左右する要因となり得るものである。

## 2-2 ト ラック法による測定(第2章B)

硝酸セルロースフィルム( Kodak 社, LR115-TYPE II )に $\alpha$ 線が与える潜像を、エッチングによって目に見える像エッチャピットとして計数した。最適エッチング条件は、2.5 N NaOH 溶液を用いて60°C 130分であった。RaA の $\alpha$ 線によって効率よく潜像が出来るように、フィルムと線源の間に減速材を入れた。実験と計算によって、最適な減速材の厚さ 4.5 mg/cm<sup>2</sup> を決定した。この場合のト ラックの検出効率(=エッチャピット密度/潜像密度)は 0.75 であった。このエッチング技術を用いて気中 Rn 濃度を測定するために、RaA イオン捕集容器を作成し、種々の基礎特性を調べたが、捕集効率のばらつきが大きく、器差も認められ、今後に問題を残した。

次に、フィルムを壁や床面に貼付して、フィルムに沈着した RaA のト ラックを調べることにより、RaA の沈着速度を評価することを試みた。壁や床面が電位をもたない通常の条件下については、測定をおお経続中であるが、電位をもった机への沈着速度の測定結果は、サーベイメータを用いた測定結果と良く一致した。

## 2-3 偽計数の発生機構(第3章)

静電場によって Rn 娘核種が被検体などに濃縮する機構を定量的に知るため、環境因子が捕集に及ぼす影響を調べた。先ず静電場強度と RaA 原子の帶電率の関係を実験的に求め、静電場によって捕集される RaA<sup>+</sup> の割合を定量的に計算できるようにした。さらに、エアロゾルや空気の流れがあると、静電場による RaA<sup>+</sup> の捕集が妨げられることを実験及び計算で示した。

靴底の偽計数発生機構については、先ず予想されるモデルを考え、そのモデルによる発生の可能性を検討した。第1番目のモデルは、気中の娘核種が歩行中に靴底の負の帶電部位である土踏まずに静電場で捕集される機構であるが、この機構について計算及び模擬実験を行って検討した結果、この機構は否定された。第2番目のモデルは、一度床に沈着した娘核種が靴底に移動して蓄積されるという機構である。いくつかの仮定をおいて試算してみると、この過程による偽計数の発生は(仮定が正しければ)数値的にはありうる機構であった。しかし、床面から靴底への移行の割合について模擬実験を行ったところ、土踏まずへの娘核種の蓄積効果は全く認められず、移行についての仮定が正しくないことが証明された。

靴底の偽計数の発生過程を知るための手段の一つとして、現場の状況を調査することは有効と思われる。静電場と $\alpha$ 計数の測定を行ったところ、非常に貴重な資料が得られた。即ち机及び椅子の足乗せのうち、塗装を施してあるものに、強い負電位と $\alpha$ 計数が認められた。作業従事者の大多数は足乗せを用い、靴床でこれを擦る動作は、足乗せの負の帶電量を増大させると同時に、集められた Rn 娘核種を靴底の土踏まずに移動させる働きを兼ねている。このように、靴底の偽計数発生機構は、他の部位に静電的に捕集濃縮された Rn 娘核種が、靴底へ移動するという間接的過程であることが判明した。このことにより、偽計数を減らす効護策として、負の帶電部位をつくらないこと、具体的には塗装を用いないことが挙げられる。

## 2-4 $\alpha$ 核種イメージグラフの製作(第4章A)

PuO<sub>2</sub>粒子の検出時間の短縮を目的に、二次元像増幅器(ITT社製、F4747)を用いた、 $\alpha$ 線位置検出器を試作した。この検出器は、ZnS 蛍光膜、光電面、マイクロチャネルプレート(MCP)、及び蛍光面で構成されている。この検出器を用いて PuO<sub>2</sub> 粒子の撮影を行った結果、従来のオートラジオグラフの検出時間を約 1/2 に短縮できた。製作上問題となつた二次元像増幅器のバックグランド光も、実際の検出には支障の無いことが分った。またトライXフィルムを用いることによって、この検出器により Rn 娘核種の位置検出も行なうことが出来た。このことは、この検出器で1本の $\alpha$ 線の入射に対しても位置検出が可能であることを示している。

## 3. 結 び

この研究は $\alpha$ サーベイやHFC モニターの偽計数の原因究明を目的として行われ、一応の成果を得た。即ち今年度は靴底の偽計数発生過程を知ることが出来、前年度解明出来た着衣やグローブボックスの偽計数発生機構と同様、静電気による気中放射能の捕集濃縮が関与していることがわかった。しかし偽計数発生のもう一つの要因である Rn 濃度については新たな

疑問を生じた。即ち、普通のRn濃度( $100 \text{ pCi}/\text{m}^3$ )程度では偽計数は殆んど発生しないと見積られ、A-110 工程管理室のように他の部屋より1桁近く高濃度の場所で始めて偽計数が発生する要因が満される。しかし何故建屋内でRn濃度の不均一を生じているのか、今後に大きい課題を残した。

この外、以下の事項が将来の課題として残された。(2-1)に関しては、放射能挙動について前年度とよく一致しないところがある。これは各因子の同時測定を行っていないためであり、今後、挙動に関連する全ての因子の同時測定を行って、挙動を正確に把握する必要がある。(2-2)に関しては、Rn娘核種捕集装置を改良し、簡便に多点のRn濃度を測定する手法を確立する必要があり、この手法を上述の建屋内のRn濃度不均一性についての測定に用いることは有効と思われる。また(2-4)で述べた $\alpha$ 核種イメージグラフは、改良によって性能の向上が可能であると思われ、今後有望な位置検出器として期待される。

最後にこの研究に終始御協力をいただいた動燃東海事業所安全管理部の福田整士部長、中田啓課長に御礼申し上げる。また現場での測定に御協力をいただいた現場の方々にお礼申し上げる。

( 池辺幸正 )

## 第2章 施設内放射性物質の性状と挙動

### A. ラドン娘核種の放射平衡比

#### 1 はじめに

本章では建屋内の自然放射能の挙動（発生、空気中の動きや性質・状態の変化、拡散や沈着等）を知る1つの情報として、<sup>222</sup>Rn 短寿命娘核種（以下、Rn 娘核種と記す）であるRaA、RaB、RaC の濃度を測定し、それらの間の放射平衡比を求めることを目的としている。また、単純なモデルを基に、建屋内での Rn 娘核種の状態を表わす微分方程式を立てて、それらの挙動を担う換気率、沈着率等について検討する。

このことは次のような意義に立脚するものと考えている。第1にプルトニウム燃料工場（プル燃）においては、安全管理上、所定の場所以外にプルトニウムが漏洩することを絶対に防止しなければならない。このことを監視する上で、プルトニウムを適確に測定しうることが不可欠であるが、建屋内気中の Rn 娘核種が単にバックグラウンドとしてのみならず、偽計数として測定されることがあり、モニタリング上の重大な問題となっている。この点を解決するために室内における Rn 娘核種の挙動を解明する必要がある。

第2に、我々は建屋外よりも建屋内（地下街なども含む）で生活している時間の方がかなり長いが、建屋内における自然放射能の性状は外気とは様子が異なっている。その原因は建屋の構造、換気の有無、構造組材、仕上げなどの違いのほか、構造材からの Rn の発生があることなどによる。換気等により内部の空気が外気と通じている場合には外気の影響を受けるし、再循環等の手段が講じてある場合には内部の壁、床から発生する Rn を主体に考えていかねばならない。従って、建屋内で生活している人間に対する自然放射能の影響を考える際にも、建屋内部における放射性物質の濃度や性状、挙動について十分調査し、現象を解明していく必要がある。しかしながらこのような調査・研究は端緒に着いたばかりで、今までに殆んど行なわれていないと言って過言ではない。

以上のように施設内における放射能のモニタリングのためのバックグラウンドを知るため、あるいは清浄な部屋を設置するためばかりでなく、人間に及ぼす影響を評価するためにも室内の放射能の挙動を明確にしておくことは重要である。

本研究で着目している Rn およびその娘核種の崩壊系列を図 2-1 に示す。RaD は半減期が 2.04 年であるため気中濃

#### Decay Scheme

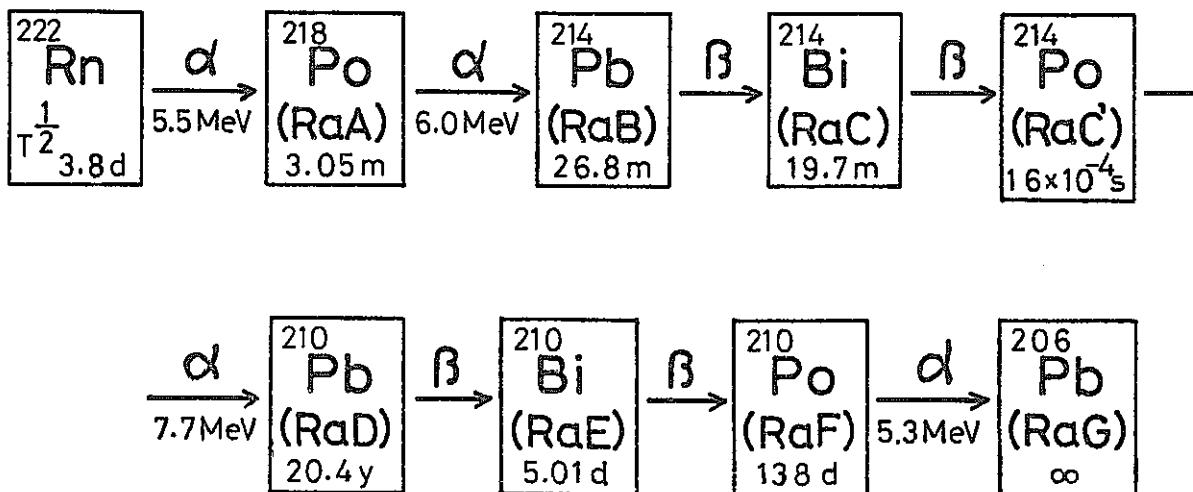


図 2-1 ラドン系列の崩壊図

度が他の短寿命核種よりかなり低く、従って本研究ではそれ以後の核種については取り上げず、短寿命核種に限ることにする。

ここで、前年度に行なわれた研究との関連を記しておく。

前年度では、①Rn 濃度、②Rn 娘核種濃度（RaA, RaB, RaC の放射平衡を仮定）、③RaA の単体成分の割合、④RaA 単体成分の内で帶電成分の割合、⑤エアロゾル数濃度、⑥エアロゾル半径の諸量を測定した。これらをある簡単なモデルの下で解析し、次のような結果を得た。即ち、①Rn と RaA の間の放射平衡は成立していない ( $RaA/Rn = 0.61$  : 実測)、②RaA, RaB, RaC の間でも放射平衡は成立していない、という 2 点であった。これを説明するには、①付着・沈着等による除去はない ( $\gamma = 0$ )、②部屋 (A-107) の換気回数は 4 回/h である ( $\nu = 4$ )、③プレフィルタの除去効率は 0.6 ( $\xi = 0.4$ ) であるなどの仮定が必要であった。これらの仮定には妥当なものもあれば、若干問題と思われるものがある。

今回の目的は Rn 娘核種間の放射平衡比を測定し、上述の結果について検証していくことがある。

なお、前年度の成果は動力炉・核燃料開発事業団受託研究報告書「施設内気中放射性エアロゾルの挙動についての研究」にまとめられている。<sup>(1)</sup>

## 2 測 定

### 2-1 測定の場所と期間

測定の場所は図 2-2 に示されているとおり、プル燃の A-107 と A-110 である。ここは空調設備が完備され、常時換気が行なわれているので、換気率が一定のため放射能は定常状態にあると考えられる。

測定の期間は 1980 年 1 月 22 日～25 日であった。

### 2-2 測定装置

図 2-3 に示すような測定系で測定したが、以下にその装置について述べる。

#### (1) フィルタ

本研究では、サンプリング用のフィルタにミリボア・フィルタ RA (孔径 1.2  $\mu\text{m}$ ) を使用した。捕集効率は池辺ら<sup>(2)</sup>

A-107 検査室, A-108 X 線室, A-109a X 線判定室, A-109b X 線制御室  
A-110 工程管理室, A-111 暗室, A-112 暗室, A-116 金相室

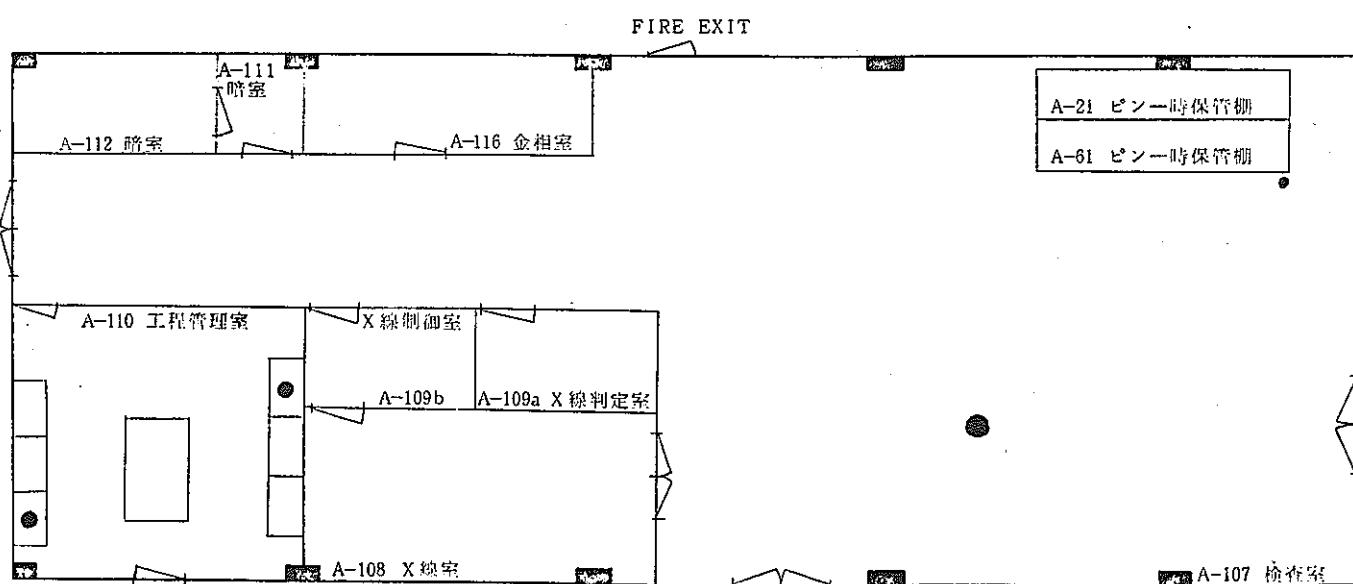


図 2-2 プル燃工場の測定場所

Experimental Arrangement	<p>Air Intake → Flow Meter → Filter Holder → Pump → SSD → P.H.A.</p> <p>Sampling time : 15 min Waiting time : 1~3 min Counting time : <math>t_1 \sim t_2</math> (1), <math>t_2 \sim t_3</math> (2)</p>
Calculation	<p>(1) </p> $C_{BC} = KQ_B + LQ_C \quad Q_A = F C_A \quad \dots(2-3)$ $= Q_B (K + L \frac{Q_C}{Q_B}) \quad Q_B = \frac{C_{BC}}{K + L Z} \quad \dots(2-4)$ <p>(2) </p> $C'_{BC} = M Q_B + N Q_C \quad Q_C = Q_B Z \quad \dots(2-6)$ $= Q_B (M + N \frac{Q_C}{Q_B}) \quad \dots(2-5) \quad Q_C = Q_B Z \quad \dots(2-7)$

図 2-3 測定方法の概念図と RaA, RaB および RaC 濃度の計算式

日野<sup>(3)</sup>の、発現効率は James<sup>(4)</sup>の結果

を参考にして各々 1.0, 0.96 とした。

## (2) 半導体検出器 (SSD)

$\alpha$  放射線の測定には  $39 \text{ mm}\phi$  の Si surface barrier-type detector を使用した。この分解能は  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  線に対して約 2.3 % であった。

計数効率は次のようにして求めた。

標準  $^{226}\text{Ra}$  溶液から発生させた Rn を大型容器 (約  $1 \text{ m}^3$ ) に封入し、そこから約 2 分間 Rn 娘核種を捕集したフィルタを SSD とグリッドチェンバ (GIC) とで交互に数回測定した。GIC の計数効率を 0.5 と仮定すると、SSD の効率が定まる。図 2-4 でわかるように、測定点を結ぶと片対数グラフ上ではほぼ直線となる。この直線を次式で表わす。

$$\log_{10} C = \log_{10} A + (B \log_{10} e) t \quad (2-1)$$

但し、C : 測定された計数

A, B : 定数

t : 経過時間

である。今、定数 A, B を実測から求めておくと (今回分割和法を用いる)、任意の時間 t での SSD と GIC のカウント数の比から SSD の計数効率が求まる。以上の結果 SSD の計数効率は

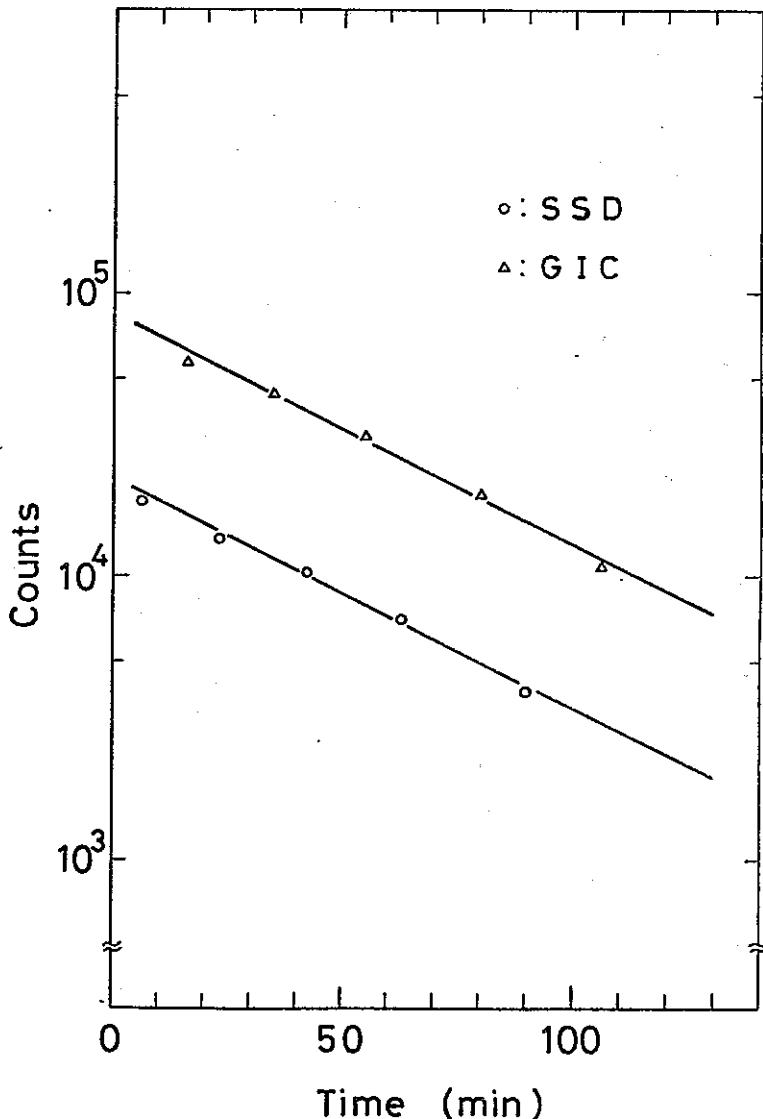


図 2-4 SSD の計数効率を求めるための、フィルタに集めた Rn 娘核種の実測減衰曲線。

$0.13 \pm 0.0086$  となった。

また、SSD の計数効率について  $\alpha$  線エネルギー依存性のないことを前もって確認した。

なお、捕集された Rn 娘核種がフィルタから離脱しないかという疑問に対しても、同一のフィルタを数回計測しても（その間幾度か真空引きしている）崩壊曲線に乗っていることから、離脱による減少はないものと考えられる。

### (3) 流量計

浮遊式流量計（理化精機工業）を使用した。

## 2-3 測定方法

測定系は図 2-3 に示した通りである。まず、エアポンプで引かれた試料空気は流量計を通ってフィルタに導かれ（ミリポア・フィルタ RA を使用すると流量率は  $\sim 70 \ell \cdot \text{min}^{-1}$ ），そのフィルタ表面上に Rn 娘核種が 15 分間捕集される（フリー成分、エアロゾル成分ともほぼ 100% 捕集される）。捕集された Rn 娘核種の内、RaA と RaC' から放出される  $\alpha$  線を SSD で計数し、波高分析を行なう。この時、同一の捕集フィルタについて 2 回計数する。それ故、2 種類の波高分布が得られることになる（図 2-3 の(1), (2)）。

ここで、RaA (6.00 MeV) と RaC' (7.68 MeV) の  $\alpha$  線エネルギーが異なるので、最初の計数 ( $t_1 \sim t_2$ ) による波高分布は RaA と RaC' の  $\alpha$  線によるピークが現われる（図 2-3 の(1)）。次の計数 ( $t_2 \sim t_3$ ) が始まるまでの時間を RaA の半減期（3.05 分）より十分長く取っておくので、2 回目の波高分布には RaA の  $\alpha$  線ピークはもはや現われず、RaC' の  $\alpha$  線ピークだけが出現する（図 2-3 の(2)）。これら 2 つの波高分布から RaA, RaB および RaC の放射能濃度を求める。方法は次節で述べる。

なお、RaC' の半減期は  $1.66 \times 10^{-4} \text{ s}$  と極めて短かいので、RaC' から放出される  $\alpha$  線を RaC' から放出されるとして扱うこととする。

## 2-4 $\alpha$ 線ピークの評価

測定された 2 種の波高分布のうち、最初の分布(1)で RaA の  $\alpha$  線ピークのカウント数を  $C_A$ 、RaC' の  $\alpha$  線ピークカウント数を  $C_C'$  とする（図 2-3）。

ここで、分布(1)のうち、RaA と RaC' のピークの分離方法が問題になるが、今回は次のようにした。

まず、 $C_A$  と  $C_C'$  の境からピークの右端までのカウント数をそれぞれ  $C_1$ ,  $C_1'$  とする（図 2-5）。

今、

$$C_C = \frac{C_1}{C_1'} + C_C' \quad (2-2)$$

として RaC' のピークを求め、分布(1)の全カウント数から  $C_C$  を引いて RaA の  $\alpha$  線ピーク  $C_A$  を求めた。

## 3 Rn 娘核種濃度の計算

前節で求めたピークカウント数から計算により RaA, RaB および RaC の放射能濃度を求める概略的な手順は次の通りである（図 2-3 参照）<sup>(6)</sup>。

まず、RaA の放射能濃度  $Q_A$  は  $C_A$  に係数  $F$  を乗じて求まる（(2-3) 式）。次に、 $C_C$ ,  $C_C'$  から RaA

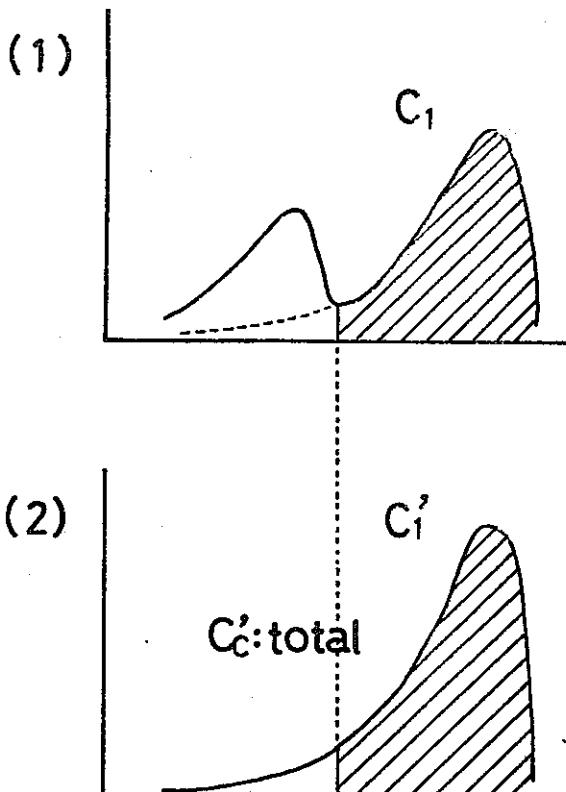


図 2-5 各ピークのカウント数を求めるための概念図

の寄与分  $C_{AC}$ ,  $C'_{AC}$  をそれぞれ引いて RaB と RaC のカウント数  $C_{BC}$ ,  $C'_{BC}$  を求める。すると  $C_{BC}$  は RaB の濃度  $Q_B$  と RaC の濃度  $Q_C$  にそれぞれ係数 K, L を乗じたものの和として表わされる( ( 2-4 ) 式)。 $C'_{BC}$  も同様である( ( 2-5 ) 式)。そしてこの( 2-4 ), ( 2-5 )式の連立方程式から  $Q_B$ ,  $Q_C$  を求めるわけである。ここで,  $Q_C/Q_B$  を Z と置くと, ( 2-4 ), ( 2-5 )式より,

$$\frac{C_{BC}}{C'_{BC}} = \frac{K + LZ}{M + NZ} \quad (2-8)$$

となり, これから Z を求めうる。

$Q_B$  は( 2-6 )式より,  $Q_C$  は( 2-7 )式より求まる。

### 3-1 捕集, 測定中の微分方程式

次に詳しい計算方法を述べる。<sup>\*</sup>

最初に Rn 娘核種のフィルタへの捕集中と捕集後の時間変化を表わす微分方程式を示す。

#### (1) 捕集中の時間変化

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_A}{dt} = P_A - \lambda_A n_A \\ \frac{dn_B}{dt} = P_B + \lambda_A n_A - \lambda_B n_B \end{array} \right. \quad (2-9)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_B}{dt} = P_B + \lambda_A n_A - \lambda_B n_B \\ \frac{dn_C}{dt} = P_C + \lambda_B n_B - \lambda_C n_C \end{array} \right. \quad (2-10)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_C}{dt} = P_C + \lambda_B n_B - \lambda_C n_C \end{array} \right. \quad (2-11)$$

但し,

$$P_i = \eta q n_i \quad ( i = A, B, C ) \quad (2-12)$$

$\eta$  : 捕集効率

$q$  : 通気流量率 [  $cm^3 \cdot s^{-1}$  ]

$n_i$  : i 核種の原子数 [  $cm^{-3} \cdot s^{-1}$  ]

初期条件を次のようにする。

$$t = 0 ; n_A = n_B = n_C = 0$$

解[ I ]は,

$$\left\{ \begin{array}{l} n_A^T = \frac{P_A}{\lambda_A} ( 1 - e^{-\lambda_A T} ) \end{array} \right. \quad (2-13)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} n_B^T = \frac{P_A + P_B}{\lambda_B} ( 1 - e^{-\lambda_B T} ) + \frac{P_A}{\lambda_A - \lambda_B} ( e^{-\lambda_A T} - e^{-\lambda_B T} ) \end{array} \right. \quad (2-14)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} n_C^T = \frac{P_A + P_B + P_C}{\lambda_C} ( 1 - e^{-\lambda_C T} ) \end{array} \right.$$

$$+ \frac{\lambda_A P_A + (\lambda_A - \lambda_B) P_B}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_B - \lambda_C)} ( e^{-\lambda_B T} - e^{-\lambda_C T} )$$

\* 以下に述べることは昭和 54 年度動力炉・核燃料開発事業団受託研究報告書「施設内気中放射能エアロゾルの挙動についての研究」の付録 A-1 を実際の適用に際し詳しく記したものである。

$$+ \frac{\lambda_B P_A}{(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_A - \lambda_B)} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_C t}) \quad (2-15)$$

となる。

## (2) 捕集後の時間変化

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_A}{dt} = -\lambda_A n_A \\ \frac{dn_B}{dt} = \lambda_A n_A - \lambda_B n_B \end{array} \right. \quad (2-16)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_B}{dt} = \lambda_A n_A - \lambda_B n_B \\ \frac{dn_C}{dt} = \lambda_B n_B - \lambda_C n_C \end{array} \right. \quad (2-17)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dn_C}{dt} = \lambda_B n_B - \lambda_C n_C \end{array} \right. \quad (2-18)$$

初期条件を、

$$t = 0 ; n_A^T = n_A^T, n_B^T = n_B^T, n_C^T = n_C^T$$

とすると、解〔II〕は次のようになる。

$$\left\{ \begin{array}{l} n_A = n_A^T e^{-\lambda_A t} \\ n_B = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} n_A^T (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) + n_B^T e^{-\lambda_B t} \end{array} \right. \quad (2-19)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} n_B = \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} n_A^T (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) + n_B^T e^{-\lambda_B t} \\ n_C = \frac{\lambda_A \lambda_B}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} n_A^T (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_C t}) \end{array} \right. \quad (2-20)$$

$$\begin{aligned} & + \left\{ \frac{\lambda_A \lambda_B n_A^T}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} + \frac{\lambda_B n_B^T}{\lambda_C - \lambda_B} \right\} (e^{-\lambda_B t} - e^{-\lambda_C t}) \\ & + n_C^T e^{-\lambda_C t} \end{aligned} \quad (2-21)$$

ここで、

$$\lambda_A = 3.787 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

$$\lambda_B = 0.4309 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

$$\lambda_C = 0.5862 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

である。

## 3-2 Rn 娘核種濃度の計算式

前項の微分方程式の解から次のように RaA, RaB および RaC の放射能濃度を求める。

### (1) RaA の放射能濃度 ( $Q_A$ )

RaA の  $\alpha$  線ピークカウント数  $C_A$  は

$$C_A = \epsilon \zeta \int_{t_1}^{t_2} \lambda_A n_A dt$$

$$\begin{aligned}
&= \epsilon \zeta \int_{t_1}^{t_2} P_A (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A t} dt \\
&= \epsilon \zeta \eta q n_A \frac{1}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A T}) (e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2})
\end{aligned} \tag{2-22}$$

但し、

$\epsilon$  : SSD の計数効率 (0.13)

$\zeta$  : フィルタの発現効率 (0.96)

$\eta$  : フィルタの捕集効率 (1.0)

T : 捕集時間 (15分)

$t_1 \sim t_2$  : 計数時間

である。

ここで、

$$F_A = \frac{1}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A T}) (e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2}) \tag{2-23}$$

と置くと、RaA の放射能濃度  $Q_A$  は、

$$\begin{aligned}
Q_A &= \lambda_A n_A \\
&= \frac{\lambda_A}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{C_A}{\epsilon \eta \zeta q F_A (T, t_1, t_2)}
\end{aligned} \tag{2-24}$$

となる。単位は [Ci · cm<sup>-3</sup>] である。

(2) RaC' ピークへの RaA の寄与 ( $C_{AC}$ ,  $C_{AC}'$ )

(2-21) 式で  $P_B = P_C = 0$  とすると、RaC の原子数  $n_C$  は、

$$\begin{aligned}
n_C &= P_A \left\{ \frac{\lambda_B}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A T}) e^{-\lambda_A t} \right. \\
&\quad + \frac{\lambda_A}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B t} \\
&\quad \left. + \frac{\lambda_A \lambda_B}{\lambda_C (\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C T}) e^{-\lambda_C t} \right\}
\end{aligned} \tag{2-25}$$

で与えられる。

よって、RaA で捕集され、RaC' からの  $\alpha$  線で計数された値  $C_{AC}$  は、

$$\begin{aligned}
C_{AC} &= \epsilon \zeta \int_{t_1}^{t_2} \lambda_C n_C dt \\
&= \epsilon \zeta \eta q n_A \left\{ \frac{\lambda_B \lambda_C}{\lambda_A (\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A T}) (e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2}) \right. \\
&\quad \left. + \frac{\lambda_A \lambda_C}{\lambda_B (\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B T}) (e^{-\lambda_B t_1} - e^{-\lambda_B t_2}) \right\}
\end{aligned}$$

$$+ \frac{\lambda_A \lambda_B}{\lambda_C (\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C T}) (e^{-\lambda_C t_1} - e^{-\lambda_C t_2}) \quad (2-26)$$

である。

ここで、

$$\begin{aligned} F_{AC}(T, t_1, t_2) &= \frac{\lambda_B \lambda_C}{\lambda_A (\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A T}) (e^{-\lambda_A t_1} - e^{-\lambda_A t_2}) \\ &+ \frac{\lambda_A \lambda_C}{\lambda_B (\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B T}) (e^{-\lambda_B t_1} - e^{-\lambda_B t_2}) \\ &+ \frac{\lambda_A \lambda_B}{\lambda_C (\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C T}) (e^{-\lambda_C t_1} - e^{-\lambda_C t_2}) \end{aligned} \quad (2-27)$$

と置くと次式が得られる。

$$C_{AC} = \frac{F_A(T, t_1, t_2)}{F_{AC}(T, t_1, t_2)} \cdot C_A \quad (2-28)$$

同様に

$$C_{AC}' = \frac{F_A(T, t_1, t_2)}{F_{AC}(T, t_2, t_3)} C_A \quad (2-29)$$

となる。

### (3) RaB の放射能濃度 (Q<sub>B</sub>)

RaC' の  $\alpha$  線ピークカウント  $C_C$ ,  $C_C'$  から (2-28), (2-29) 両式の  $C_{AC}$ ,  $C_{AC}'$  をそれぞれ差引いて、RaB と RaC のみのカウント数  $C_{BC}$ ,  $C_{BC}'$  を求める。

次に、(2-21) 式で  $P_A = 0$  とおくと、

$$\begin{aligned} n_{BC} &= P_B \left\{ \frac{1}{\lambda_C - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B T}) e^{-\lambda_B t} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\lambda_B}{\lambda_C (\lambda_B - \lambda_C)} \left( 1 + \frac{\lambda_B - \lambda_C}{\lambda_C} \cdot \frac{Q_C}{Q_B} \right) \right\} \end{aligned} \quad (2-30)$$

となる。

ここで、 $Q_C / Q_B = Z$  とおくと次式を得る。

$$C_{BC} = \epsilon \zeta \int_{t_1}^{t_2} \lambda_C n_{BC} dt$$

$$\begin{aligned}
&= \varepsilon \zeta \eta q n_{BC} \left\{ \frac{\lambda_C}{\lambda_B (\lambda_C - \lambda_B)} \left( 1 - e^{-\lambda_B T} \right) \left( e^{-\lambda_B t_1} - e^{-\lambda_B t_2} \right) \right. \\
&\quad \left. + \frac{\lambda_B}{\lambda_C (\lambda_B - \lambda_C)} \left( 1 - e^{-\lambda_C T} \right) \left( 1 + \frac{\lambda_B - \lambda_C}{\lambda_C} Z \right) \left( e^{-\lambda_C t_1} - e^{-\lambda_C t_2} \right) \right\} \\
&= \varepsilon \zeta \eta q n_{BC} F_C(T, t_1, t_2, Z) \tag{2-31}
\end{aligned}$$

同様に、 $C_{BC}'$  は次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
C_{BC}' &= \varepsilon \zeta \int_{t_2}^{t_3} \lambda_C n_{BC} dt \\
&= \varepsilon \zeta \eta q n_{BC} F_C(T, t_2, t_3, Z) \tag{2-32}
\end{aligned}$$

また、(2-31), (2-32)両式より

$$\frac{C_{BC}}{C_{BC}'} = \frac{F_C(T, t_1, t_2, Z)}{F_C(T, t_2, t_3, Z)} \tag{2-33}$$

として、(2-33)式からZを求める。

以上より、RaB の濃度  $Q_B$  は、

$$\begin{aligned}
Q_B &= \lambda_B n_{BC} \\
&= \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{C_{BC}}{\varepsilon \eta \zeta q F_C(T, t_1, t_2, Z)} \tag{2-34}
\end{aligned}$$

となる。単位は  $\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$  である。

#### (4) RaC の放射能濃度 ( $Q_C$ )

前項より、RaC の濃度  $Q_C$  [ $\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ ] は、

$$Q_C = Q_B \cdot Z \tag{2-35}$$

と求まる。

## 4 測定結果

図2-6にRaA, RaBおよびRaCの各濃度の測定結果を示す。同図より各核種の濃度差が明白である。また、値自身もかなりばらついている。これは、換気により外気が宿内に入ってくるのであるが、換気率が大きいため外気のRn娘核種濃度の影響を受けたものと思われる。なお、平均値はRaAが145, RaBが41, RaCが15  $\text{pCi} \cdot \text{m}^{-3}$  となった。なお、A-107室およびA-110室における両測定値を比較すると、後者の方が1桁近く高い濃度となり、どの部屋でも同じであろうという予想に反する結果を得た。その原因についてはまだ不明である。

数値および誤差を表2-1に示した。

次に、RaA, RaBおよびRaCの放射平衡比を求めた。結果を図2-7に示す。測点間のばらつきと各点の誤差が大き

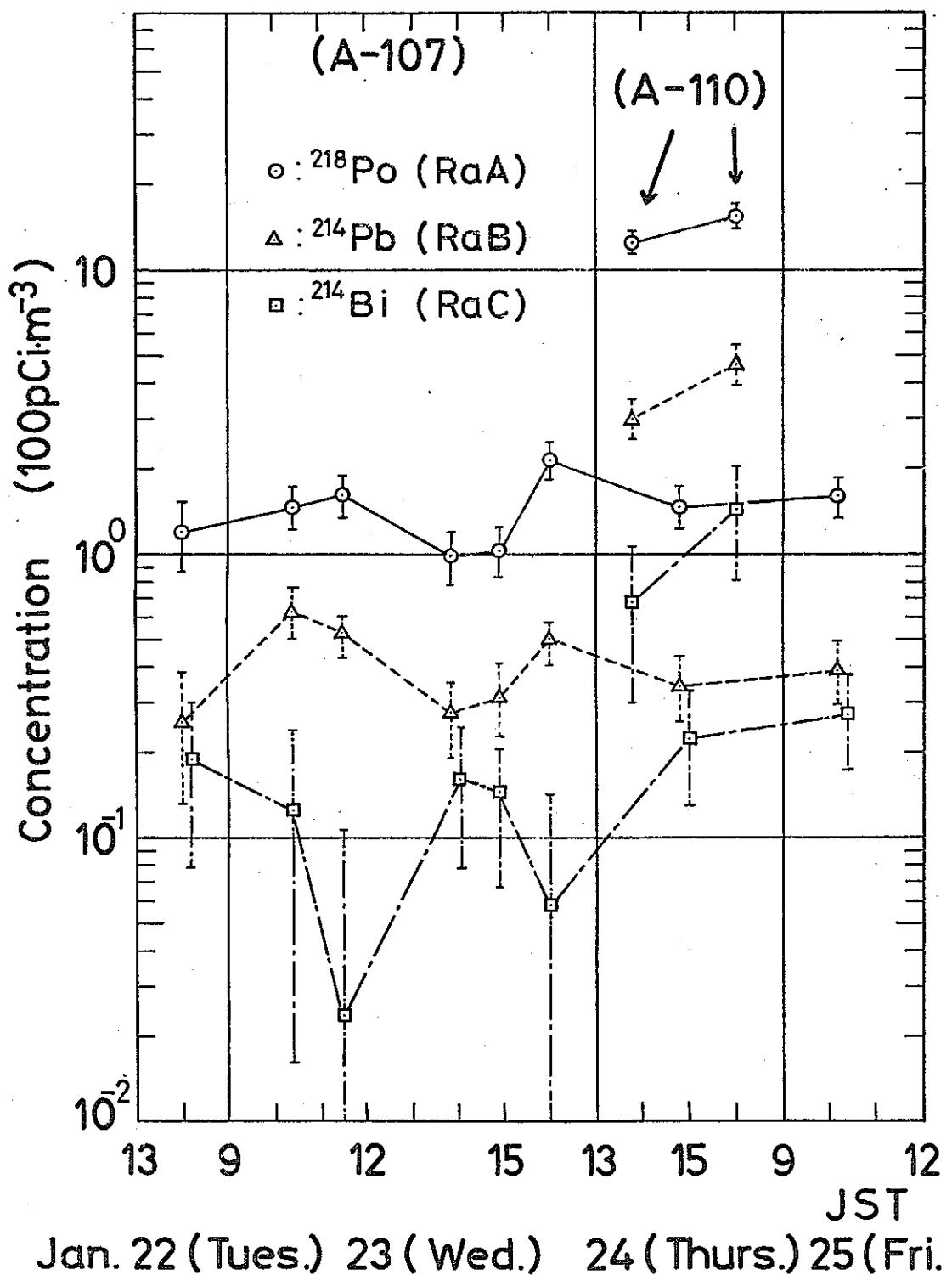


図2-6 A-107, A-110室におけるRn娘核種の気中濃度

表2-1 RaA, RaB および RaC の気中濃度

J S T	$^{222}\text{Rn}$ Dtrs. Concentration ( $100 \text{ pCi}/\text{m}^{-3}$ )			
	$Q_A$	$Q_B$	$Q_C$	
Jan. 22 1980				
13:50	1.20 ± 0.33	0.259 ± 0.12	0.191 ± 0.11	
Jan. 23				
10:30	1.48 ± 0.27	0.630 ± 0.13	0.126 ± 0.11	
11:30	1.62 ± 0.28	0.531 ± 0.10	0.0237 ± 0.083	
13:50	0.987 ± 0.21	0.279 ± 0.088	0.162 ± 0.078	
14:50	1.04 ± 0.22	0.316 ± 0.10	0.146 ± 0.079	
15:55	2.17 ± 0.33	0.505 ± 0.10	0.0580 ± 0.084	
Jan. 24				
13:50	1.26 ± 1.1	3.02 ± 0.48	0.680 ± 0.38*	
14:50	1.48 ± 0.26	0.346 ± 0.10	0.223 ± 0.092	
16:00	15.7 ± 1.4	4.68 ± 0.77	1.43 ± 0.62*	
Jan. 25				
10:10	1.61 ± 0.27	0.397 ± 0.12	0.274 ± 0.10	
Mean	1.45 ± 0.27	0.408 ± 0.11	0.151 ± 0.092	

\* A - 110

表2-2 RaAに対するRaBとRaCの濃度

J S T	Relative Activity	
	$Q_B/Q_A$	$Q_C/Q_A$
Jan. 22 1980		
13:50	0.215 ± 0.12	0.158 ± 0.099
Jan. 23		
10:30	0.426 ± 0.12	0.0849 ± 0.072
11:30	0.329 ± 0.086	0.0147 ± 0.051
13:50	0.282 ± 0.11	0.164 ± 0.087
14:50	0.304 ± 0.11	0.141 ± 0.081
15:55	0.223 ± 0.060	0.0267 ± 0.039
Jan. 24		
13:50	0.240 ± 0.044	0.0540 ± 0.031*
14:50	0.234 ± 0.082	0.151 ± 0.068
16:00	0.298 ± 0.056	0.0913 ± 0.040*
Jan. 25		
10:10	0.248 ± 0.084	0.171 ± 0.071
Mean	0.280 ± 0.087	0.106 ± 0.064

\* A - 110

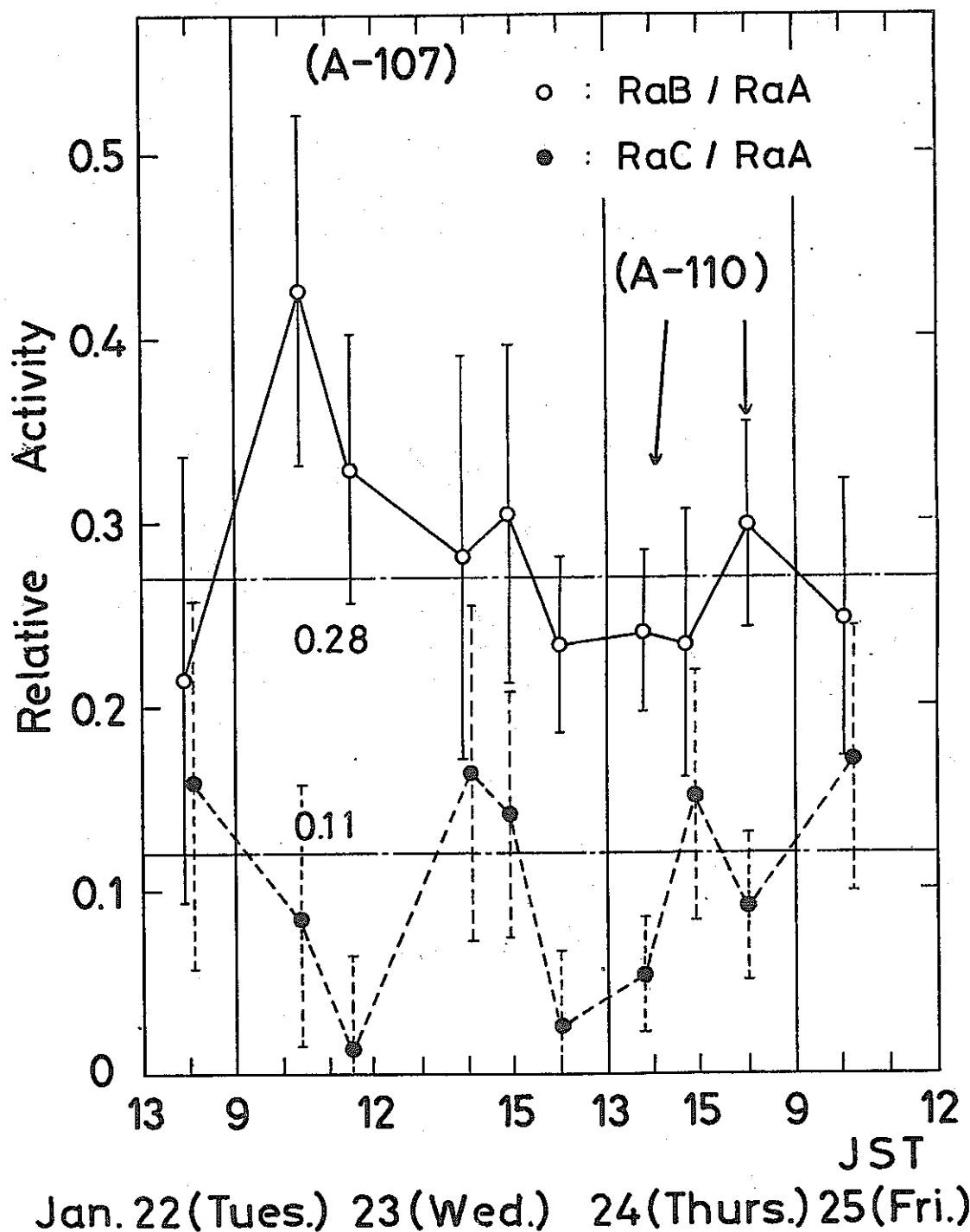


図2-7 A-107, A-110室におけるRa娘核種の濃度比

いが、平均を採って、RaA, RaB および RaC の濃度比は 1 : 0.28 : 0.11 となる。この平衡比の方は濃度値の場合と異なり、A-107 室と A-110 室との相違は認められなかった。これらを表 2-2 にまとめておく。

## 5 Rn 娘核種の挙動の解析

建屋内における 1 つのモデルを考え、それを基に Rn 娘核種の状態（濃度の増加、減少）を表わす微分方程式を立て、測定結果をもとに Rn 娘核種の挙動を調べることを試た。

なお、モデルおよび微分方程式は昭和 54 年度動力炉・核燃料開発事業団受託研究「施設内気中放射性エアロゾルの挙動についての研究」における取扱いと同じである。<sup>(1), (6), (7), (8)</sup>

### 5-1 モデルを考慮に入れた因子

部屋のモデルにおいて考慮した因子は、親原子からの発生、Rn 娘核種が空調のプレフィルタを通過していく割合、それらの壁・床などへの沈着と崩壊による消滅および換気による室外への放出の割合である。ブル燃は常時換気が行なわれているため、外気の濃度変動が室内に及ぼす影響を考慮しなくてはならない。なお、場合によっては自然換気も考える必要があるが、ここでは不需要である。

モデルを図 2-8 に示しておく。

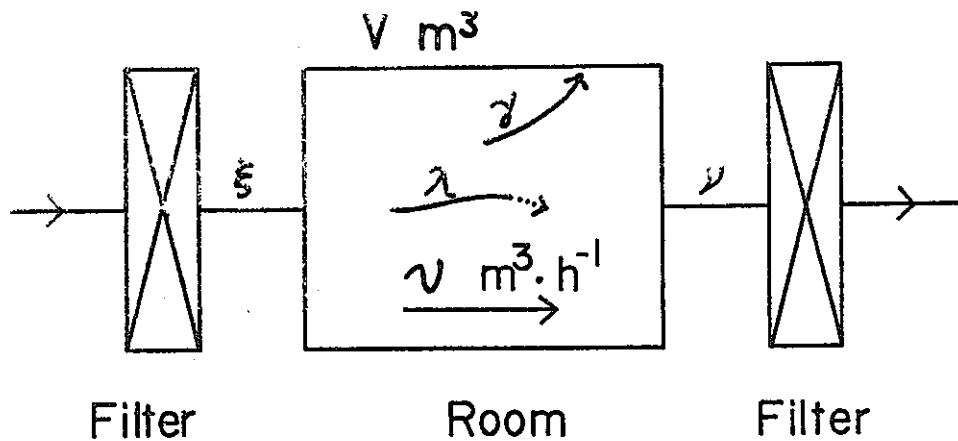


図 2-8 解析に用いた建屋のモデル

### 5-2 方程式とその解

Rn 娘核種の状態を表わす微分方程式とその解は次の通りである。

$$\frac{dn_A}{dt} = \xi v n_A^0 + \lambda_N n_N - (\lambda_A + \nu + \gamma) n_A \quad (2-36)$$

$$\frac{dn_B}{dt} = \xi v n_B^0 + \lambda_A n_A - (\lambda_B + \nu + \gamma) n_B \quad (2-37)$$

$$\frac{dn_C}{dt} = \xi v n_C^0 + \lambda_B n_B - (\lambda_C + \nu + \gamma) n_C \quad (2-38)$$

$$Q_A = \frac{Q_N + \xi \nu / \lambda_A \cdot Q_A^0}{1 + (\nu + \gamma) / \lambda_A} \quad (2-39)$$

$$Q_B = \frac{Q_A + \xi \nu / \lambda_B \cdot Q_B^0}{1 + (\nu + \gamma) / \lambda_B} \quad (2-40)$$

$$Q_C = \frac{Q_B + \xi \nu / \lambda_C \cdot Q_C^0}{1 + (\nu + \gamma) / \lambda_C} \quad (2-41)$$

ここで、 $\xi$ ：給気側フィルタによる除塵を逃れる割合（除塵効果が100%の時は $\xi=0$ ）

$\nu$ ：換気量 [ $m^3 \cdot h^{-1}$ ]

$\nu$ ：換気回数 [ $h^{-1}$ ]

$\gamma$ ：拡散・静電場等による除去率 [ $h^{-1}$ ]

$n_A^0, n_B^0, n_C^0$ ：屋外空気中の RaA, RaB, RaC の単位容積当たりの原子数

$Q_A^0, Q_B^0, Q_C^0$ ：屋外空気中の RaA, RaB, RaC の濃度 [ $Ci \cdot m^{-3}$ ]

である。

### 5-3 考察

(2-40)と(2-41)両式の $\xi$ と $\nu$ および $\gamma$ に適当な数値を与えて計算した RaB, RaC の濃度と実測値とを比較した図が図2-9である。実線のハッチの部分が RaB, 点線のハッチの部分が RaC の計算値である。

ところで、この計算では式(2-38), (2-39)からわかるように  $Q_B^0$  と  $Q_C^0$  の値が必要である。しかし今回は外気のこれらの値を測定しなかったので、次のように取り扱った。即ち、昭和53年12月に同じ部屋において測定された Rn 濃度の平均値  $154 \text{ pCi} \cdot m^{-3}$  を用い、これに George<sup>(9)</sup>, Duggan<sup>(10)</sup>, Malakov<sup>(11)</sup> らの値を参考にして、外気中の Rn およびその娘核種の濃度比を  $Q_N^0 : Q_A^0 : Q_B^0 : Q_C^0 = 1 : 1 : 0.75 : 0.54$  として、 $Q_B^0 = 116 \text{ pCi} \cdot m^{-3}$ ,  $Q_C^0 = 77.0 \text{ pCi} \cdot m^{-3}$  の値を用いた。

また、沈着率は $\gamma=0$ としたが、RaB と RaC のほとんどがエアロゾルに付着していることを考慮るとこの値は妥当と考えられる。

$\xi$ と $\nu$ に種々の値を与えて求めた計算値と実測値とを直接比較することは、多くの仮定のあることを考慮するとあまり意味がないことと思われるため、 $\xi=0.06 \sim 0.2$  および  $\nu=6 \sim 9$  と幅を持たせ、この幅内の組合せとして取扱った。

なお、以上の検討は A-107 室での測定値に対するもので、A-110 室については検討していない。

上述の考察によれば、プレ・フィルタの除塵効果は  $1 - \xi = 0.8 \sim 0.94$  であり、従って外気中のエアロゾル成分は給気の際にかなり除去され、もっぱら Rn が室内に入っていることを示している。このように、Rn は外気と一緒に入ってくるほか、壁や床などの構造材からも発生し、それらは室内で崩壊して RaA, RaB および RaC を生じている。また、換気率は  $\gamma=6 \sim 9$  [ $h^{-1}$ ] であり、それ故 1 回の換気時間が 7 ~ 10 分であるのに対し、Rn の半減期は 3.8 日、RaA が 3.05 分、RaB が 2.68 分、RaC が 1.97 分であるから、RaA, RaB および RaC が放射平衡に達する前に室内の空気がかなり入れ替っていることが十分に予想される。換言すれば、RaB, RaC となるに従い生成量が減少して、そのために RaA : RaB : RaC  $\simeq 1 : 0.28 : 0.11$  となっていると考えることができる。

表2-3 実測結果と解析のまとめ

		動燃 (1980 1/22~1/25)	
RaA : RaB : RaC		1 : 0.28 : 0.11	
Rn Dtrs. 濃度変化		ばらつく	
Rn Dtrs. 濃度 ( $\text{pCi} \cdot m^{-3}$ )	RaA	平	145
	RaB	均	41
	RaC	値	15
換気率 $\nu$ ( $h^{-1}$ )	A-107	6 ~ 9	
	A-110	—	
沈着率 $\gamma$ ( $h^{-1}$ )		~0	
フィルター除塵効率		A-107	0.8 ~ 0.94
$1 - \xi$		A-110	—

### 5-4 前回の測定結果との関連

前年度の結果の簡単なまとめが本章第一節で述べられているが、これを今一度要点を記すと次の通りである。

#### 前回の結果

① Rn と RaA の間は非平衡状態

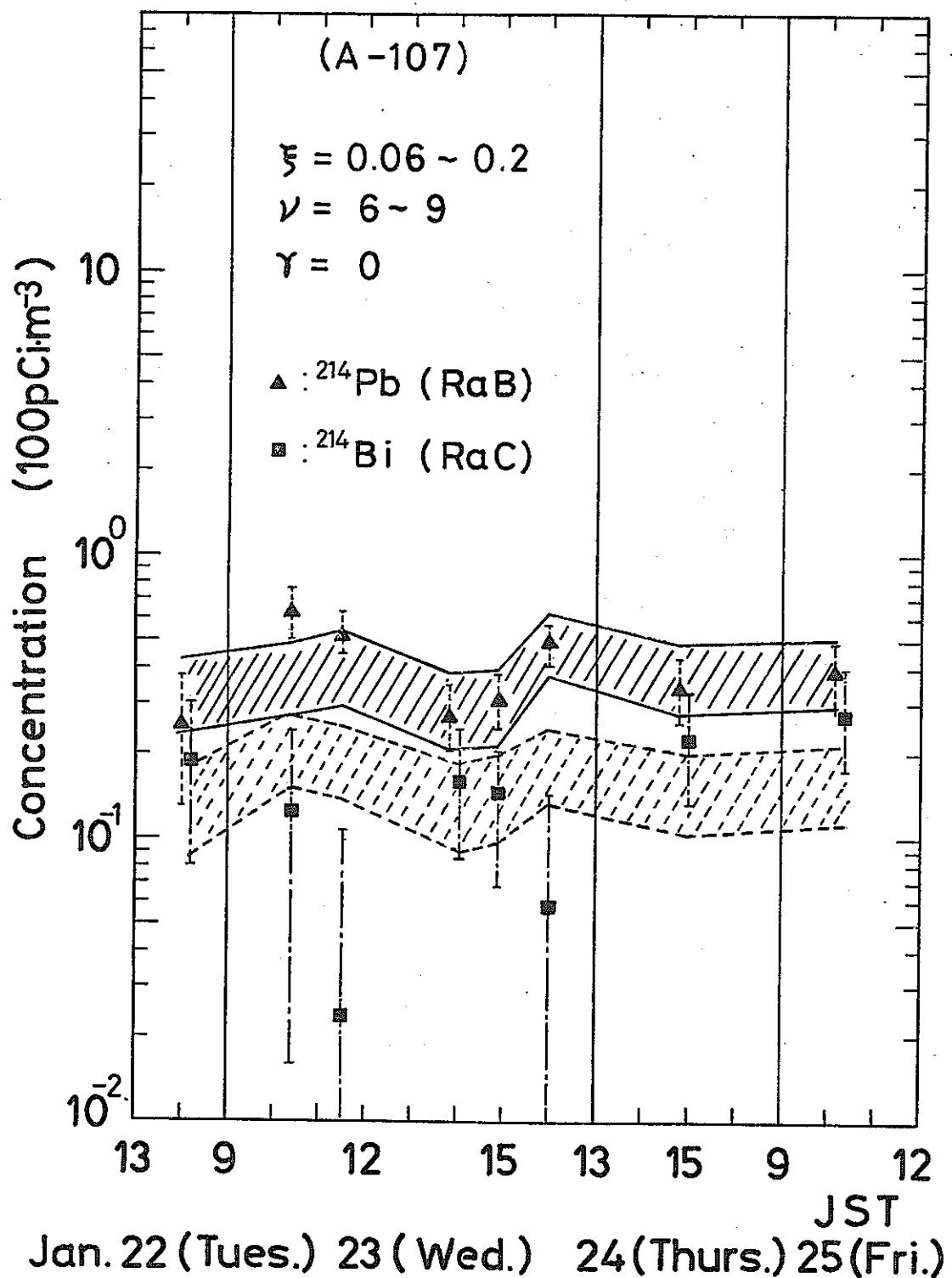


図 2-9 RaB と RaC の実測値と解析値の比較

② RaA, RaB および RaC の間も非平衡

また、今回の結果は、

$$RaA : RaB : RaC = 1 : 0.28 : 0.11$$

となり、前回の結論②を裏付けている。しかしながら、同一のモデルと方程式を基にした解析で、プレ・フィルタの除塵効率 ( $1 - \xi$ ) と部屋の空気の換気回数 ( $\nu$ ) について、

$$\text{前回: } 1 - \xi = 0.6, \nu = 4$$

$$\text{今回: } 1 - \xi = 0.8 \sim 0.94, \nu = 6 \sim 9$$

となり、若干の相違が認められる。この点については、

① 測定場所と施設の条件の違い

② 前回は RaA, RaB および RaC の放射平衡比を測定していないので、他の量の間の辻褄が合うよう、これらの値に偏寄せられている。

③ 今回は逆に RaA, RaB, RaC 間の放射平衡比のみしか測定していないので、上述の値自身はかなり荒っぽいなどが十分に考えられるところであろう。

以上の検討で定性的な説明はほぼよいと思われるが、定量的に矛盾がないように説明するには全量（関連する量）を同時に測定して解釈していく必要がある。

## 6 問題点と今後の課題

### 6-1 測定上の問題点

波高分布から RaA と RaC' のピークを区別する方法は前述の通りであるが、その場合に、1番目の波高分布の RaC' のピーク  $C_C$  と2番目の RaC' のピーク  $C_C'$  の面積比が等しいという仮定を入れた。しかし、この仮定から外れる分布が、特にカウント数の少ない場合に数例見られた。このような判別に迷うピークができるのは孔径  $1.2 \mu\text{m}$  (ミリポア・フィルタ RA) のフィルタを使用した場合であり、 $0.3 \mu\text{m}$  のフィルタではほぼ明確に識別できることがわかっている。ところで、 $0.3 \mu\text{m}$  のフィルタは  $1.2 \mu\text{m}$  のものよりも通気抵抗が大きいので、捕集量が少くなり、それ故カウント数も相対的に少なくなり、測定に支障をきたすことがある。プル燃の室内における Rn 娘核種濃度が低く、 $0.3 \mu\text{m}$  のフィルタを使用することが困難であったので、 $1.2 \mu\text{m}$  のフィルタを使用したのも止むを得ぬことであった。

なお、放射能濃度が高い場合には  $0.3 \mu\text{m}$ 、濃度が低くて  $0.3 \mu\text{m}$  の使用が困難な場合にのみ  $1.2 \mu\text{m}$  を使用するということも考えられよう。また、これらの中間の孔径（例えば  $0.65 \mu\text{m}$ ）のフィルタについても検討すれば、より適当なフィルタが見つかるかもしれない。

### 6-2 結果における問題点

① Rn 娘核種濃度および放射平衡比の誤差を評価する場合、流量計の誤差は評価困難であったので無視した。これを評価に入れば、誤差は更に大きくなろう。

② 今回の測定で Rn 娘核種濃度が部屋により異なった。原因はまだ明らかでない。

### 6-3 解析上の問題点

① Rn 濃度の測定値を得て Rn 娘核種の挙動の検討ができれば、もう少し明らかなことが言えたであろう。

②  $\gamma$  の値を何らかの方法で推定できればより明確な議論ができるよう。

③ 式 (2-39), (2-40) および (2-41) において、 $Q_i^0 \xi$  を1つの量として取扱う方がすっきりとしたと思われる。

### 6-4 今後の課題

今回に限って言えば、挙動の検討において、ある仮定のもとに各因子を計算によって求めてみると、このことを行なってみる価値があったかもしれない。これによって、測定値の確度の検討や測定因子に関するより詳細な考察が可能であったと思われる。

しかしながら、全体として統一的に矛盾なく解釈していくためには、以下の諸点に留意しなければならない。

- ① 各因子（Rn，Rn 娘核種の放射平衡比、フリー成分、エアロゾルの濃度等）の同時測定を行なうこと。
  - ② 同じ換気系統でも、部屋や場所による Rn 濃度の不均一性が示唆されたため、この点を明確にしていくこと。
  - ③ 時期、季節による相違にも注意する必要があり、年間を通しての測定を行なうこと。
- などがあげられる。

## 7 結　　び

ブル燃工場で Rn 族核種の気中における放射能濃度を測定した。各濃度のばらつきと誤差は決して小さくはなかったが、核種間の濃度比は、RaA : RaB : RaC = 1 : 0.28 : 0.11 であった。この結果は前年度の予測を裏付けるものであった。

前年度と同様に簡単なモデルに基づく解析並びに検討を行なったところ、前回の結論から大きく逸脱するものではなかつたが、プレ・フィルタの除塵効率と部屋の換気回数との推定に若干の違いが生じた。

今回新たに出た問題として、部屋により Rn 濃度に随分大きな相違が認められたことであるが、このことは建屋内の Rn およびその娘核種の挙動がそれ程単純でないことを示唆しているようである。

今後は、部屋（または場所）の違いに留意して関連する各因子の同時測定を実施することと長期の連続データを得ることでこれらの問題点を解決していくことが必要であると思われる。また、部屋の換気率や Rn 娘核種の壁や床等への沈着などに関して正確な情報を得ることが重要であるが、そのためにはモデル・ルームなどによるシミュレーションが有効であろう。

## REF ERENCE

- (1) 池辺幸正、下道国、飯田孝夫、1979、動力炉・核燃料開発事業団受託研究報告書「施設内気中放射性エアロゾルの挙動についての研究」。
- (2) 池辺幸正、清水邦保、川野実、1970、応用物理、39, 114.
- (3) 日野晴登、1973、名古屋大学工学部卒業論文。
- (4) James A. C., G. F. Bradford and D. M. Howell, 1972, Aerosol Sci. 3, 243.
- (5) Martz D. E., D. F. Hollman, D. E. McCurdy and K. J. Schiager, 1969, Health Phys. 17, 131.
- (6) Jacobi W., 1972, Health Phys. 22, 441.
- (7) 下道国、永井英男、加藤滋穂他、1979、日本原子力学会秋季分科会講演予稿集第2分冊、4。
- (8) 下道国、加藤隆夫、池辺幸正、1980、日本原子力学会年会講演予稿集第2分冊、92。
- (9) George A. C. and L. Hinchliffe, 1972, Health Phys. 23, 791.
- (10) Duggan M. J. and D. M. Howell, 1968, Intern. J. Appl. Iso. 19, 865.
- (11) Malakov S. G., V. N. Bakulin, G. V. Dmitrieva, L. V. Kirichenko, T. I. Ssissigina and B. G. Starko, 1966, Tellus 18, 643.

## 誤差評価

RaA, RaB, RaC の濃度及び RaB/RaA, RaC/RaA の濃度比の誤差を求める計算方法を述べる。ここでは前述の濃度計算と違う方法で行なう。

$$Q_B = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{C_{BC}}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q \cdot F_C(T, t_1, t_2, Q_C/Q_B)} \quad (A-1)$$

$$Q_B = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{C'_{BC}}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q \cdot F_C(T, t_2, t_3, Q_C/Q_B)} \quad (A-2)$$

この2式から

$$Q_B = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q} \cdot \frac{1}{B'(A+B) - B(A'+B')} (B'C_{BC} - BC'_{BC}) \quad (A-3)$$

$$Q_C = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q} \cdot \frac{1}{C\{B(A'+B') - B'(A+B)\}} \{ (A'+B') C_{BC} - (A+B) C'_{BC} \} \quad (A-4)$$

(1)  $Q_B$  と  $Q_C$  の誤差  $\delta Q_B$ ,  $\delta Q_C$

(3), (4)式より求めると

$$\delta Q_B = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q} \cdot \frac{1}{B'(A+B) - B(A'+B')} \cdot \sqrt{(\delta \alpha)^2 + (\delta \beta)^2} \quad (A-5)$$

$$\delta \alpha = B'C_{BC} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta \eta}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{\delta \zeta}{\zeta}\right)^2 + \left(\frac{\delta C_{BC}}{C_{BC}}\right)^2 + \left(\frac{\delta q}{q}\right)^2}$$

$$\delta \beta = BC'_{BC} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta \eta}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{\delta \zeta}{\zeta}\right)^2 + \left(\frac{\delta C'_{BC}}{C'_{BC}}\right)^2 + \left(\frac{\delta q}{q}\right)^2}$$

また、

$$\delta Q_C = \frac{\lambda_B}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{1}{\varepsilon \cdot \eta \cdot \zeta \cdot q} \cdot \frac{1}{C\{B(A'+B') - B'(A+B)\}} \cdot \sqrt{(\delta \alpha')^2 + (\delta \beta')^2} \quad (A-6)$$

$$\delta \alpha' = (A'+B') C_{BC} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta \eta}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{\delta \zeta}{\zeta}\right)^2 + \left(\frac{\delta C_{BC}}{C_{BC}}\right)^2 + \left(\frac{\delta q}{q}\right)^2}$$

$$\delta \beta' = (A+B) C'_{BC} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta \eta}{\eta}\right)^2 + \left(\frac{\delta \zeta}{\zeta}\right)^2 + \left(\frac{\delta C'_{BC}}{C'_{BC}}\right)^2 + \left(\frac{\delta q}{q}\right)^2}$$

となり、(5), (6)式から求める。

ここで、

$$A = \frac{\lambda_C}{\lambda_B(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B T})(e^{-\lambda_B t_1} - e^{-\lambda_B t_2})$$

$$A' = \frac{\lambda_C}{\lambda_B(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B T})(e^{-\lambda_B t_2} - e^{-\lambda_B t_3})$$

$$B = \frac{\lambda_B}{\lambda_C(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C T})(e^{-\lambda_C t_1} - e^{-\lambda_C t_2})$$

$$B' = \frac{\lambda_B}{\lambda_C(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C T})(e^{-\lambda_C t_2} - e^{-\lambda_C t_3})$$

(2)  $Q_B/Q_A$ ,  $Q_C/Q_A$  の誤差  $\delta(Q_B/Q_A)$ ,  $\delta(Q_C/Q_A)$

$$\delta(Q_B/Q_A) = \frac{Q_B}{Q_A} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta Q_A}{Q_A}\right)^2 + \left(\frac{\delta Q_B}{Q_B}\right)^2} \quad (A-7)$$

$$\delta(Q_C/Q_A) = \frac{Q_C}{Q_A} \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta Q_A}{Q_A}\right)^2 + \left(\frac{\delta Q_C}{Q_C}\right)^2} \quad (A-8)$$

として求める。

なお,  $\delta\varepsilon/\varepsilon = 6.6\%$ ,  $\delta\eta/\eta = 1\%$ ,  $\delta\zeta/\zeta = 1\%$ とした。また  $\delta q/q$  は無視した。

(下 道国, 加藤隆夫)

## B. ト ラ ッ ク 法 による 測 定

### 1. は じ め に

動燃の施設内では、Pu汚染が起っていないのに、 $\alpha$ 線用サーベイメーターやHFCモニターで、異常計数されることがある。偽計数の発生原因としては、気中の自然放射能特にRn娘核種が、何らかの過程を経て発生部位に濃縮付着していると考えられる。この原因を究明する第一歩として、施設内の空気中のRn濃度と床や壁へのRn娘核種の沈着率を、長期間連続してモニターすることは重要である。

従来より行なわれている $^{222}\text{Rn}$ 放射能測定には、 $^{222}\text{Rn}$ を捕集しその放射能を測定する Charcoal Trap 法、Chamber 法等と、 $^{222}\text{Rn}$ から生成される $^{222}\text{Rn}$ 娘核種を捕集しその放射能を測定する Decay Chamber 法、Filter Pack 法等がある。

本研究で用いた $^{222}\text{Rn}$ 濃度測定法は後者に属する。試作した T-type Chamber 内で $^{222}\text{Rn}$ から生まれた RaA( $^{218}\text{Po}$ )をフィルム面に静電場で捕集し、フィルム上の $\alpha$ -トラックを計数する。その手順の概略を図 2-10 に示す。

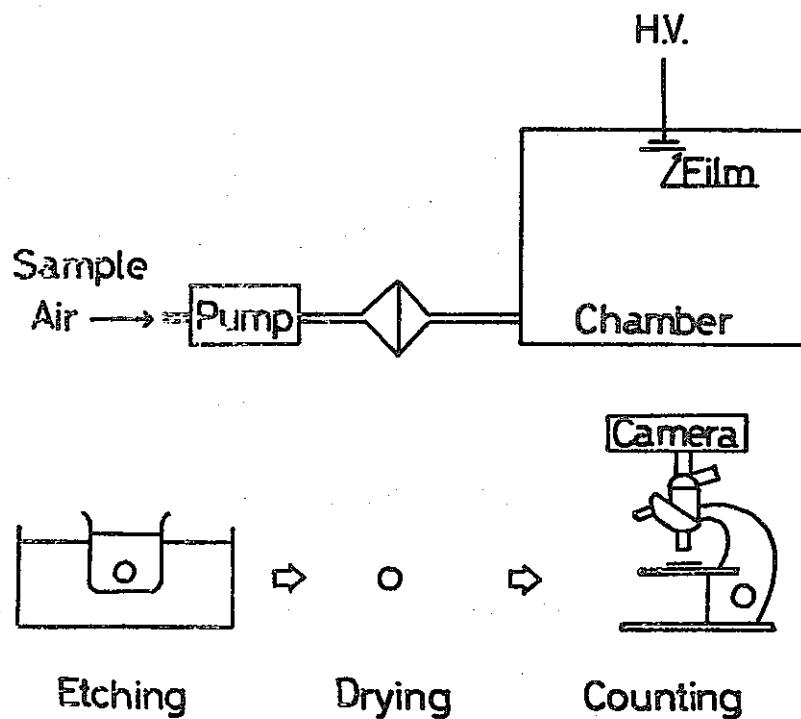


図 2-10  $\alpha$ -トラック法を用いた Rn 濃度測定法

$\alpha$ -トラック法を用いた $^{222}\text{Rn}$ 濃度測定法は、従来の方法に比べ、構造が簡単で、安価、維持が容易である為に、長期連続測定に適している。しかし、測定原理上、 $^{222}\text{Rn}$ 濃度×時間の積分値を得るので、刻々の濃度変化を把握することができない。

$\alpha$ -トラック法は Rn 濃度測定以外に、Rn 娘核種の沈着量を直接測定できる。施設内の床や壁にフィルムを貼り、フィルム上の $\alpha$ -トラックを計数する。この方法により、場所による沈着量の違いを評価できる。

### 2 $\alpha$ -トラック法

$\alpha$ -トラック法は次のような分野で利用されている。ウラン鉱山で働く鉱夫の作業帽に $\alpha$ 用フィルム・バッジとして装着し、個人集積被曝線量を測定している。<sup>1)</sup>また、フィルムをそのまま露出して、井戸などから汲み上げた地下水や、地中

から放出された  $^{222}\text{Rn}$  濃度を測定する方法も報告されている。<sup>2-4)</sup> 他にも、ウラン鉱床探査や、プルトニウム燃料ペレットのプルトニウムのかたよりの調査に用いられている。

## 2-1 フィルムの構造とエッチング理論

$\alpha$ -トラックの検出に用いられたフィルムは Kodak 社 LR115-TYPE II である。このフィルムは  $100 \mu\text{m}$  のポリエスチルの台に、硝酸セルロース (Cellulose Nitrate, 以後 C.N. と略す)  $10 \mu\text{m}$  が赤くコーティングしてある。C.N. の特徴は、光、 $\beta$ 、 $\gamma$  (X)，宇宙線に対して不感であり、通常の温度、湿度の条件下では潜像は変化しない。比重は 1.33，組成は  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_9\text{N}_2$  である。

D.B.Lobett<sup>5)</sup> に依れば、 $\alpha$ 粒子のエネルギーが 3.8 MeV 以下であると、C.N. 内に潜像を作る。図 2-11 で、相対阻止能 0.5 がそのエネルギー 3.8 MeV に対応している。この相対阻止能 0.5 を臨界損傷しきい値とし、この時のエネルギー 3.8 MeV を臨界損傷しきいエネルギーとする。図 2-12 の舟形の部分が潜像を作り得る臨界損傷しきいエネ

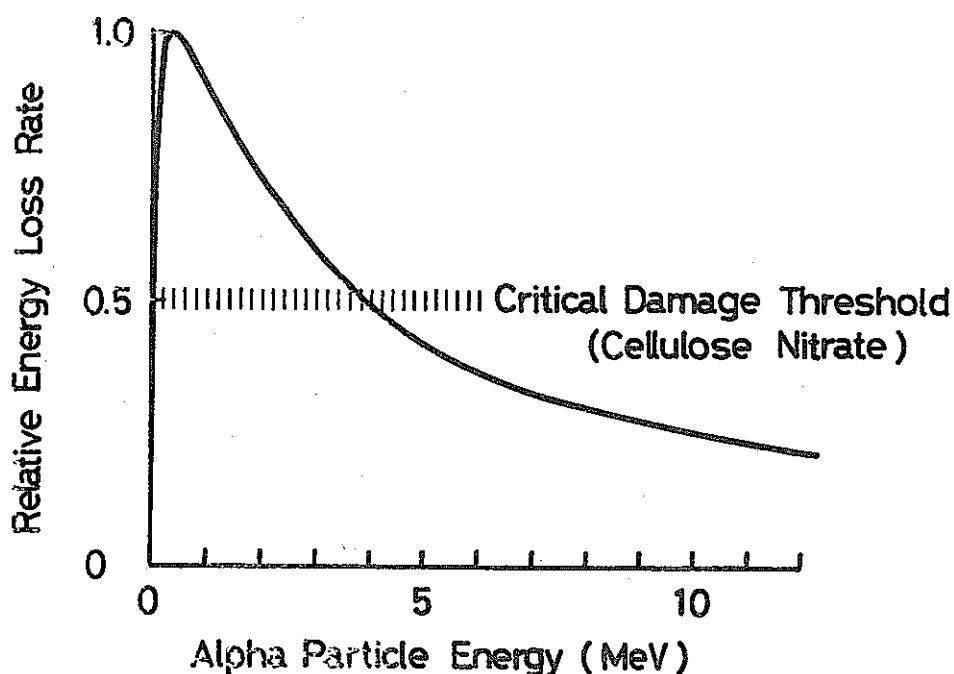


図 2-11 臨界損傷しきいエネルギー

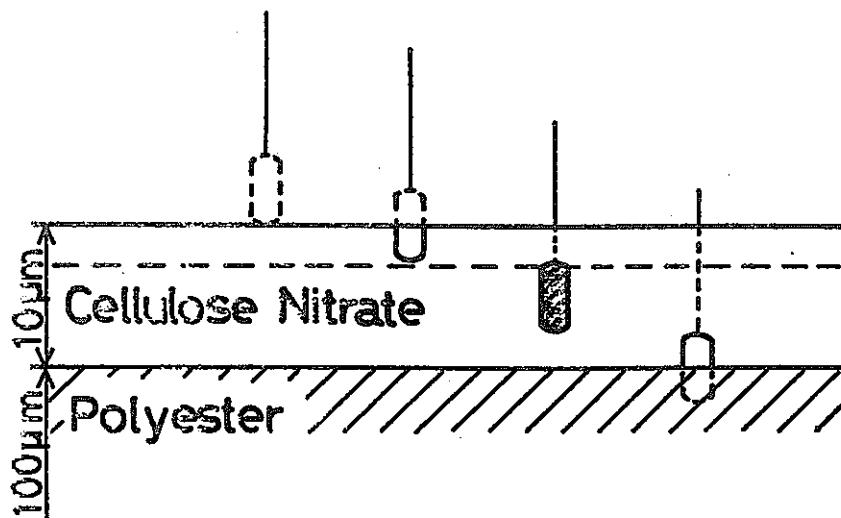


図 2-12  $\alpha$  線の潜像

ルギー以下のエネルギー帯である。黒い部分が潜像であり、これがエッチングされて、目に見える像エッチャピットとなる。尚、エッチングの際、表面部分も一様に浸食される。図2-12のC.N.表面のすぐ下の点線は、エッチング後の表面である。

## 2-2 エッチング方法と検出効率

$\alpha$ 線の潜像のできたC.N.フィルムは2.5 N NaOH溶液を用いて60°Cの温度でエッチングした。フィルム上のエッチャピットは顕微鏡を用いて計数した。一視野のエッチャピットがおよそ50以上の場合、計数しにくいので、顕微鏡写真を撮った。

エッチャピットの大きさや検出効率はエッチング時間に依存する。試作したT-type Chamberで、4日間Rn娘核種を捕集した時に得られる程度のトラック密度のとき、エッチャピットが見やすく、高い検出効率が得られる最適のエッチング条件を実験的に決定した。同程度のトラック密度は、約0.03  $\mu\text{Ci}$  10 $\phi$  の<sup>241</sup>Am標準線源を用い、10分間照射することで得た。<sup>241</sup>Am線源とフィルムの間にアルミ箔(4.5 mg/cm<sup>2</sup>)1枚を入れた。この条件で<sup>241</sup>Amの $\alpha$ 粒子がC.N.表面に入射するエネルギーは、RaAの $\alpha$ 粒子がアルミ箔1枚とマイラ膜(6  $\mu\text{m}$ )1枚で減速されるエネルギーとほぼ等しい。減速材の厚さについては次節で詳述する。

フィルム、減速材、線源を密着して照射し、エッチング時間を変化させてトラック密度を測定した。結果を図2-13に示す。縦軸の検出効率  $\eta_{D,E}$  は次式で求めた。

表2-4 フィルムのエッチング条件

$$\eta_{D,E} = \frac{\text{実際のトラック密度}}{\text{計算した潜像の密度}} \quad (2-42)$$

潜像の密度の計算方法は次節で詳しく述べる。各エッチング時間での検出効率のばらつきは線源面が一様でないことに起因している。検出効率はエッチング時間が90分以上では  $\eta_{D,E} = 0.75$  と一定となった。エッチャピットが最も見易いエッチング時間として、130分を選んだ。表2-4にフィルムの最適エッチング条件を示す。

フィルム名	LR115-TYPE II*
エッチング溶液	2.5N NaOH
エッチング温度	60°C
エッチング時間	130分

\* France Kodak

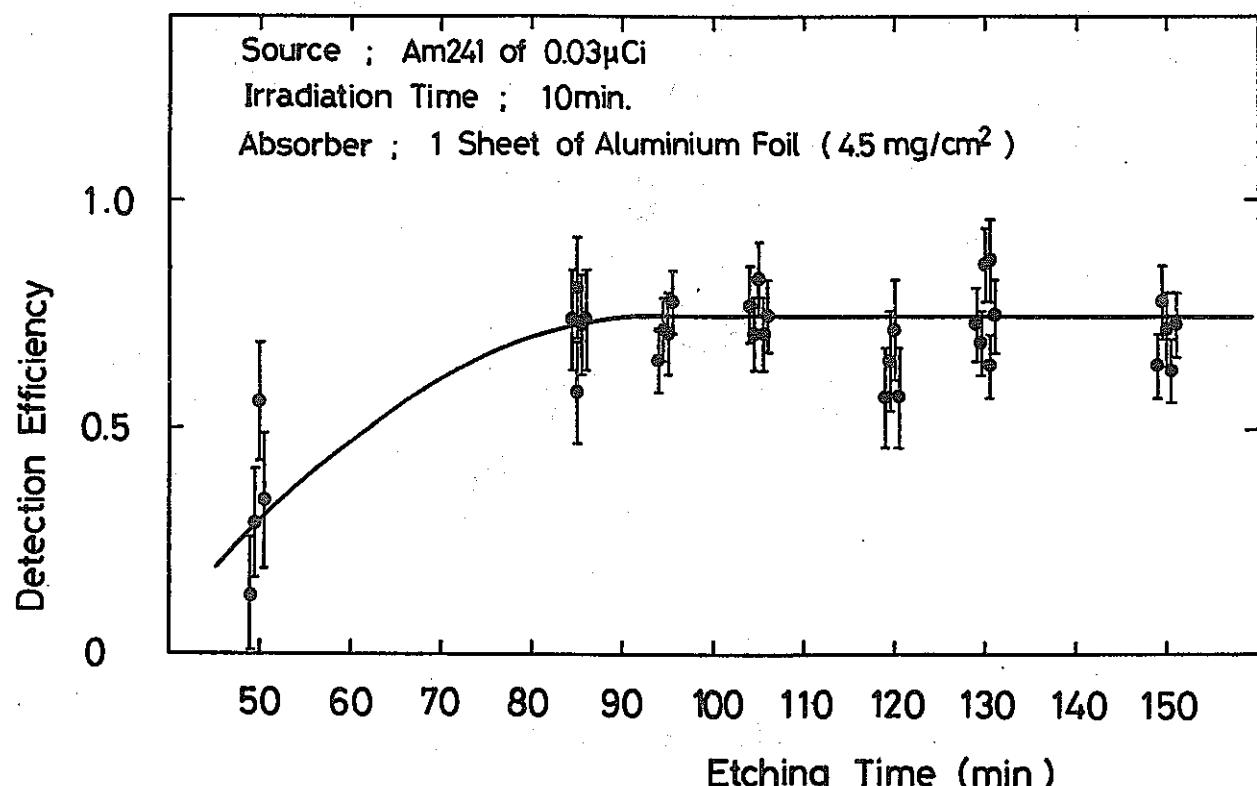


図2-13 エッチング時間と検出効率

### 2-3 減速材の厚さの決定

T-type Chamber を用いて実際に  $Rn$  濃度を測定する場合、最も効率の良いトラック密度を得る為に、減速材の厚さに対してトラック密度の変化を調べた。また、計算を行ない、実験結果と比較、検討を行なった。

#### 2-3-1 実験

濃度  $8.32 \times 10^{-11} \text{ Ci/cm}^3$  の  $^{222}\text{Rn}$  標準線源を、平板間隔 5 cm の平行平板容器に封入した。両平板に 90 V の電圧をかけ、負の平板表面に C.N. フィルムとそれぞれの減速材をセロテープで貼り付けた。減速材は薄い方から順に、マイラ膜 3 枚 (2.4 cm), アルミ箔 1 枚 (2.7 cm), アルミ箔 1 枚 + マイラ膜 1 枚 (3.5 cm), アルミ箔 1 枚 + マイラ膜 3 枚 (5.1 cm), アルミ箔 2 枚 (5.4 cm) である。括弧内は空気換算した厚さである。<sup>6)</sup> 8.5 時間電圧を印加し、 $^{222}\text{Rn}$  娘核種を減速材表面上に捕集した。

容器内で、RaA は  $^{222}\text{Rn}$  から最初  $\text{RaA}^+$  イオンの形で生成される。平行平板に 90 V 印加したとき、負のイオンと再結合せずに負電極に捕集される割合は 85 % である。この割合は 3 章の図 3-2 から求まる。

測定結果を図 2-1-4 の太い曲線で示す。縦軸は  $^{222}\text{Rn}$  1 崩壊あたりのエッチピットとなる確率である。この確率を  $\eta_{\text{Rn}}$  とすると、近似的に次式で表わされる。

$$\eta_{\text{Rn}} = D / (C \times 3.7 \times 10^{10} \times 5 \times t \times 0.85) \quad (2-43)$$

ここで、D は実験で得たトラック密度 ( $\text{cm}^{-2}$ )、C は  $^{222}\text{Rn}$  濃度 ( $\text{Ci/cm}^3$ )、t は捕集時間 (s) である。図 2-1-4 から明らかなように、 $\eta_{\text{Rn}}$  は減速材の厚さ 3.2 cm あたりで極大をとる。この結果より、効率が良くかつ減速材の厚

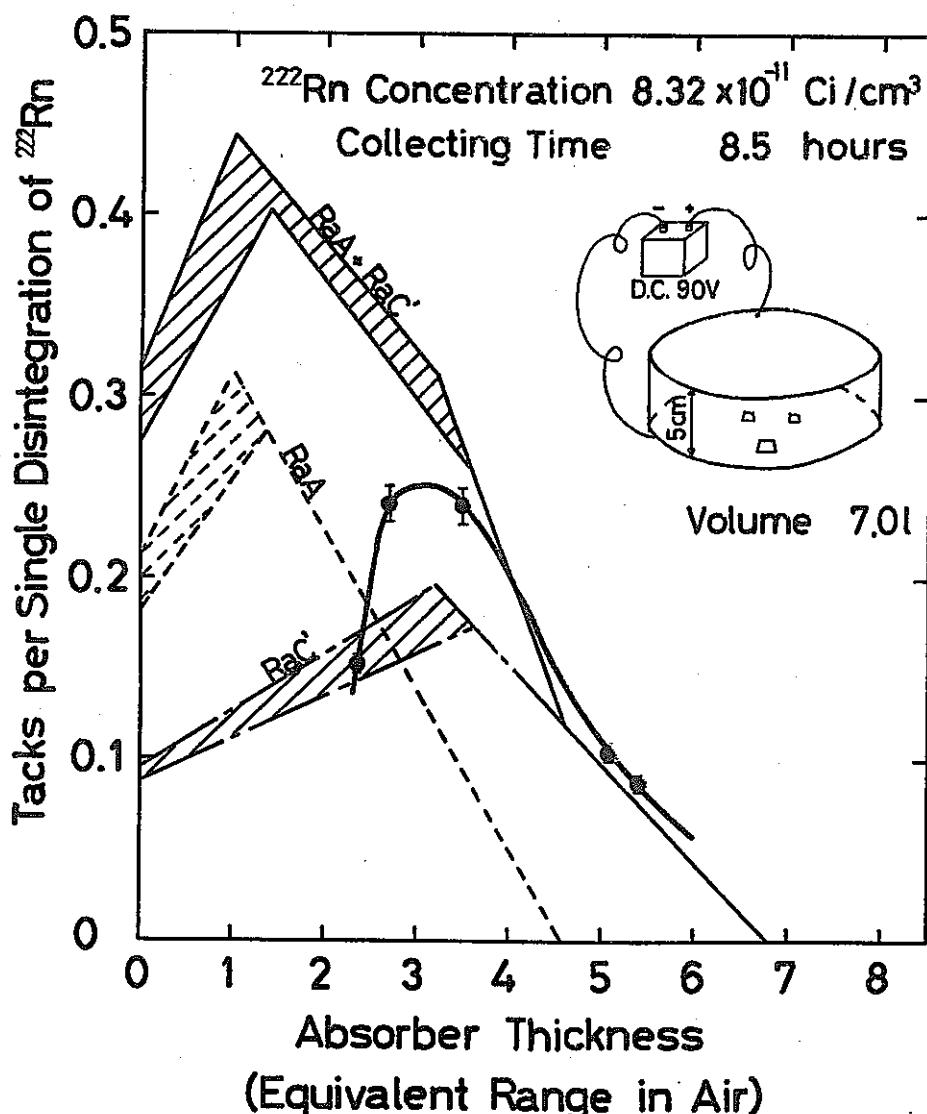


図 2-1-4 減速材の厚さと検出効率

さの多少のむらにも効率の変動が少ないという点から、アルミ箔1枚+マイラ膜1枚(3.5 cm)に減速材の厚さを決定した。このとき、 $\eta_{Rn} = 0.29$ である。

### 2-3-2 計 算

実験結果の信頼性を確かめる為に、計算を行なった。計算にあたって、前述の臨界損傷しきいエネルギーの考え方を用いた。

図2-15で、白丸は $\alpha$ 線源である。その下の線はその $\alpha$ 粒子飛程、舟形の部分は臨界損傷しきいエネルギー以下のエネルギー帯である。白丸に接している水平線は減速材表面で、これからC.N.表面までが減速材の厚さとなる。今、下の左端の図で、減速材表面が(1)の範囲にある時は、中央の(1)に対応する。(2)の場合も同様である。黒い部分が潜像を与える範囲である。

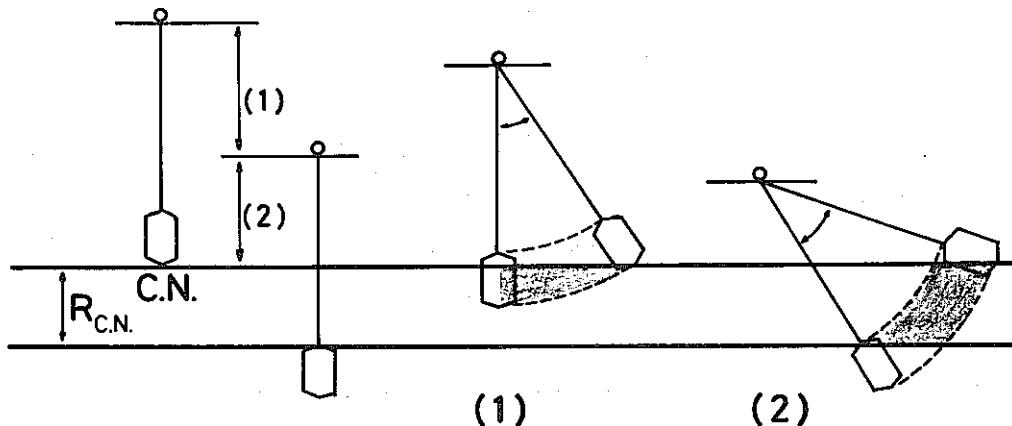


図2-15 潜像のできる範囲

計算は総て空気に換算して行なう。今、 $R$ を $\alpha$ 粒子の空気での飛程、 $R_a$ を空気換算した減速材の厚さ、 $R_{cri}$ を臨界損傷しきいエネルギーの $\alpha$ 粒子の空気での飛程、 $R_{C.N.}$ を空気換算したC.N.の厚さとする。 $R_{cri} = 2.2 \pm 0.2$  cm,  $R_{C.N.} = 1.2$  cmである。

(1)  $R - (R_{C.N.} + R_{cri}) \leq R_a \leq R$  の場合

黒い範囲に入射する確率  $P_1$  は、

$$P_1 = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{R_a}{R} \right) \quad (2-44)$$

となる。検出効率  $\eta_{D.E.}$  を掛けると実際にエッチャピットとして見える確率  $\eta_{Rn}$  となるから、

$$\eta_{Rn}^1 = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{R_a}{R} \right) \cdot \eta_{D.E.} \quad (2-45)$$

となる。

(2)  $0 \leq R_a \leq R - (R_{C.N.} + R_{cri})$  の場合

黒い範囲に入射する確率  $P_2$  は

$$P_2 = \frac{1}{2} \left( \frac{R_a + R_{C.N.}}{R - R_{cri}} - \frac{R_a}{R} \right) \quad (2-46)$$

である。従って

$$\eta_{Rn}^2 = \frac{1}{2} \left( \frac{R_a + R_{C.N.}}{R - R_{cri}} - \frac{R_a}{R} \right) \cdot \eta_{D.E.} \quad (2-47)$$

となる。

フィルムには RaA と RaC' の  $\alpha$  粒子がエッチピットを作るので、各々について計算した。実験で得る  $\eta_{Rn}$  は、 RaA と RaC' によるエッチピットの和である。図 2-14 に、 RaA に依るもの、 RaC' に依るもの、及び両者の和の  $\eta_{Rn}$  を記した。

### 2-3-3 検討

図 2-14 に示す様に、減速材の厚さが空気換算で 4 cm 以上では、計算値と測定結果が良く一致している。しかし、それより薄い範囲では、実験値は計算値よりはるかに低い値を示す。

検出効率  $\eta_{DE}$  は(1)、(2)のどちらの場合も前節の結果から 75%とした。前節の実験は(1)の範囲に相当する。このために、4 cm 以下のずれを生じたものと考えられる。

## 3 $^{222}\text{Rn}$ 放射能の測定

### 3-1 測定装置

装置は図 2-16 に示す様に、ビニール・パイプまでの  $^{222}\text{Rn}$  導入部と、T-type Chamber の  $^{222}\text{Rn}$  娘核種捕集部に大別できる。Rn 濃度を同時に多点で測定できるように、同型の装置を 3 組製作した。

$^{222}\text{Rn}$  導入部は、エアーアポンプ、フィルター、ビニール・パイプより成る。エアーアポンプは押し型の金魚用のポンプである。流量は約 0.5 l/min である。ポンプからの空気はミリポアーフィルターで塵やエアロゾルを取り除かれ、ビニール・パイプに送られる。

気中には  $^{222}\text{Rn}$  と  $^{220}\text{Rn}$  はおよそ 1 対 1 の放射能比で存在する。 $^{220}\text{Rn}$  の半減期は 5.5 秒である。従って、 $^{222}\text{Rn}$  を測定する為に、ビニール・パイプ内で 5 分の滞留時間をとった。この結果、 $^{222}\text{Rn}$  のみが T-type Chamber に送られる。T-type Chamber 内の  $^{222}\text{Rn}$  濃度と外部濃度との対応は、ビニール・パイプ 2.5 l、T-type Chamber 30 l、ポンプ流量～0.5 l/min より、約 6.5 分の遅れである。

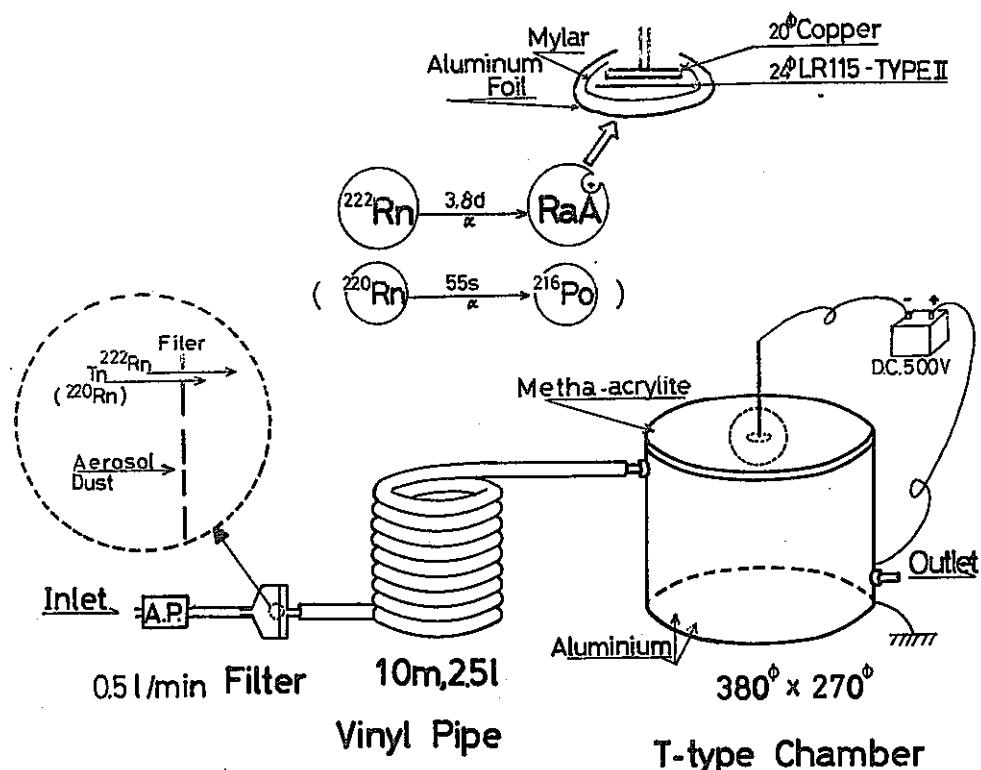


図 2-16  $^{222}\text{Rn}$  放射能測定法

T-type Chamber の形状、材質も、図 2-16 に示した。電極部は次の様に組み立てた。銅板電極にフィルムを両面テープで貼り、その上に減速材のマイラ膜とアルミ箔を被せて固定した。

T-type Chamber の有効容積内で  $^{222}\text{Rn}$  より  $\alpha$ 崩壊した原子状の  $\text{RaA}^+$  イオンを、電界により負電極の減速材上に捕集する。捕集後、エッティングして、顕微鏡で計数する。

### 3-2 基礎特性

T-type Chamber を用いて、 $\text{Rn}$  濃度を測定する前に、以下に述べる基礎特性を調べた。

#### 3-2-1 電圧特性

電圧特性を調べる為に、次の様な実験を行なった。

濃度  $0.5 \text{ pCi/cm}^3$  の  $^{222}\text{Rn}$  標準線源を 3 個試作した内の No.1 の T-type Chamber に封入する。電極に  $24^\phi$  ピニール・シートを両面テープで貼り、1 分間電圧を印加して  $\text{RaA}^+$  を捕集する。1 分後に  $\text{ZnS(Ag)}$  シンチレーション・カウンターで 1 分間計測した。

結果を図 2-17 に示す。印加電圧がおよそ  $1.2 \text{ kV}$  でプラトーに達する。本実験の電圧設定に際し、動燃の Pu 燃施設内に持ちこむ為、安全サイドに重点を置くこと、かつ電池の量を少なくすることを重視した。それ故、 $500 \text{ V}$  と決定した。

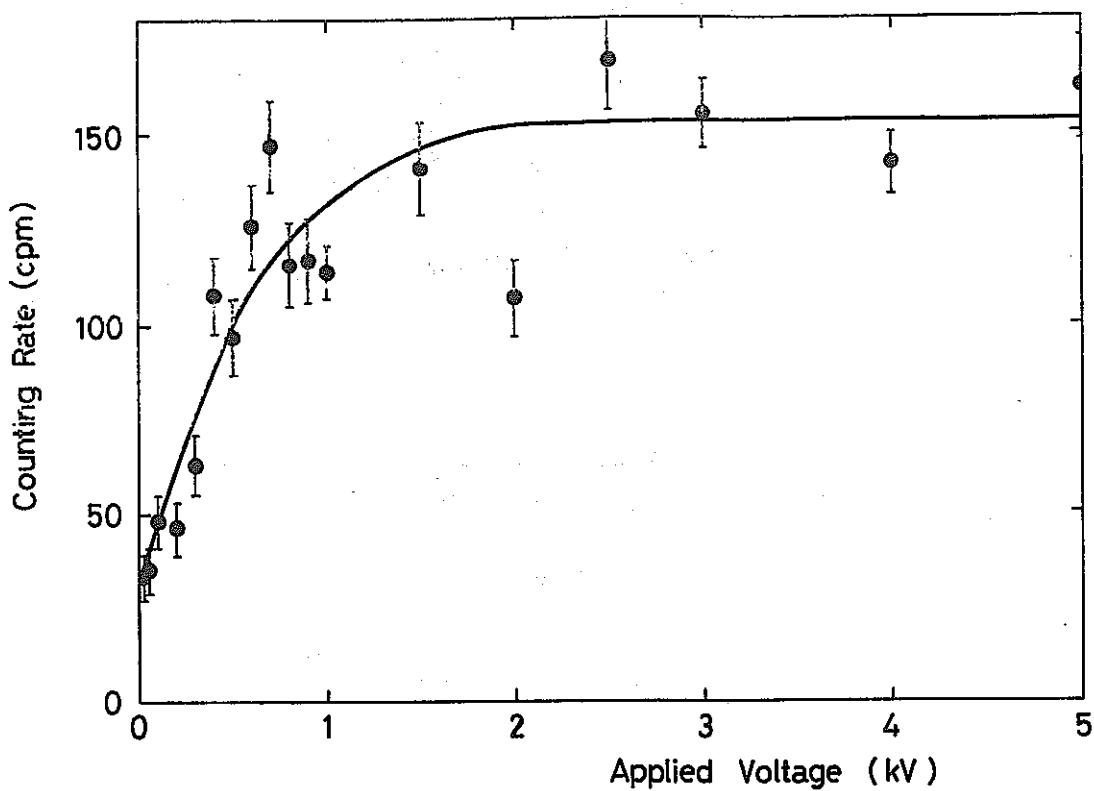


図 2-17 電圧特性

#### 3-2-2 捕集効率

T-type Chamber の捕集効率を調べる為に次の様な実験を行なった。

測定方法は、電圧特性と同じ方法を用いた。3 個の T-type Chamber を直列につなぎ、ポンプで  $^{222}\text{Rn}$  を循環させ、 $\text{Rn}$  濃度を一様にする。ポンプを止めてから 5 分間 3 個同時に  $\text{RaA}^+$  を捕集する。印加電圧は  $4 \text{ kV}$  と  $500 \text{ V}$  の 2 通りの場合を調べた。捕集終了時刻を仮に 0 とする。測定時刻は、No.1 が 1 分～2 分と 5 分 30 秒～6 分 30 秒、No.2 が 2 分 30 秒～3 分 30 秒と 7 分～8 分、No.3 が 4 分～5 分と 8 分 30 秒～9 分 30 秒で、それぞれ 1 分間計測した。1 回の捕集で、1 個の T-type Chamber につき 2 つのデータを得た。このデータから、 $\text{RaA}$  の減衰を考慮して捕集効率を求めた。

結果を図 2-18 に示す。ばらつきが見られ、捕集効率は  $500 \text{ V}$  で  $0.02 \sim 0.08$  である。3 個の器差が表わされている。また、計数時間が経つにつれ、見掛けの捕集効率が増加する。この原因は  $\text{RaB}^+$  も捕集している可能性も考えられる。

るが、現在のところ不明である。

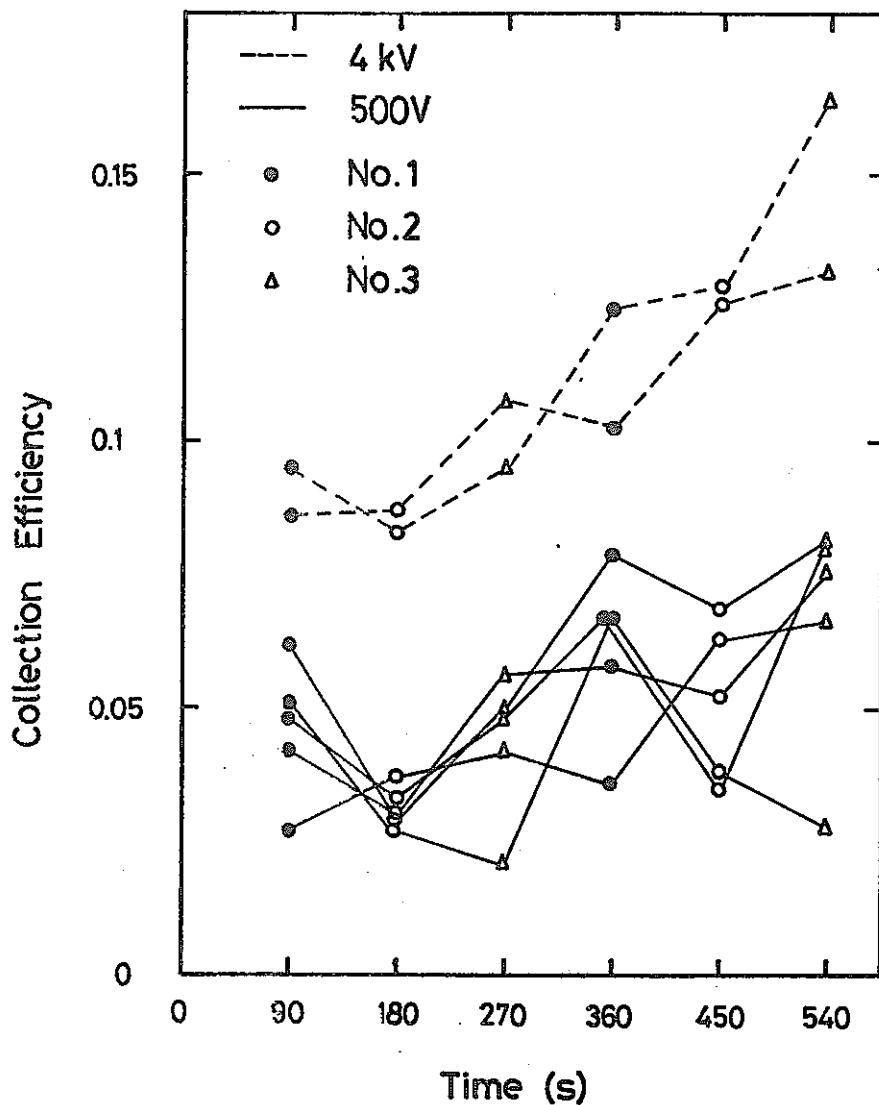


図 2-18 RaA 捕集効率

### 3-2-3 ばらつき

$^{222}\text{Rn}$  濃度×時間積分値における効率のばらつき、及び同一フィルム面での半径方向のトラック密度のばらつきを調べた。

$^{222}\text{Rn}$  標準線源を封入し、3個の T-type Chamber と  $1.5 \ell$  円筒型電離箱を直列にして、ポンプで循環させた後、 $\text{RaA}^+$  を捕集した。フィルムをエッチングした後、トラック密度を Overall な効率として結果を出した。 $^{222}\text{Rn}$  濃度は電離箱で求めた。

T-type Chamber No.1, No.2, No.3 の結果を図 2-19, 2-20, 2-21 に示す。No.1 について  $0 \sim 0.08$ , No.2 は  $0 \sim 0.05$ , No.3 は  $0 \sim 0.06$  というトラック密度の Overall な効率を示した。各積分値の結果をひとつの集合と考えると、集合のばらつきが大きい。同一フィルム面上でも、トラック密度の大きなばらつきが見られる。

尚、Overall な効率  $\eta_A$  は次の様に求めた。

$$\eta_A = D / (C \times 3.7 \times 10^{10} \times V \times t / \pi r^2) \quad (2-48)$$

ここで、D は測定したトラック密度 ( $\text{cm}^{-2}$ ), C は  $^{222}\text{Rn}$  濃度 ( $\text{Ci}/\text{cm}^3$ ), V は T-type Chamber の容積 ( $\text{cm}^3$ )。

$t$  は捕集時間 (S),  $r$  はアルミ箔の半径 (cm) である。

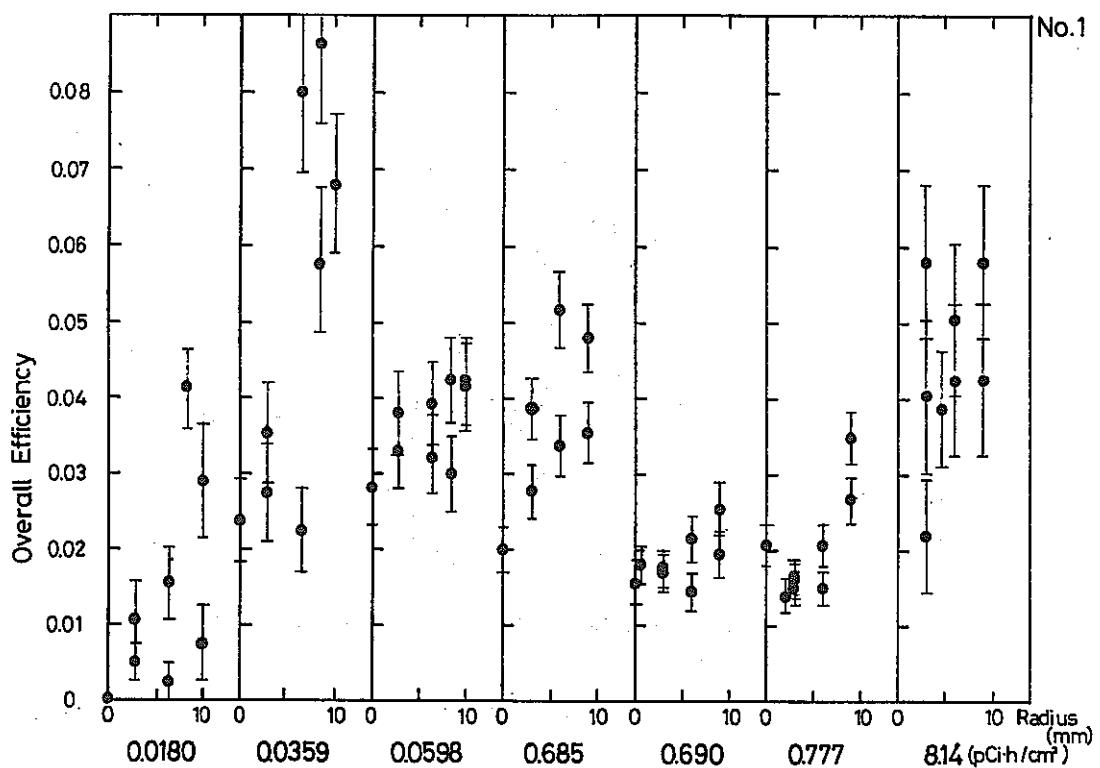


図 2-19 Chamber No.1 の効率のばらつき

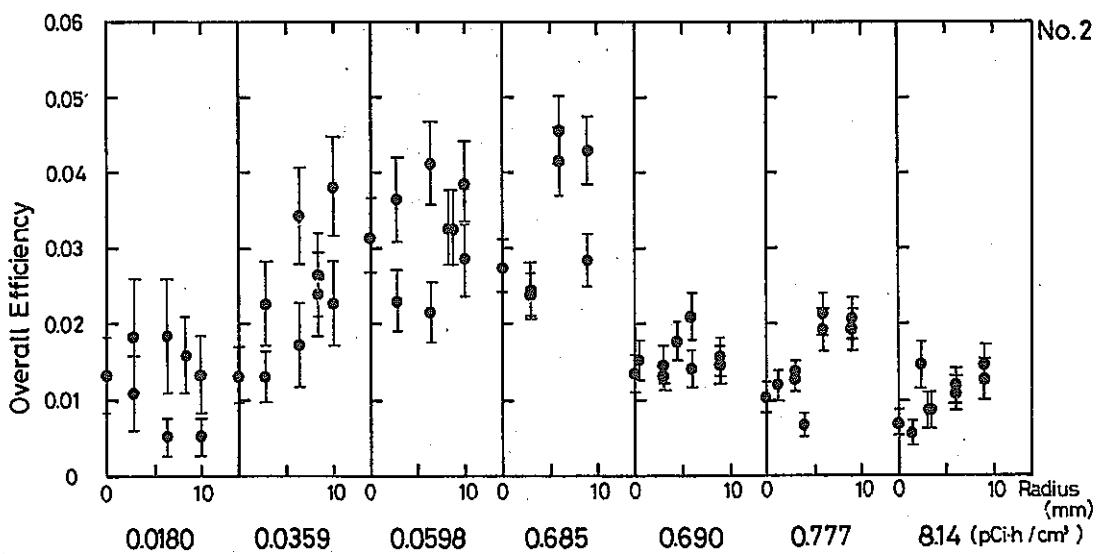


図 2-20 Chamber No.2 の効率のばらつき

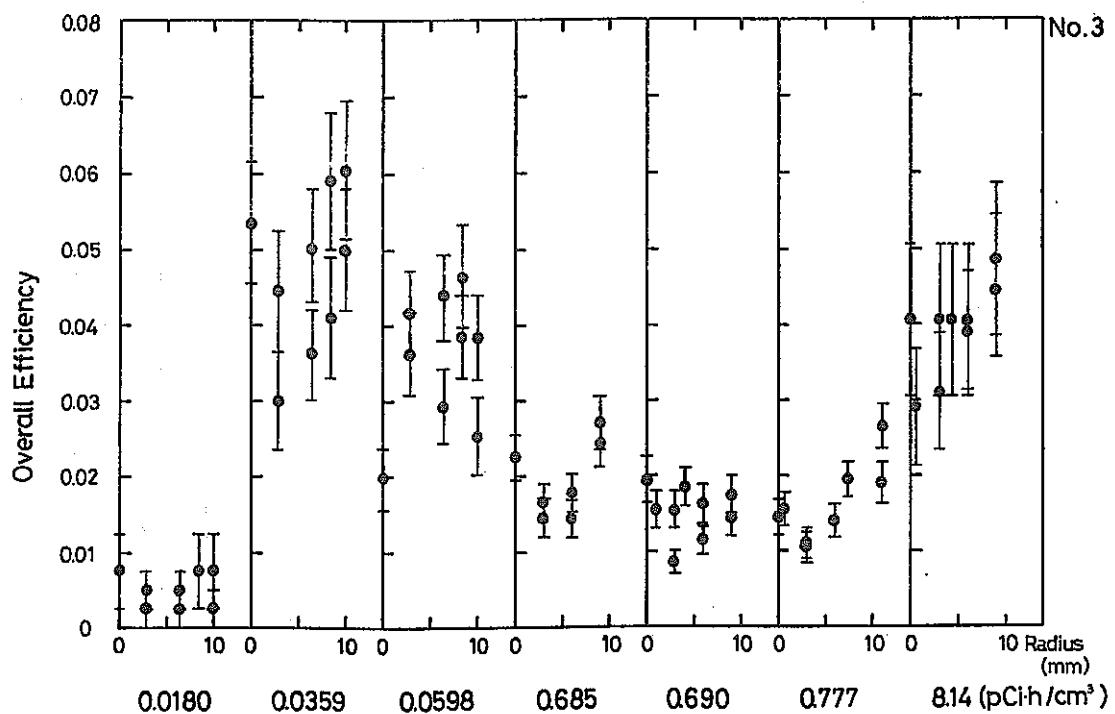


図 2-21 Chamber No.3 の効率のばらつき

### 3-2-4 較正曲線

図 2-19, 2-20, 2-21 のデータより、 $^{222}\text{Rn}$  濃度 × 時間積分値とトラック密度の較正曲線を作成した。トラック密度は算術的平均値である。その誤差は、中央誤差である。直線を求めるにあたり、両対数グラフのため、 $D = \ln C \cdot t + A$  とし、A を算術的平均値とした。

結果を図 2-22 に示す。両対数グラフを用いたにもかかわらず、各点はひとつの直線にのらない。また、3 個の Chamber の直線も 1 本とならず、器差がでている。

### 3-3 基礎特性についての検討

$\alpha$ -トラック法を用いた  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定法には、次のような問題点が存在することが明らかになった。他の測定法に比べ、Overall な効率が低い。フィルム面及び各濃度 × 時間積分値のばらつきが大きい。器差が存在する。

#### 3-3-1 Overall な効率

$\text{RaA}^+$  の捕集効率の測定で 2 ~ 8 %を得た。 $^{222}\text{Rn}$  1 崩壊あたりのトラック数は  $\eta_{\text{Rn}} \approx 0.3$  を得た。上記のふたつの効率を掛け合せた結果が Overall な効率  $\eta_A$  に対応する。即ち  $\eta_A \approx 0.6 \sim 2.4 \%$  となる。トラック密度から得られた実験値  $\eta_A$

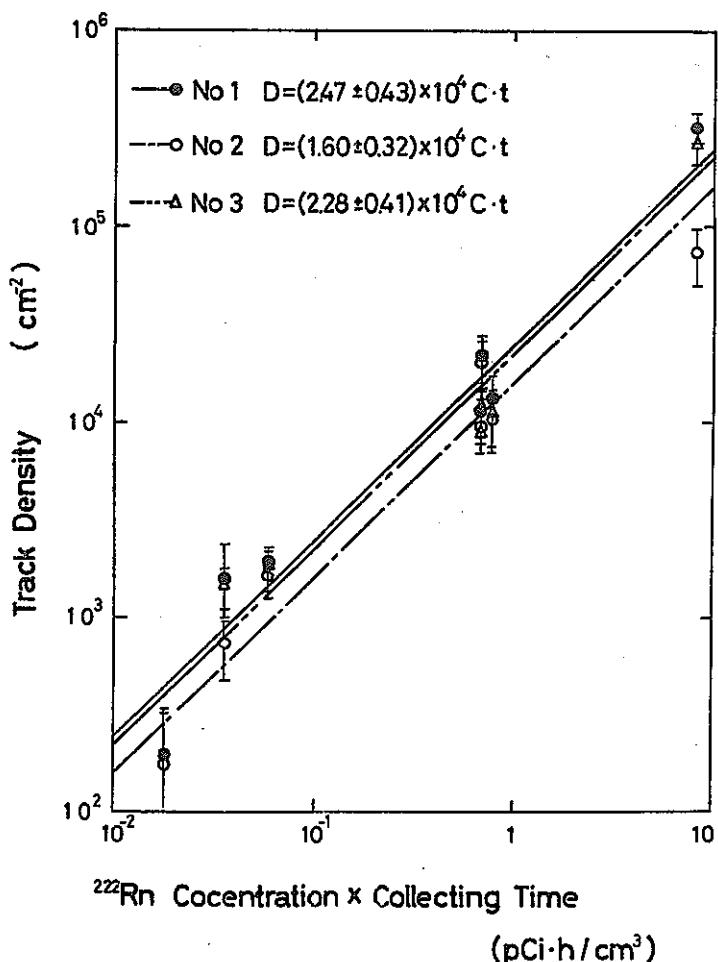


図 2-22  $^{222}\text{Rn}$  濃度 × 時間積分値とトラック密度の較正曲線

$\approx 0 \sim 6\%$ と比較すると、実験値は妥当と考えられる。

$^{222}\text{Rn}$  1崩壊あたりのトラック数  $\eta_{\text{Rn}}$  を高めることは、本質的に無理である。それ故、今後  $\eta_A$  を高めるには、捕集効率を高める必要がある。捕集効率を増加させるには、電極板の位置をかえ、電界のかかる捕集有効容積を増加させる工夫が必要である。

捕集効率の測定の実験の際に、計数が非常に少ないことがあった。これは Chamber のふたがアクリルの為に、帯電し、ゆがんだ電場を作ると考えた。アクリルのふたを表面電位計で測定した結果、およそ +500 V の電位があった。この事より、アクリルのふたは適さない。しかし、ふたを導電体とすると、電場が弱められ、捕集効率は低下する。

### 3-3-2 ばらつきの原因

ばらつきはフィルム面、濃度、時間積分値、各測定器でそれぞれ見られる。

原因としては、減速材の貼り付け方の不均一性、電気力線のかたより、アクリルの帯電作用が考えられる。しかし、確かな原因は今のところ不明である。

減速材の貼り付け方の不均一性は、減速材のアタッチメントを作れば、均一性を保つことができる。電気力線のかたより、アクリル帯電作用は、測定器を改良する場合、検討を要する点である。

### 3-4 $^{222}\text{Rn}$ 濃度測定

昭和55年1月21日から26日まで、動燃のPu燃施設内で試作した T-type Chamber を用いて  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定を行なった。

測定結果を表2-5に示す。図2-22に示した  $^{222}\text{Rn}$  濃度×時間積分値とトラック密度の較正曲線を用いて、 $^{222}\text{Rn}$  濃度を求めた。同時に Filter 法で  $^{222}\text{Rn}$  濃度を測定したので、その結果も表2-5に示す。

$\alpha$ -トラック法を用いた  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定法には多くの問題点が残っているので、現状ではオーダー的に合っているとか言えない。

表2-5 動燃施設内の Rn 濃度測定

	トラック密度 ( $1/\text{cm}^2$ )	捕集時間 (分)	$^{222}\text{Rn}$ 濃度 ( pCi / $\text{cm}^3$ )	
			$\alpha$ -トラック法	フィルター法
No. 1	$1310 \pm 100$	3025	$1050 \pm 250$	$100 \sim 210$
No. 2 A	$12.9 \pm 6.4$	1080	$45 \pm 31$	$1300 \sim 1600$
	$214 \pm 47$	1720	$470 \pm 200$	
C	$2700 \pm 150$	2615	$3900 \pm 1000$	
No. 3 A	$153 \pm 40$	1083	$3700 \pm 1600$	
	$273 \pm 46$	4335	$160 \pm 59$	

## 4 RaA 付着量の測定

### 4-1 床や壁への RaA の沈着

床や壁への RaA の沈着量を求めるため、

図2-23に示すフィルム及び減速材を貼り付けたアクリル板を、床や壁などに貼り一定期間放置する。フィルムのトラック密度から沈着量が求まる。

床や壁などにT秒間放置すると、フィルムのトラック密度Dは

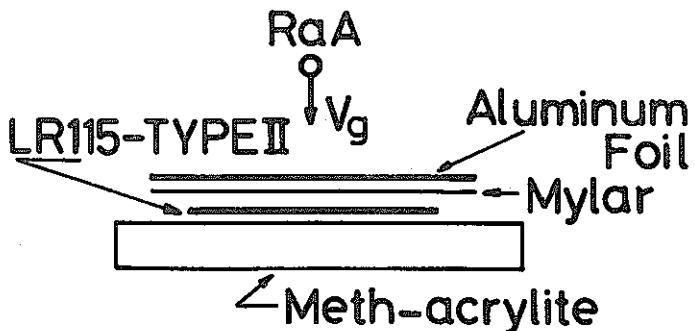


図2-23 RaA 沈着量の測定法

$$D = \eta_{Rn} \cdot \varphi_A \cdot T \quad (2-49)$$

となる。ここで、 $\eta_{Rn}$  は Rn 1 崩壊あたりのトラック数であり、 $\varphi_A$  は free RaA のフラックスで次式で表わされる。

$$\varphi_A = n_A \cdot v_g \cdot f \quad (2-50)$$

ここで、 $n_A$  は RaA の濃度 ( $1/cm^3$ )、 $v_g$  は RaA の平均沈降速度 ( $cm/s$ )、 $f$  は free RaA の割合である。

今、 $^{222}\text{Rn}$  と RaA は放射平衡にあり、 $^{222}\text{Rn}$  濃度  $100 \text{ pCi}/m^3$  とし、 $v_g = 2 cm/s$ 、 $f = 0.1$  とする。1ヶ月捕集した場合、 $\eta_{Rn} = 0.3$  を使うと、

$$D = 150 \quad (1/cm^2) \quad (2-51)$$

という値が導かれる。

動燃で1ヶ月放置し、トラック密度を調べたが、期待する結果は得られなかった。このため、現在1年間放置の実験を続けている。

#### 4-2 静電場に依る RaA の付着

動燃の Pu 燃 A-110 室内の机下の横棒から異常に高い  $\alpha$  計数が認められた。横棒の塗料が絶縁体である為、靴等で擦られ正に帯電して、空気中の  $\text{RaA}^+$  イオンが横棒の表面に捕集されていると予想された。 $\text{RaA}^+$  の捕集機構について詳細な検討は3章で行なう。

減速材と共にフィルムを横棒に貼り付け、42時間15分放置した。結果を表2-6に示す。

サーベイメーターの計数率 C (cpm) から期待されるトラック密度は、

表2-6 静電場に依る Rn 娘核種の付着

机の番号 *	トラック密度 $1/cm^2$
2	$733 \pm 81$
5	$164 \pm 12$
7	$2220 \pm 120$

\* 机の番号は図3-12を参照

$$D = \frac{C}{\eta} \cdot \frac{1}{S} \cdot t \cdot \eta_{Rn} \quad (2-52)$$

である。ここで、 $\eta$  と  $S$  はサーベイメーターの計数効率と有効面積 ( $cm^2$ )、 $t$  はフィルムへの捕集時間 (min)、 $\eta_{Rn}$  は  $^{222}\text{Rn}$  1 崩壊あたりのトラック数である。

机7の  $\alpha$  計数はおよそ 60 cpm であった。式(2-52)に  $\eta = 0.2$ 、 $S = 100 cm^2$ 、 $\eta_{Rn} = 0.3$ 、 $t = 2540 \text{ min}$  を代入すると、

$$D = 2300 \quad (1/cm^2) \quad (2-53)$$

となる。この値は机7の実験値と良く一致している。

## 5 結び

$\alpha$ -トラック法を用いた  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定法は、黒沢ら<sup>7)</sup>によって試みられているが、この研究グループでは新しい試みであり、解決しなければならない問題も多く残っている。しかし、序で述べたように、T-type Chamber を数個多点にばらまき、同一時間内に  $^{222}\text{Rn}$  濃度の測定ができる利点がある。又、2.5 l ビニール・パイプの有無により、 $^{220}\text{Rn}$  放射能の測定も可能である。本年度の研究では、当初の目的としていたエッチング方法の技術は確立できた。今後は、T-type Chamber を改良し、気中の  $^{222}\text{Rn}$  濃度測定法を確立する必要がある。

机下の横棒に集められる  $\text{RaA}^+$  の付着量が、 $\alpha$ -トラック法で比較的正確に求められることが判った。この事から、 $\alpha$ -トラック法は、Rn 娘核種の床や壁への沈着速度を測定する有力な手段となりうるだろう。

## 参考文献

- 1) R.L. Rock, D.B. Lobett, and S.C. Nelson : Health Phys., 16, 617(1969).
- 2) 牧 康行:原子力工業, 24, 41(1978).
- 3) 田中富士雄, 牧野 宏, 牧 康行: Radio isotopes, 27, 34(1978).
- 4) H.A.Khan, R.A.Akber, I.Ahmad, K.M.Bukhari and A.S.Makhani : Rad. Effects, 8, 35(1978).
- 5) D.B.Lobett : Health Phys., 16, 623(1969).
- 6) W.J.Price : 『放射線計測』コロナ社, (1966).
- 7) 黒沢龍平, 山本英明:第16回理工学における同位元素研究発表会 要旨集, P110 (1979).

(飯田孝夫, 鬼頭 修)

## 第3章 偽計数の発生機構

### 1. はじめに

再処理やPu燃施設内では、 $\alpha$ 線用サーベイメーターやHHCモニターがプルトニウム汚染以外の偽計数を示すことがある。偽計数は着衣、グローブ・ボックスのゴムの部分、ビニール面、靴底の土踏まず等の部位に発生している。これらの偽計数の発生を防ぐには、どのような過程で偽計数が発生するか、その機構を知る必要がある。

偽計数は冬期に多く発生している。静電気は絶対湿度の低い冬期に起りやすいため<sup>1)</sup>、偽計数の発生には静電場が関与していると予想される。このような理由で、前年度はRn娘核種静電場捕集器を試作し、実際に静電場で気中に存在するRn娘核種が捕集されうるか模擬実験を行った<sup>2)</sup>。さらに、偽計数の発生する条件として、どの程度の静電場強度とRn濃度が必要か検討を行った。これらの前年度の研究から、着衣、グローブボックスのゴムの部分、ビニール面の部位の偽計数は、(i)摩擦により負に帯電、(ii)帯電部分に気中に存在するRn娘核種を捕集、(iii)偽計数、の過程で発生することが明らかにされた。しかし、靴底の土踏まずに発生する偽計数は靴底の静電場によるRn娘核種の捕集では説明できず、本年度の問題として残された。

本年度は靴底の偽計数の発生機構の解明を主な目的として研究を進めた。最初に静電場によるRn娘核種の捕集効率への環境諸因子の影響を定量的に調べた。次に、靴底の偽計数の発生モデルを考え、模擬実験を行った。最後に、Pu燃施設内の偽計数の発生が報告されている場所で、静電場と $\alpha$ 計数を実測した。その測定結果に基づいて、靴底の土踏まずの偽計数の発生機構を考察した。

### 2. 偽計数の発生条件

動燃の施設内で発生する偽計数は、帯電部位に気中に存在するRn娘核種が捕集されることに起因している。靴底の土踏まずの偽計数は単純に靴底の静電場によるRn娘核種の捕集で発生している可能性は少ない。しかし、中間に静電場によるRn娘核種の捕集過程が存在していることは確かであろう。

気中に存在するRnが $\alpha$ 崩壊したときに生ずるRaA<sup>+</sup>は周囲に電場がなければ、 $\alpha$ 線によって出来たイオンと瞬時に再結合する。電場中で崩壊した場合、RaA<sup>+</sup>がイオンと再結合する割合は電場強度の増加とともに減少する。RaA<sup>+</sup>が帯電部位に到達するまでに、風の影響を受けたり、エアロゾルに付着する可能性がある。それ故、RaA原子が帯電部位に捕集される割合は、その周囲の電場、風速、エアロゾル数等に依存する。

前年度は、Rn娘核種静電場捕集器を試作し動燃の施設内で、静電場強度の違いによるRn娘核種の捕集効率を求めた<sup>2)</sup>。測定結果は、RaA<sup>+</sup>が生まれてからエアロゾルに付着するまで平均10秒間を要するという単純な仮定を基にして計算したRaA<sup>+</sup>捕集効率と良く一致した。しかし、この議論はあまり正確ではない。

本年度は、静電場強度とRaA原子の帶電率の関係を測定し、静電場によって捕集されるRaA<sup>+</sup>の割合を定量的に評価した。さらに静電場によるRaA<sup>+</sup>の捕集効率への風速とエアロゾル数の影響を調べた。

#### 2-1. RaA原子の帶電率

静電場強度が弱くなるに従って、RaA<sup>+</sup>がイオンとの再結合を遁れる割合は減少する。このため、帯電部位の静電場によって捕集されるRaA<sup>+</sup>の割合を定量的に評価するには、静電場強度とRaA原子の帶電率の関係を求める必要がある。

RaA原子の帶電率の測定法を図3-1に示す。RaA<sup>+</sup>原子捕集容器は、極間5cm、直径40cmの2枚の平行平板電極から成っている。負の電極の中心には30mm $\phi$ のアルミ箔が貼り付けてある。気中に存在するRnは、大部分が半減期3.82日の<sup>222</sup>Rnである。しかし、繰り返し測定を行う必要から、実験には半減期が54秒の<sup>220</sup>Rnを用いた。<sup>220</sup>Rnは洗気瓶内の<sup>228</sup>Th溶液をバーリングして容器内に流し入れた。容器の電極間に10分間印加して、ThA又はThB原子の

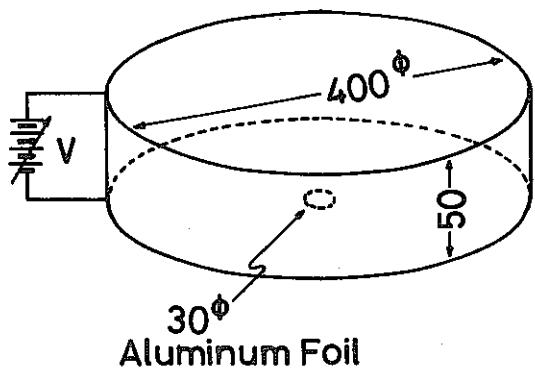


図 3-1 RaA 原子の帶電率の測定法

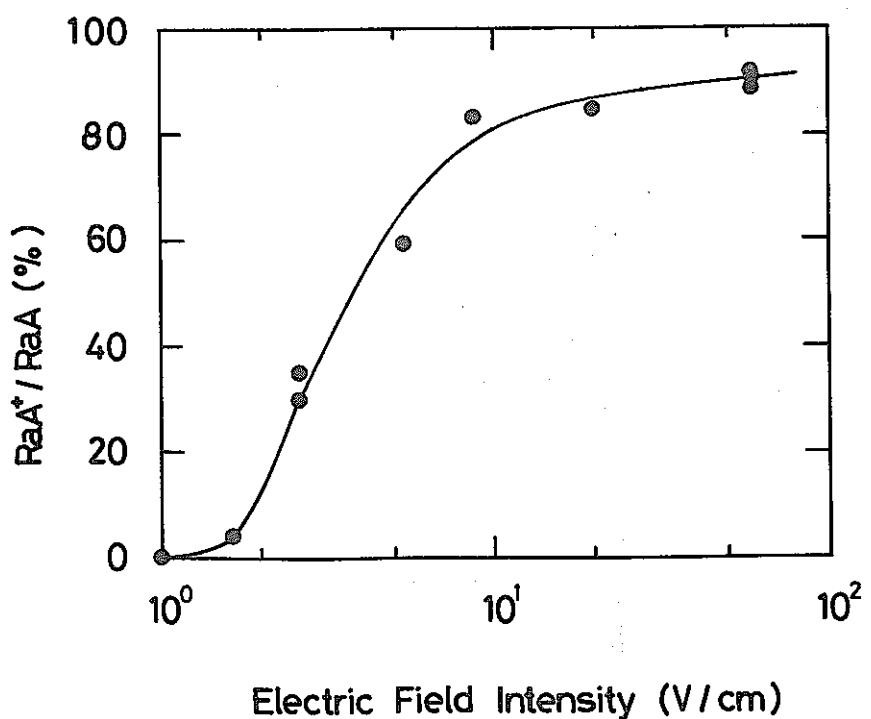


図 3-2 RaA 原子の帶電率

帶電成分を負の電極に捕集した。アルミ箔部分に捕集された  $^{220}\text{Rn}$  娘核種を  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレーション・カウンターで  $\alpha$  計数した。電極間に印加する電圧を変えて測定を繰り返した。 $^{228}\text{Th}$  溶液は  $0.9 \times 10^{-5}$  Ci と  $0.9 \times 10^{-4}$  Ci の 2 種

類を用いた。

得られた結果を RaA 原子の帶電率として図 3-2 に示す。測定結果は  $^{220}\text{Rn}$  濃度、シンチレーション・カウンターの計数効率、流量率等の補正がされている。静電場強度が  $10\text{ V/cm}$  では RaA 原子の約 80% 帯電している。しかし、 $2\text{ V/cm}$  では 10% 低下し、 $1\text{ V/cm}$  では殆んど帶電成分は無くなる。

## 2-2 静電場強度の違いによる Rn 娘核種の捕集効率

実験に用いた Rn 娘核種静電場捕集器を図 3-3 に示す。実験装置及び方法は昨年と殆んど同じである。測定は次の手順で行った：

- (i) 捕集器端子に  $36\text{ mm}\phi$  のビニール・シートを載せる。
- (ii) 10 分間高電圧を印加し、気中の Rn 娘核種を捕集する。
- (iii) ビニール・シート表面の  $\alpha$  放射能を  $\text{ZnS(Ag)}$  シンチレーション・カウンターで 10 分間計数する。

測定は名古屋大学の研究室内で行った。測定結果を図 3-4 に示す。計数誤差を減らすため繰り返し測定を行った。図 3-4 に示すように結果は昨年と同じく、印加電圧を増すにつれ Rn 娘核種の捕集効率は増加する。

Rn 娘核種のうち、 $\text{RaA}^+$  がどの範囲から実効的に静電場捕集器に集められているか検討を行った。室内的 Rn 濃度は測定中  $400 \sim 500\text{ pCi/m}^3$  と一定であった。使用した  $\text{ZnS(Ag)}$  シンチレーション・カウンターの計数効率は約 10% であった。Rn 娘核種捕集器で 10 分捕集した直後の  $\alpha$  計数は、図 3-4 の結果を外挿して求めた。

気中の Rn 濃度を  $\text{NCi/m}^3$  とする。Rn 娘核種捕集器の周りの容積  $\text{Um}^3$  から実効的に  $\text{RaA}^+$  を捕集器に集めているとする。10 分捕集直後、捕集器端子の RaA 濃度は  $0.897\text{ N.U}$  である。10 分捕集直後の  $\alpha$  計数  $C/\text{s}$  のうち、RaA の  $\alpha$  線は約 98% に相当する。実効捕集容積  $U$  と  $\alpha$  計数の関係は

$$U = \frac{0.98 C}{0.897 N \cdot \epsilon} \quad (3-1)$$

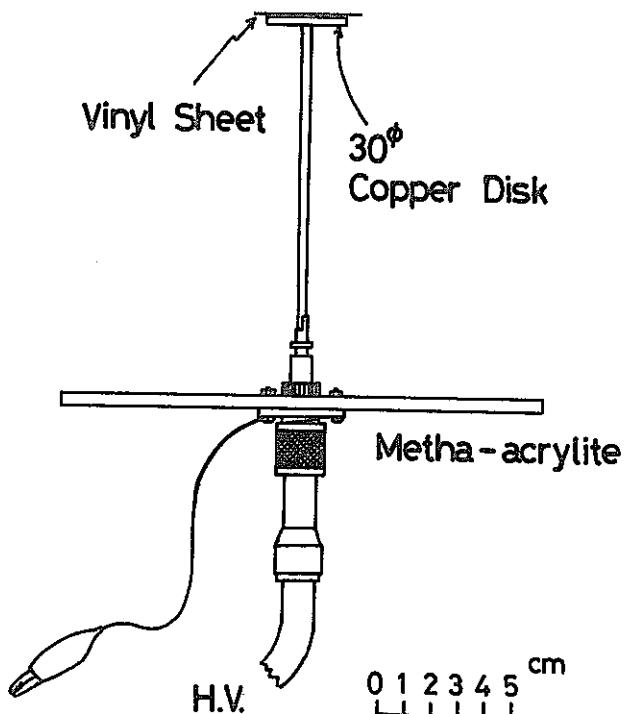


図 3-3 Rn 娘核種静電場捕集器

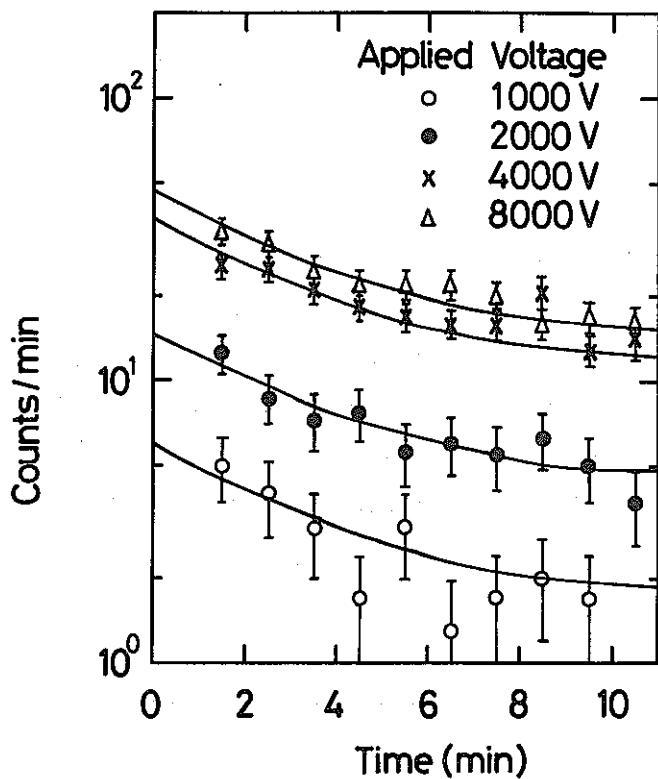


図3-4 静電場強度の違いによるRn娘核種の捕集効率

表3-1 Rn娘核種捕集器の実効捕集容積

印加電圧	名古屋大学		動燃		捕集容積 (計算値)
	$\alpha$ 計数	捕集容積	$\alpha$ 計数	捕集容積	
-1000 V	6 cpm	0.07 m <sup>3</sup>	9 cpm	0.15 m <sup>3</sup>	0.011 m <sup>3</sup>
-2000	15	0.16	20	0.33	0.030
-4000	37	0.40	40	0.66	0.086
-8000	47	0.51	50	0.82	0.57

で与えられる。ここで、 $\varepsilon$  はシンチレーション・カウンターの計数効率である。各数値を(3-1)式に代入して計算を実行すると、表3-1に示す実効捕集容積を得る。比較のため、昨年動燃施設内で行った実験結果も示す。動燃で得た捕集容積は約2倍大きい。この差の原因はエアロゾル数の違いに依ると思われる。

Rn娘核種捕集器の周りの静電場強度と図3-2に示したRaA原子の帶電率から、RaA<sup>+</sup>の実効捕集容積が計算できる。捕集器端子の円盤の周りの電場は近似的に次式で与えられる<sup>3)</sup>

$$E \approx \frac{2 a V_0}{\pi r^2} \quad (3-2)$$

ここで、 $a$  は円盤の半径、 $r$  は円盤から測定点までの距離である。この近似は  $r$  が 10 cm 以上では誤差 1 %以下の精度で正しい。 $\eta(E)$  を電場強度  $E$  のときの RaA 原子の帶電率とすると、RaA<sup>+</sup> の実効捕集容積は

$$U = \int_0^\infty 2\pi r^2 \cdot \eta(E) \cdot dr \quad (3-3)$$

で与えられる。この式を数値積分して得た結果も表3-1に示す。計算値は測定結果と比較して、8000V以外1桁低い。この原因として、室内で実験を行っているため捕集器の周りの電場強度は(3-3)式より強い可能性がある。又、RaA<sup>+</sup>原子の帶電率がRn濃度によって変動する可能性も考えられる。

## 2-3 静電場によるRaA<sup>+</sup>以外の核種の捕集

Rn娘核種静電場捕集器に捕集されるRn娘核種の $\alpha$ 計数曲線を図3-4に示した。この曲線はRaA<sup>+</sup>だけを捕集している $\alpha$ 計数の予想曲線より減衰が遅い。この原因として、RaA以外のRn娘核種RaB, RaCも捕集されていると予想される。これらの核種が捕集される機構として：(i) RaB, RaCが付着しているエアロゾルの捕集、(ii)エアロゾルに付着しているRaAやRaBが崩壊するとき、反跳で生成されるRaB<sup>+</sup>, RaC<sup>+</sup>の捕集、の可能性がある。帶電しているエアロゾルの易動度はRaA<sup>+</sup>等に比べて3桁程小さい。このため、(i)の過程の静電場によるエアロゾルの捕集は非常に少ないと予想される。RaAは $\alpha$ 崩壊するのに対してRaBは $\beta$ 崩壊するので、反跳で生成される帶電成分はRaCよりRaBの方が多いと考えられる。

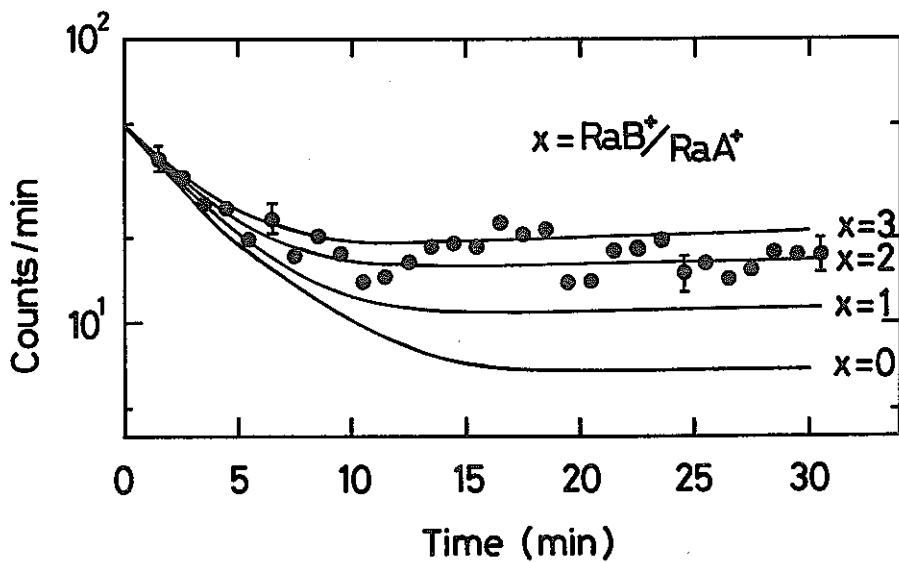


図3-5 静電場によるRaA<sup>+</sup>以外の核種の捕集

RaA以外のRn娘核種がどれだけ捕集されているか定量的に評価するため測定を行った。Rn娘核種の捕集法は同じであるが、捕集後の $\alpha$ 計数を長時間追跡した。測定結果を図3-5に示す。Rn娘核種捕集器にRaA<sup>+</sup>とRaB<sup>+</sup>が捕集されていると仮定して、 $\alpha$ 計数の予想減衰曲線を計算した。図3-5で実線は、捕集されたRaB<sup>+</sup>とRaA<sup>+</sup>の比が0, 1, 2, 3のときの減衰曲線を示す。この比が2のときの曲線が測定結果と良く一致している。

前に述べたように、RaAの捕集機構はRnが $\alpha$ 崩壊したときに生成されるRaA<sup>+</sup>成分が静電場で捕集される。RaBも同様な機構で捕集されていると考えられる。RnとRn娘核種が気中で放射平衡にあると仮定しても、RaBとRaAの捕集される比は1を越えないであろう。以上の議論から測定結果を説明するには、RaA以外にRaB, RaCの両核種が捕集されていると考えなければならない。

## 2-4 風速と捕集容積

Rn娘核種捕集器の周りに風がある場合には、Rnが $\alpha$ 崩壊して生成されるRaA<sup>+</sup>は捕集器端子に到着するまでに風の

影響を受ける。このため、Rn 娘核種の実効捕集容積は減少すると予想される。

風速によって Rn 娘核種の捕集効率がどのように変化するか、実験で定量的に評価するのは困難なので、計算で行った。RaA<sup>+</sup> 原子が(3-2)式で表わされる電場の中を速度 v cm/s で移動しているとき、どのような軌跡を描くか計算した。RaA<sup>+</sup> の易動度を  $2(\text{cm}/\text{s})/(V/\text{cm})$  とした。計算は捕集器端子の印加電圧を -4000V、風速 5, 10, 20, 50, 100 cm/s の場合について行った。結果を図 3-6 に示す。各々の風速で、曲線の外側の領域に存在する RaA<sup>+</sup> は捕集されない。

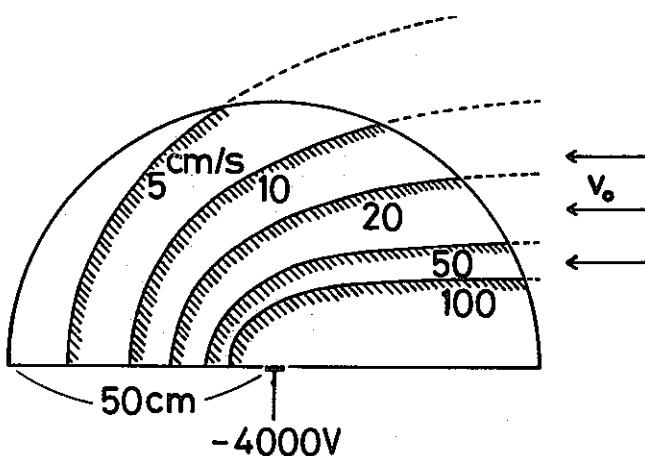


図 3-6 風速による捕集容積の変化

表 3-2 風速と捕集容積

風の無いときの実効捕集容積は表 3-1 に示した。測定結果から、捕集器端子に -4000V 印加したときの実効捕集半径は約 50 cm である。実効捕集半径の内側の RaA<sup>+</sup> は総て捕集され、外側は捕集されないと仮定すれば、風速による捕集効率の影響を評価できる。各々の風速で、捕集されうる範囲は図 3-6 の斜線部分に相当する。この仮定に基づいて数値計算した結果を表 3-2 に示す。風速が 100 cm/s のとき、実効捕集容積は約  $1/5$  に減少する。この計算結果は、昨年度動燃の施設内で行った Rn 娘核種の捕集効率と風速の関係を定性的に良く説明している。

風速	捕集容積
0 cm/s	0.262 m <sup>3</sup>
5	0.219
10	0.153
20	0.105
50	0.064
100	0.044

## 2-5 エアロゾル数と Rn 娘核種の捕集効率

エアロゾルが存在する雰囲気中では、RaA<sup>+</sup> が Rn 娘核種捕集器端子に到着するまでにエアロゾルに付着する可能性がある。エアロゾル数の増加とともに付着確率は増加し、Rn 娘核種の実効捕集容積が減少すると予想される。

名古屋大学の研究室内で、エアロゾル数に対する Rn 娘核種の捕集効率を求めた。エアロゾルは燃焼により発生させた。エアロゾル数は凝結核測定器(ポラック・カウンター)を用いて測定した。測定中、同時に Rn 濃度も測定した。研究室内的バックグラウンド・エアロゾル数は  $1.3 \times 10^4 / \text{cm}^3$  であった。測定結果を図 3-7 に示す。測定はエアロゾルを発生さ

せ、エアロゾルの減少過程で行った。即ち、図3-7に示すA, B, F, E, D, Cの順序で行った。測定中、Rn濃度は次第に増加し、Cの測定の時最大となった。しかし、Rn濃度は最大と最小で1.6倍違うだけで変動は小さい。

図3-7から明らかなように、Rn娘核種の捕集効率はエアロゾル数と逆比例関係にある。捕集効率の減少はRn濃度変動より大きい。エアロゾル数が $10^5/\text{cm}^3$ のときの捕集効率は $1.3 \times 10^4/\text{cm}^3$ のバックグラウンド・エアロゾル数のときの $1/10$ に低下している。

動燃の施設内では除塵フィルターを通した空気で換気を行っているため、エアロゾル数が少ない。このような雰囲気中では、Rn娘核種の捕集効率は増加すると予想される。

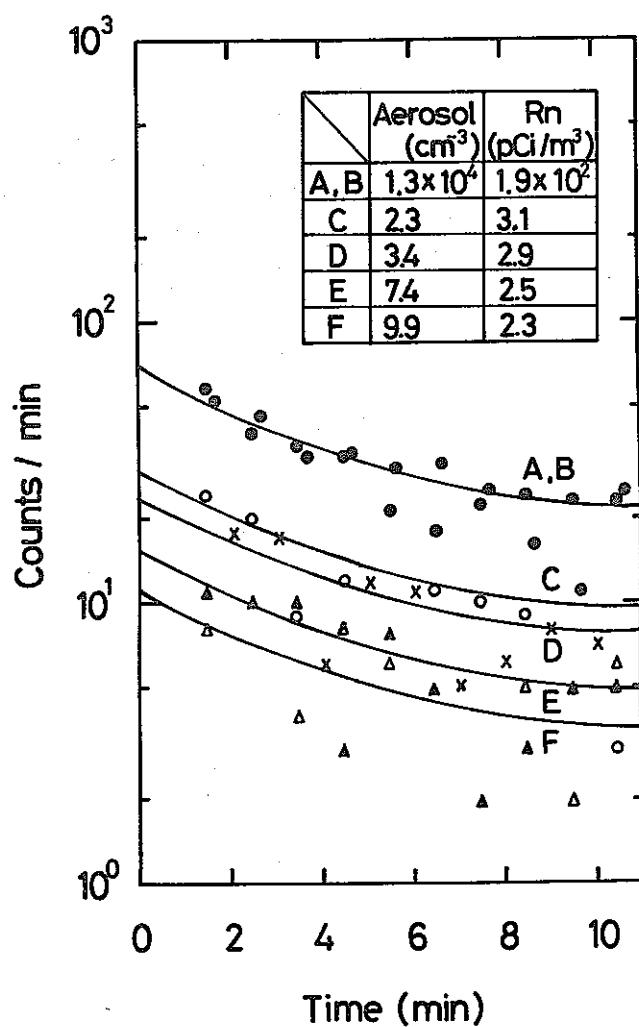


図3-7 エアロゾル数とRn娘核種の捕集効率

### 3. 靴底に発生する偽計数の模擬実験

靴底の土踏まずに発生する偽計数は、昨年度解明できない問題として残された。この偽計数の発生機構を解明するため、予想される偽計数の発生モデルを考えた。モデル通りに偽計数が発生するかどうか可能性を検討し、名古屋大学の研究室内で模擬実験を行った。

#### 3-1 靴底の偽計数の発生モデル

動燃の施設内で発生している靴底の土踏まずの偽計数の強さは100~200 dpmである<sup>2)</sup>。Rn濃度は動燃の施設内で約

$150 \text{ pCi/m}^3$  ( $330 \text{ dpm/m}^3$ ) である。靴底の偽計数は、気中に存在する Rn から生成される Rn 娘核種が何らかの過程で靴底の土踏まずに捕集されることにより発生している。靴底に  $100 \sim 200 \text{ dpm}$  の偽計数を発生するには、靴底が実効的に  $0.3 \text{ m}^3$  の容積に生成される Rn 娘核種を捕集し続けている必要がある。偽計数の発生は稀な事象であるので、その時の Rn 濃度は通常の 10 倍以上の高濃度になっていると予想される。それ故、Rn 娘核種を捕集するのに必要な実効容積は上述の  $1/10$  以下 ( $0.03 \text{ m}^3$ ) で良い。

施設内の気中に存在する Rn から生成される Rn 娘核種がどのような機構で靴底の土踏まずに捕集、又は沈着するか、モデルを考えた。その偽計数の発生モデルのフロー・チャートを図 3-8 に示す。偽計数の発生モデルの第 1 は、気中 Rn から生成される Rn 娘核種が靴底の負の帯電部位の土踏まずに静電場で捕集され、靴底に偽計数が発生する機構である。このモデルは昨年度も簡単に検討を加えた。発生モデルの第 2 は、気中に生成される Rn 娘核種が床へ沈着し、靴底の土踏まずの静電場で捕集され、靴底に偽計数が発生する機構である。第 3 のモデルは、床へ沈着した Rn 娘核種が歩行中に靴底に付着し、さらに土踏まずに移動して蓄積され、靴底に偽計数が発生する機構である。

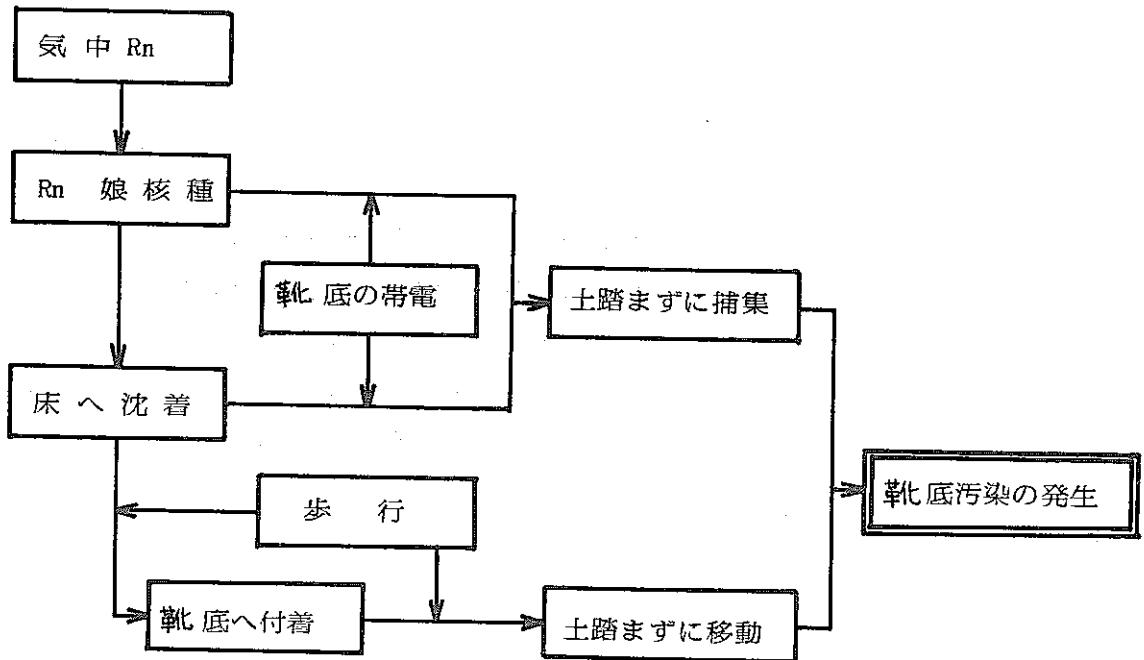


図 3-8 靴底の偽計数の発生モデル

これらの偽計数の発生モデルに対して、理論的な検討と模擬実験を行った。

### 3-2 靴底の静電場による Rn 娘核種の捕集

靴底の土踏まずの静電場による Rn 娘核種の捕集については、昨年度の報告書で簡単な検討を行った<sup>2)</sup>。今年度は、この機構についてさらに詳しい検討を行い、簡単な模擬実験を行った。

動燃の Pu 燃施設内で行われた靴底の帯電分布の調査結果を表 3-3 に示す。靴底の各部位の名称を図 3-9 に示す。靴底の帯電分布は宍戸のスタチロン M 表面電位計で測定した。表 3-3 から判るように、土踏まずの部分は殆んど負に帯電している。その他の部位は踵の 1 例を除いて、総て正に帯電している。

靴底の帯電分布の調査結果から、靴底の静電場による Rn 娘核種の捕集モデルは魅力があるように思われる。前に議論したように、靴底に偽計数を発生するには、靴底が実効的に  $0.3 \text{ m}^3$  内に生成される Rn 娘核種を総て捕集する必要がある。靴底の静電場により Rn 娘核種が歩行中に捕集される量を定量的に評価するため、次の仮定をした：(a) 土踏まずの帯電

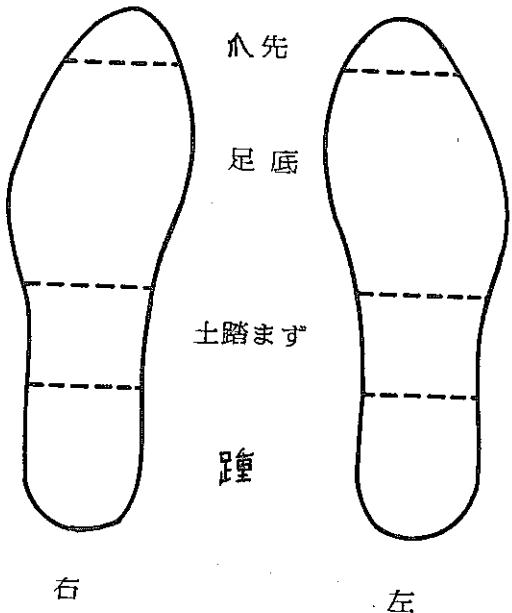


表 3-3 靴底の帯電分布調査

部位 No.	爪先		足踏	土踏 まず	踵	
	右	左	+ 2 kV	+ 1 kV	+ 1 kV	+ 2 kV
1	右	+ 2		+ 0.9	+ 4	+ 2
	左	+ 2				
2	右	+ 2	+ 1.5		- 0.8	+ 4
	左	+ 2	+ 1		- 1	+ 4
3	右	+ 0.6	+ 0.4		- 0.2	- 0.6
	左	+ 1	+ 0.5		- 1	- 0.3
4	右	+ 3	+ 0.1		- 2	+ 4
	左	+ 2	+ 1		- 4	+ 4

図 3-9. 靴 底

部分の大きさは  $30\text{mm}\phi$  で、 $-4000\text{V}$  に帶電している。(b) 土踏まず以外の部位の正の帶電の影響を無視する。(c) 歩行中、靴を 0.5 秒間上げ静止している。(d) 靴は床面に対して直角に上がり、靴の移動を無視する。(e) 床面の電荷を無視する。

靴底の静電場による  $\text{Rn}$  娘核種の捕集の模式図を図 3-10 に示す。 $\text{Rn}$  娘核種が 0.5 秒以内に土踏まずに到達しうる最大距離は 33cm である。しかし、 $\text{Rn}$  娘核種の捕集は 0.5 秒間隔で継続しているため、この範囲に生成される  $\text{Rn}$  娘核種が総て捕集されるわけではない。静電場中での  $\text{RaA}$  原子の帶電率を考慮して数値計算した。実効捕集容積は約  $0.002\text{m}^3$  であった。この値は偽計数を発生させるのに必要な実効捕集容積の  $1/10$  以下である。通常の歩行では、1 秒間に 2 歩以上であり、靴を上げている時間も 0.5 秒より短かく、 $90^\circ$  も上がらない。土踏まず以外の部位の正の帶電により、土踏まずの

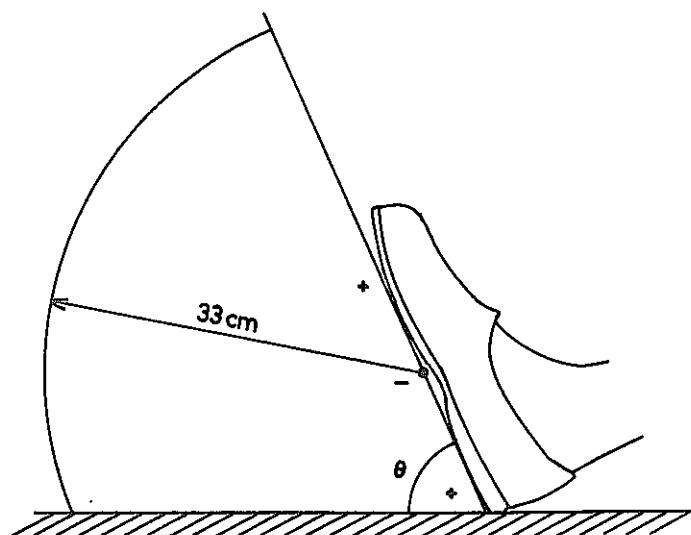


図 3-10 靴底の静電場による  $\text{Rn}$  娘核種の捕集

負の静電場は計算より広がりが小さくなる。靴は歩行により移動している。このような理由で、実効捕集容積はさらに減少する。以上の検討から、静電場による捕集は考えられない。

靴底の形をした装置を製作し模擬実験を行なった。土踏まずに相当する部位に  $30\text{ mm}\phi$  の銅電極を取り付け Rn 娘核種を捕集した。電極部分に  $\alpha$  計数は観測されなかった。

### 3-3 床に沈着した Rn 娘核種の靴底への移動

Rn 娘核種が靴底の静電場で捕集され、靴底に偽計数が発生する第1のモデルはありえないことが判った。第2、第3のモデルは床に沈着した Rn 娘核種が靴底へ移動し蓄積されて、偽計数が発生する機構である。次に、これらの機構について理論的な検討を行い、実際に偽計数が発生するか模擬実験を行った。

最初に、これらの発生モデルで実際に土踏まずに偽計数が発生するには、どのような仮定が必要か検討を行う。

靴底の面積は約  $0.01\text{ m}^2$  である。偽計数の発生する室の大きさを  $10\text{ m} \times 3\text{ m} \times 5\text{ m}$  の内容積  $150\text{ m}^3$ 、内面積  $190\text{ m}^2$  とする。気中に生成される Rn 娘核種の約 0.5 が床を含む壁面に沈着すると仮定する。歩行中1歩ごとに、床に沈着している Rn 娘核種が、床から足底に移動し、さらに土踏まずに移動する割合を約 0.1 と仮定する。この仮定をすれば、歩行ごとに土踏まずに Rn 娘核種が蓄積される。一方、踵と足底は歩行ごとに床面に接するため、付着と脱着が平衡になる以上は Rn 娘核種は蓄積されない。

Rn 娘核種の床への沈着率と床から土踏まずへの移動する割合を仮定すると、靴底への Rn 娘核種の蓄積量が計算できる。気中の Rn 濃度が  $1500\text{ pCi/m}^3$  と通常より 10 倍高いとき、床への Rn 娘核種の沈着率は  $1300\text{ dpm/m}^2$  である。

200 歩あるいた場合、土踏まずへの Rn 娘核種の蓄積量は  $130\text{ dpm}$  となる。計算上は靴底の偽計数の発生の可能性がある。

偽計数が発生するには、仮定した Rn 娘核種の床への沈着率と床から土踏まずへの移動率が存在していなければならぬ。

動燃の施設内で Rn 娘核種の床への沈着量を直接測定する必要がある。沈着量の測定法として、窓の面積が約  $0.01\text{ m}^2$  のサーペィメーター・プローブで床面を直接測定するか、スミヤ法がある。しかし、これらの方法では  $1500\text{ pCi/m}^3$  の Rn 濃度のときでも、最大  $3\text{ cpm}$  の  $\alpha$  計数しか期待できない。このため、II-B で述べた硝酸セルロース・フィルムを施設内の壁や床に貼り、フィルム面への Rn 娘核種の沈着量を量べた。

床から土踏まずへの Rn 娘核種の移動は図 3-8 に示したように、足底から土踏まずへ物理的移動と静電場による移動の 2 つの場合が考えられる。いずれの場合も、床に沈着した Rn 娘核種が靴底の土踏まずに実際に蓄積されているか、模擬実験を要する。

通常の大気の条件では、仮定したような Rn 娘核種の沈着量は得られない。このため図 3-11 に示すような Rn 娘核種

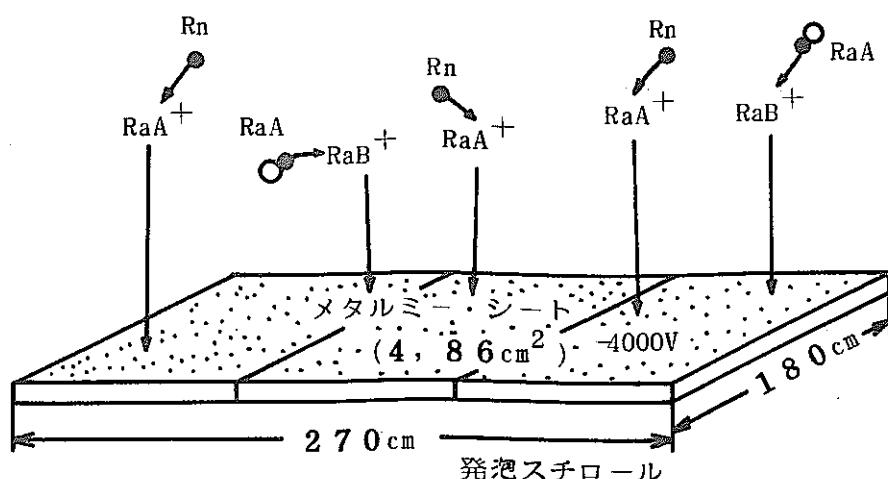


図 3-11 広い面積への Rn 娘核種の捕集法

の捕集法を用いた。5 cm 厚の発泡スチロール板を 3 枚並べ、その上をメタルミー・シート（アルミを蒸着したビニール・シートの商品名）で被った。このメタルミー面に -4000V 印加して、室内の Rn 娘核種を強制的に捕集した。電源を OFF にした後、メタルミー面のスミヤを行った。靴底が十分帯電するほど歩きまわった後、靴でメタルミー面を 200 歩あるいた。その後、靴底の  $\alpha$  計数を各部位ごとにサーベイメーターで測定した。同時に室内の Rn 濃度も測定した。メタルミー面に沈着した Rn 娘核種の放射能を調べるために、サーベイメーターを密着させて  $\alpha$  計数を行った。

表 3-4 模擬実験の結果

測定日	12月21日	12月22日
気象条件	曇 22.3°C 55%	曇 20.2°C 60%
Rn 濃度	100~120 pCi/m³	50~70 pCi/m³
靴底の帶電	-300~-500V	-200~-500V
メタルミー面 $\alpha$ 計数	5 cpm	3 cpm
メタルミー面 スミヤ	1 cpm	1 cpm
靴底の $\alpha$ 計数	爪先	4 cpm
	足底	3
	土踏まず	4
	踵	0
		1

模擬実験の結果を表 3-4 に示す。測定を行った日はいずれも曇と天候は良くなく、Rn 濃度も低かった。しかし、メタルミー面の  $\alpha$  計数は 3~5 cpm (約 1500 dpm/m²) と、仮定が成り立てば偽計数が発生するのに十分な Rn 娘核種が捕集されていた。測定結果から明らかなように、靴底の  $\alpha$  計数は僅かで、メタルミー面の  $\alpha$  計数と殆んど同じである。靴底の土踏まずと他の部位の  $\alpha$  計数に差が認められず、土踏まずへの Rn 娘核種の蓄積効果は存在しない。靴底の帶電は、天候のためか、すべての部位が負であった。このため、床に沈着した Rn 娘核種の土踏まずの静電場による捕集を完全には否定できなかった。

模擬実験の結果から、床に沈着した Rn 娘核種が靴底へ移動し偽計数を発生する機構は殆んどありえない。

#### 4. 静電場と $\alpha$ 計数の測定

想定したモデルでは、靴底の土踏まずに発生する偽計数を説明できなかった。靴底の偽計数がどのような機構で発生するか、現場の状況を知る必要がある。動燃の施設内で、靴底の偽計数の発生が報告されている場所を重点に、静電場と  $\alpha$  計数の同時測定を行った。

##### 4-1 測定法及び測定部位

静電場の測定にはリヨンの静電場計モデル EA-03 を用いた。測定可能範囲は 1~3000V/cm である。このリヨンの静電場計はその場での静電場強度を示し、電場の広がりを知るのに良い。静電場測定は個々の部位から測定端子を約 5 cm 離して行った。

各部位に捕集されている  $\alpha$  放射能はシンチレーション・サーベイメーターで計数した。サーベイメーター・プローブの窓面積は約 0.01 m² であり、サーベイメーターの計数効率は約 20 % である。 $\alpha$  計数は測定部位にサーベイメーター・プローブ

ーブを密着させて1分間測定した。

静電場と $\alpha$ 計数の測定は、C-101 化学分析室、A-107 検査室、A-110 工程管理室で行った。p u 燃施設内でのこれらの室の配置は昨年度の報告書<sup>2)</sup>の図2-18に示されている。A-107 検査室はII-Aで述べた「放射平衡比」の測定を行った室である。C-101 化学分析室とA-110 工程管理室は、動燃で以前から靴底の偽計数の発生が報告されている室である。化学分析室は多くのグローブ・ボックスのある室である。工程管理室は図3-12に示すように事務机が配置されている室である。今までに、これらの室の机の下、椅子下部の輪、ボリ瓶の表面等に $\alpha$ 計数が観測されている。机と椅子の構造を図3-13に示す。測定はこれらの部位を重点に行った。

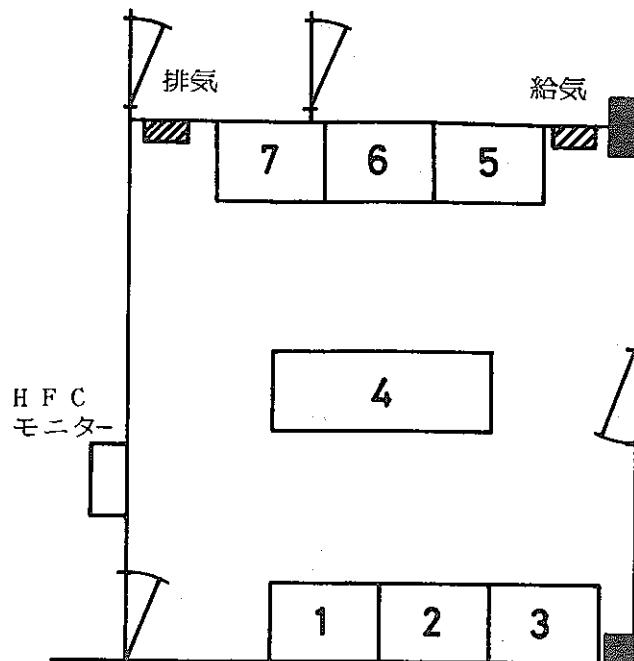


図3-12 A-111 工程管理室の机の配置

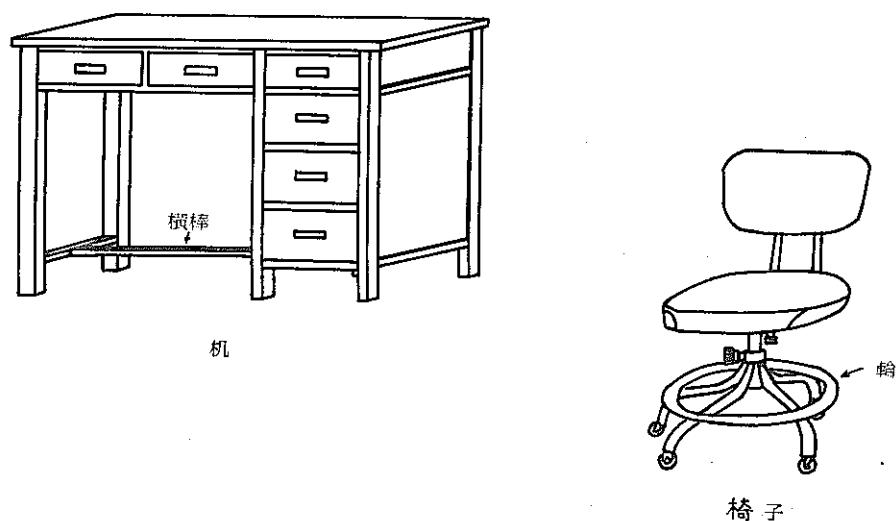


図3-13 机と椅子の構造

#### 4-2 測定結果

動燃のPu燃施設内の静電場と $\alpha$ 計数の測定結果を表3-5に示す。電場も僅かで、 $\alpha$ 計数のない床や壁等の部位の結果は省いた。C-101化学分析室の排気口を除き、 $\alpha$ 計数が認められたのは、総て負に帯電している部位である。特に、A-110工程管理室の机の足のせ横棒の $\alpha$ 計数が著しい。A-110室の机の番号は図3-12に示した。電場強度と $\alpha$ 計数の間にも比例関係が認められる。机の横棒の $\alpha$ 計数は、サーベイメーターの計数効率を考慮すれば、300dpm以上の $\alpha$ 放射能が $0.01\text{m}^2$ 以下の面積に捕集されていることに相当している。

表3-5 静電場と $\alpha$ 計数の測定

室	測定部位	電場 <sup>*</sup> (V/cm)	$\alpha$ 計数 (cpm)
C-101 化学分析室	排気口	+500	14
	机の下横棒(金属製)	0	0
	机子下部の輪	-70	10
C-107 検査室	発泡スチロール(持込)表面	-300	18~24
	椅子下部の輪	-30~-50	5~7
A-110 工程管理室	机①の横棒 <sup>**</sup>	-100~-250	46~65
	机②の横棒	-100~-140	25~33
	机③の横棒	-80~-100	33~66
	机④の横棒(金属製)	+10	0
	机⑤の横棒	-100	22
	机⑥の横棒	-200	52~60
	机⑦の横棒	-130	42
	靴底(横棒を擦る)		19~34
	机①の下の床	-100	0

\* 測定部位から電場計を5cm離して測定

\*\* A-110の机の配置は図3-12に示す。

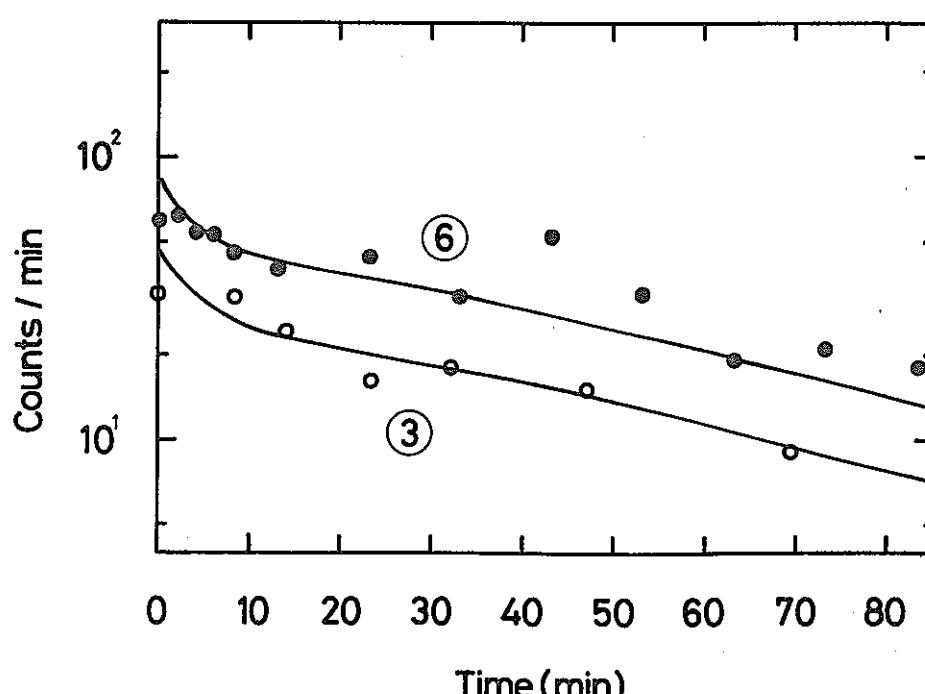


図3-14 机の横棒の $\alpha$ 計数

机の横棒に静電場で捕集されている $\alpha$ 放射能がRn娘核種であることを確認するため、 $\alpha$ 計数を長時間連続して測定し、その減衰曲線を求めた。測定結果を図3-14に示す。測定は机③と机⑥の横棒で行った。実線はRaAのみを長時間捕集した後の $\alpha$ 計数の予想減衰曲線である。10分以降の $\alpha$ 計数は、大部分がRaC'に起因する $\alpha$ 線である。測定結果は計数が少ないため、ばらつきは大きいが、予想減衰曲線と良く一致している。

#### 4-3 検討

C-101 化学分析室排気口の $\alpha$ 計数は、排気口表面に付着したRn娘核種に起因していると思われる。しかし、 $\alpha$ 計数の観測されている他の部位は総て負に帯電しているので、静電場による気中のRn娘核種の捕集と考えて良い。動燃内で使用されている机や椅子は殆んど金属製である。机や椅子の表面はベンキが塗布されている。机の横棒や椅子下部の輪は靴底との摩擦により、表面のベンキが帯電する。その静電場により、Rn娘核種が捕集される。表3-5に示すように、机の横棒でも金属製の場合には $\alpha$ 計数は認められない。椅子下部の輪の $\alpha$ 計数は机の横棒の計数に較べて少ない。この原因の一部は椅子下部の輪の有効面積が狭いことに依る。

A-110 工程管理室の机①の横棒を靴底で擦った。横棒から靴底に移動した $\alpha$ 放射能の計数は19~34cpmであった。この靴をHFCモニターに乗せた所、汚染表示ランプが点滅した。この実験を数度繰り返したが、いずれも汚染表示ランプが点滅した。この事実から、靴底の偽計数は、靴底、特に土踏まずの部分で机の横棒を擦ることによって起きていると予想される。

机の横棒に集まっている $\alpha$ 放射能は、サーベイメーター・プローブが密着している面積に300dpm以上ある。机の横棒とサーベイメーター・プローブの面積の比較から、横棒全体に捕集されている $\alpha$ 放射能は1000dpm以上と考えられる。RaA<sup>+</sup>が長時間捕集されているとすると、毎秒捕集されているRaA<sup>+</sup>の放射能は500dpm以上である。机の横棒にRaA<sup>+</sup>が捕集される実効容積は、最も大きく見積もっても机の下の空間の容積であり、約0.2m<sup>3</sup>である。以上の議論から、工程管理室の気中のRn濃度は1100pCi/m<sup>3</sup>以上存在していると思われる。

A-110 工程管理室のRn濃度の測定値は1300~1600pCi/m<sup>3</sup>であった。この値は上述の予想値と比較的良く一致している。

### 5. 靴底の偽計数の発生機構

靴底の土踏まずに偽計数が発生することは、何らかの形で気中に存在するRn娘核種が土踏まずに蓄積されていることに起因している。この現象は使用している靴に原因があるとして、モデルをたて名古屋大学の研究室内で模擬実験を行った。靴底の土踏まずの負の電場による捕集と床に沈着したRn娘核種が靴底に物理的又は静電的に付着のいずれのモデルも、靴底の偽計数の発生を説明することはできなかった。動燃のPu燃設内での静電場と $\alpha$ 計数の測定から、靴底の偽計数の機構は他の部位へ静電場捕集されたRn娘核種が靴底へ移動するという間接的な過程であることが判明した。

#### 5-1 発生機構

予想される靴底の偽計数の発生機構を説明するため、フロー・チャートを図3-15に示す。

机の下の横棒が靴底で擦られ、負に帯電する。Pu燃の施設内では空調が行われているため、静電気の減衰は遅い。机の下の空間にあるRnから生成されるRn娘核種が横棒に捕集される。靴底で擦る動作は繰り返されるので、帯電量は増加し、Rn娘核種の捕集量も増加する。机の横棒を靴底で擦る動作は単に横棒の帯電に関与しているだけでなく、横棒に捕集されたRn娘核種の土踏まずへの移動の働きもしている。靴底に付着したRn娘核種の量が、あるレベルを越えれば、HFCモニターで偽計数が発生する。

動燃での測定期間中、作業従事者の動作を観察した所、大部分の人が机の横棒や椅子下部の輪に足をのせることが判った。机の横棒は靴底の土踏まずの部分で擦られやすい。足底、踵の部分に付着したRn娘核種は歩行中にとれる。このような理由で、靴底の土踏まずに偽計数が発生しやすいことが説明できる。

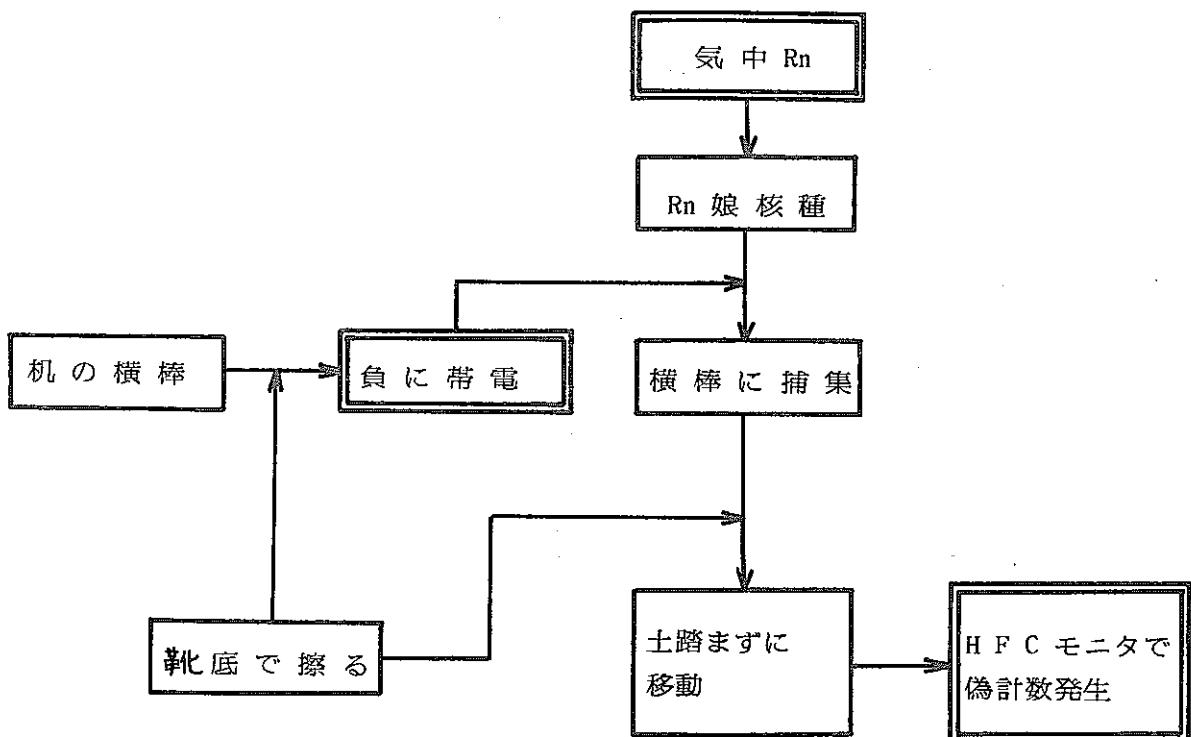


図3-15 靴底の偽計数の発生機構

A-110工程管理室の性質上、入室時にHFCモニターでチェックし、退室時には行わない。そのため、この室で靴底にRn娘核種の汚染が起きてても、他の場所で発見される可能性がある。

Rn娘核種が捕集される部位として、机の横棒以外に、図3-12に示す椅子下部の輪も考えられる。

以上の議論で、その他の靴底の偽計数の発構が総て否定されたわけではない。Rn濃度が異常に高くなった場合、単なる付着だけで偽計数が起きる可能性は存在している。しかしこのような偽計数の発生は非常に稀な現象であろう。

## 5-2 対 策

靴底の偽計数の発生機構は図3-15の過程で起ると予想される。机の横棒の代りに椅子下部の輪も考えられる。この機構で重要な役割を果しているのは、机の横棒の帶電と気中Rn濃度である。偽計数が発生するには、通常より10倍程度のRn濃度が必要である。A-110工程管理室のRn濃度が他の室に比べ高く、 $1300 \sim 1600 \text{ pCi/m}^3$ であった。この原因は不明であるが、工程管理室で偽計数が多発する一因となっている。気中のRn濃度を制御することは難しい。Rn娘核種を帶電部位に捕集されにくくすることは可能である。図3-6で示したように、エアロゾル数を増加させれば良い。しかし、この方法は非現実的である。

靴底の偽計数の発生を減らす最善策は、負に帯電する部位を減らすことである。机の横棒や椅子下部の輪のペンキをはがすか、ペンキが塗られていない金属製の机や椅子を取り替える。このような対策が取られれば、靴底の偽計数の発生は減少することが期待できるであろう。

## 6. 結 び

本年度の主な研究の目的としていた、靴底の偽計数の発生機構は一応解明できた。しかし、図3-15で示した発生モデルは実証されていない。このモデルを実証するには、靴底の偽計数が発生した場合、机の横棒との因果関係を証明しなければならない。動燃の施設内での測定期間に偽計数の発生の報告はなかった。5-2で述べた対策が取られた場合、対策前後の偽計数の発生件数の比較から、減少が明らかになれば、間接的に発生モデルが証明されたこととなる。

昨年度と本年度の研究によって、動燃の施設内での総ての偽計数の発生機構がほぼ解明できた。いずれの場合も、静電場が関与していた。偽計数の発生を抑えるには、負に帯電しにくくする措置を取れば良い。偽計数の発生のもう一つの要因は Rn 濃度である。普通の Rn 濃度  $100 \text{ pCi/m}^3$  程度では偽計数は殆んど発生しない。A-110 工程管理室が何故他の室の 10 倍も Rn 濃度が高かったのかは今後の問題である。

### 参 考 文 献

- 1) 村崎憲雄：「静電気障害対策ハンドブック（上）」マグロウヒル好学社（1977）。
- 2) 池辺幸正他：「施設内気中放射性エアロゾルの挙動についての研究」動燃受託研究報告書（1979）。
- 3) 谷 安正：「静電場」河出書房（1942）。

（飯田孝夫）

## 第4章 放射能測定器の開発

### A. $\alpha$ 核種イメージグラフの製作

#### 1. はじめに

Puを扱う施設では、 $\alpha$ 線の異常計数が生じた場合、それがPu汚染によるものか、空气中に存在するRn娘核種の崩壊に伴う $\alpha$ 線か、判別を要する。

現在、Pu燃施設では2種類の検出法でPuとRn娘核種の判別を行っている。異常計数が生じた場合、第1段階の判別法として、Si表面障壁型半導体検出器を用いシングルチャネル波高分析器によりPuのエネルギー範囲のみの $\alpha$ 線計測を行う<sup>1)</sup>。この方法でPu汚染による異常計数の可能性がある場合、次の判別方法としてオートラジオグラフィを用いていく<sup>2)</sup>。

Pu燃料製造工程に於いてPuO<sub>2</sub>は粒子で存在する。その粒子の放出する $\alpha$ 線を蛍光膜を通してポラロイドフィルム上に検出する方法である。

汚染事故時に検出されるPuO<sub>2</sub>粒子は粒径分布を持つ。粒径によって $\alpha$ 放射能は異なる。Pu燃施設で使われているオートラジオグラフィは、検出に数十本の $\alpha$ 線の入射が必要である。PuO<sub>2</sub>粒子径が小さい場合は検出時間が長くなる。Pu燃施設で異常計数が起った場合、全工程を停止しその判別を待たなければならない。工程の作業能率の向上のため、判別時間の短縮は重要である。

本研究ではPuO<sub>2</sub>粒子の検出時間の短縮を目的に、二次元像增幅器（イメージインテンシファイア）を用いた $\alpha$ 線位置検出器を試作した。この試作した検出器でPuO<sub>2</sub>粒子の撮影を行い、撮影時間と像の大きさの関係及び検出限界を調べた。二次元像増幅器のバックグランド光の影響を検討した。さらに、Rn娘核種の撮影が可能かどうか実験を行った。

以上の検討から、試作した検出器はPuO<sub>2</sub>粒子の検出時間を短縮出来るばかりでなく、Pu以外の $\alpha$ 線放射性核種の位置検出器として応用することも可能であり、将来有望な検出器として期待できる。

#### 2. イメージグラフの製作

##### 2-1 イメージグラフの動作原理

試作した検出器はZnS(Ag)蛍光膜、光電面、Microchannel Plate (MCP)、及び蛍光面で構成されている。この検出器の概念図を図4-1に示す。以下、この検出器をイメージグラフ (Image-Graph) と呼ぶ。

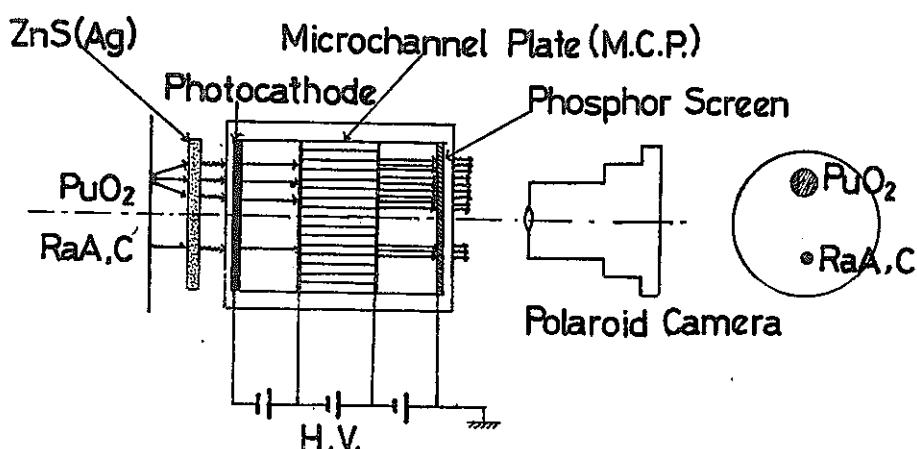


図4-1 イメージグラフの動作原理

試料中の $\alpha$ 放射性核種から放出される $\alpha$ 線は  $ZnS(Ag)$  蛍光膜に入射し  $ZnS(Ag)$  中でエネルギーを失う。そのエネルギーで励起された  $ZnS(Ag)$  は平均  $4500\text{ \AA}$  の光を放出し、基底状態に戻る<sup>3,4)</sup>。 $ZnS(Ag)$  の発光は光電面 (S-25) で電子に変換される。放出された電子は電場で加速され MCP に到達する。MCP は二次電子放出率の高い高鉛ガラスを材質とする内径が数  $10\mu\text{m}$  のチャナルが数 10 万本集合した構造のプレートである。入射電子は MCP により 2 次元的に数千倍に増倍される。MCP で増倍された電子は電場で加速されながら、蛍光面 (P-20) に入射する。そこで平均  $5500\text{ \AA}$  の光に変換される。蛍光面の発光をカメラにより撮影する。

図 4-1 に示す様に、 $PuO_2$  粒子と  $Rn$  娘核種が同一試料上に存在する場合を考える。 $PuO_2$  粒子の $\alpha$ 放射能は通常数十  $\text{dpm}$  である。一方、 $Rn$  娘核種の放射する $\alpha$ 線は最高で 2 本である。蛍光面上での $\alpha$ 線 1 本による発光がフィルム上で検出されるなら、 $PuO_2$  粒子の像は  $Rn$  娘核種の像と比較して、濃度が高いか或いは大きな像として検出される。 $PuO_2$  粒子の像のみ検出したい場合は、カメラの絞りで光量を減少させ、2 本の $\alpha$ 線では像が検出されないようにすればよい。

## 2-2 イメージグラフ製作上の問題点

イメージグラフの製作に当って、光電面から蛍光面までの光増倍部分の製作は大学の研究室に於いては技術的に困難なので<sup>5)</sup>、ITT 社製の二次元像增幅器 (イメージインテンシファイア) F-4747 を購入した。以下、二次元像增幅器を I.I. と略記する。

ITT 社製の I.I. (F-4747) は入射面及び出射面がファイバーオプティクスになっており、静電レンズ式である。ITT 社製の I.I. の断面図及びその基本的な性能を図 4-2 に示す。

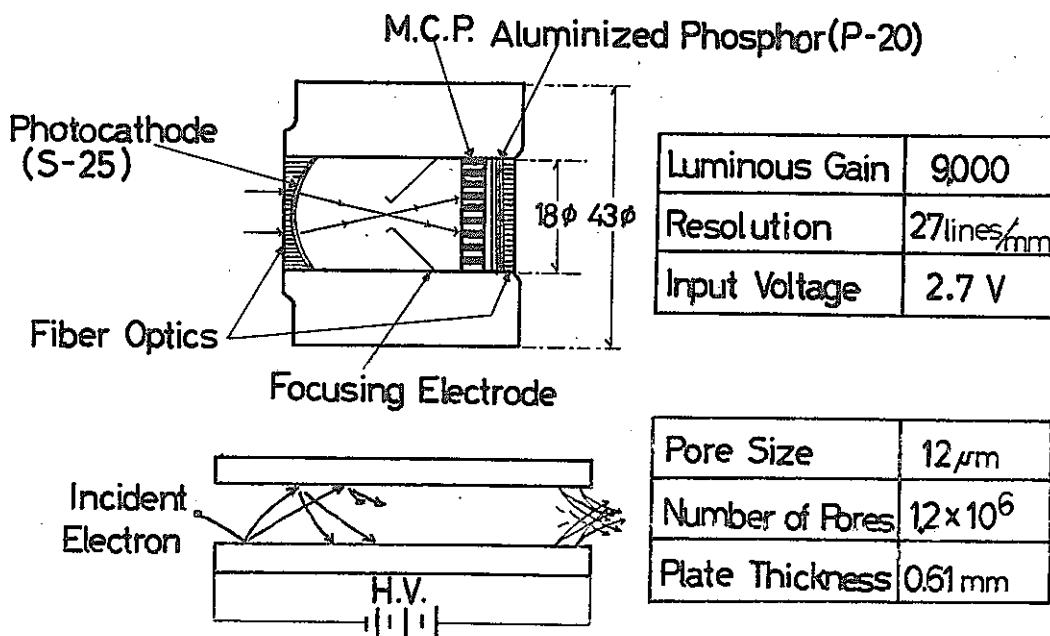


図 4-2 二次元像増幅器の構造

I.I. の購入の際、考慮すべき点はバックグランド光である。バックグランド光は、光電面や MCP 中で熱や自然放射線によって発生する電子による発光である。I.I. のバックグランド光は通常の使用には問題は無い。本研究の様に、 $\alpha$ 線の単位時間当たりの入射数が少なく、又、 $\alpha$ 線による  $ZnS(Ag)$  の発光も微量な場合、長時間  $ZnS(Ag)$  の発光を蓄積する必要がある。長時間の露光中にバックグランド光も蓄積される。もし、露光時間中のバックグランド光の蓄積量が $\alpha$ 線の発光量より大きければ、 $\alpha$ 線によるフィルム上の像はバックグランド光のため判別できなくなる可能性がある。

$ZnS(Ag)$  膜に  $Pu$  の  $\alpha$  線が 1 本入射した場合の I. I. の出力面での光子数と、I. I. の単位時間単位面積当りのバックグランド光による出力面での光子数を概算した。

エネルギー  $E$  の  $\alpha$  線が  $ZnS(Ag)$  に入射したとき、I. I. の出力面での光子数  $N_0$  は近似的に次式で表わされる。

$$N_0 = \frac{1}{\epsilon(\lambda)} \cdot E \cdot F_n \cdot C_{np} \cdot F_p \cdot G \quad (4-1)$$

ここで、 $\epsilon(\lambda)$  は波長入の光のエネルギー、 $F_n$  は  $ZnS(Ag)$  中で吸収されるエネルギーの  $E$  に対する割合、 $C_{np}$  は  $ZnS(Ag)$  中で吸収されたエネルギーの光への変換効率、 $F_p$  は生じた光子が I. I. 入射面に到達する割合、 $G$  は I. I. の光の利得、である。

式(4-1)に於いて、計算を簡単にするため、 $ZnS(Ag)$  の波長は平均値  $4500\text{\AA}$  を用いた。エネルギー  $E$  は  $PuO_2$  粒子自身による自己吸収を無視して  $5.1\text{ MeV}$  とした。 $F_n$  は  $ZnS(Ag)$  の塗布量による。イメージグラフの場合、 $ZnS(Ag)$  の塗布量は  $Pu$  の  $\alpha$  線の  $ZnS(Ag)$  中での飛程と等しくなる様にした。従って  $F_n$  は 1 とした。 $C_{np}$  の光への変換効率は約 0.1 である<sup>3,4)</sup>。 $F_p$  の値は  $ZnS(Ag)$  膜と I. I. 入射面は密着しているので 0.5 と仮定した。しかし、 $ZnS(Ag)$  は可視光に対して半透明であるので、 $F_p$  は  $ZnS(Ag)$  面への  $\alpha$  線入射角に依存すると考えられる。 $G$  は図 4-2 に示すように 9000 である。

これらの数値を(4-1)式に代入すると、

$$N_0 = 8.3 \times 10^8 \text{ photons} \quad (4-2)$$

となる。

ITT 社製の I. I. (F-4747) の等価入力バックグランド光は  $2 \times 10^{-11} \text{ lm/cm}^2$  である。I. I. の蛍光面 (P-20) の発光波長と比視感度を考慮すると、1 lm は  $1.3 \times 10^{16} \text{ photons/sec}$  である。I. I. の光の利得は 9000 である。故に、I. I. の単位時間単位面積当りの出力面でのバックグランド光子数は

$$N = 2.3 \times 10^7 \text{ photons/mm}^2 \cdot \text{sec} \quad (4-3)$$

となる。

I. I. 出力面に於ける  $\alpha$  線 1 本の光束の占める面積を  $1 \text{ mm}^2$  と仮定すると、バックグランド光による光子の蓄積数と、 $\alpha$  線 1 本による光子数が等しくなる時間は、(4-4) と (4-3) 式より

$$t = N_0 / N = 3.6 \text{ 秒} \quad (4-4)$$

となる。3.6 秒に 1 本の割合で  $\alpha$  線が I. I. に入射すれば、フィルム上に  $\alpha$  線の像が識別できる。

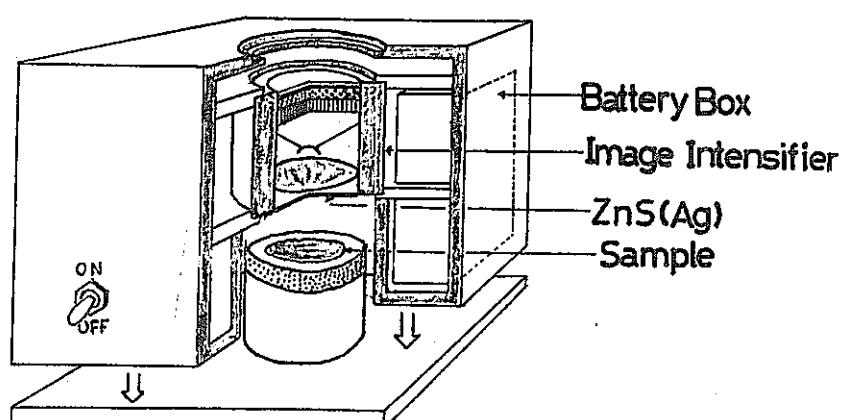


図 4-3 イメージグラフの断面図

## 2-3 イメージグラフの設計と製作

ITT 社製 I. I. を用いて試作したイメージグラフの断面図を図 4-3 に示す。I. I. を支える板の材質は I. I. の保護を考慮してアクリルとした。その他の部分の材質は加工の容易な真鍮である。装置全体の移動の簡便化のため、電池を内蔵させた。また、電池には水銀電池を用いた。出力面での発光による装置内部の反射を抑えるため、装置内部を黒の艶消塗料で仕上げた。

試作したイメージグラフの使用法は次の通りである。

- (i) 下部の試料台を残して、装置全体を持ち上げる。試料台の上に試料を置く。
- (ii) 上部より装置全体を被せる。試料台が伸縮性スポンジのため、装置の重さにより ZnS(Ag) 膜と試料が密着する。
- (iii) 暗室の照明を総て消し、装置の電源を入れる。
- (iv) 出力面での発光を肉眼により観察する。又は、出力面をカメラで撮影する。

## 3. イメージグラフによる $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影

### 3-1 $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影方法

$\text{PuO}_2$  粒子の付着した試料を試料台にのせ、イメージグラフの出力面の発光を、その上方から接写カメラを用いて撮影する。撮影は 2 種類の異なった接写カメラで行った。1 種類は日本ボラロイド社製接写ボラロイドカメラ、もう 1 種類はアサヒペンタックス F 1.8 標準レンズに接写リングを装着したカメラである。

接写ボラロイドカメラの倍率は 2 倍である。フィルムには高感度ボラロイドフィルム TYPE 667 (ASA 3000) を用いた。標準レンズに接写リングを装着したカメラの倍率は、撮影時には約 1 倍であった。フィルムはコダック社製トライ X (ASA 400) を用いた。

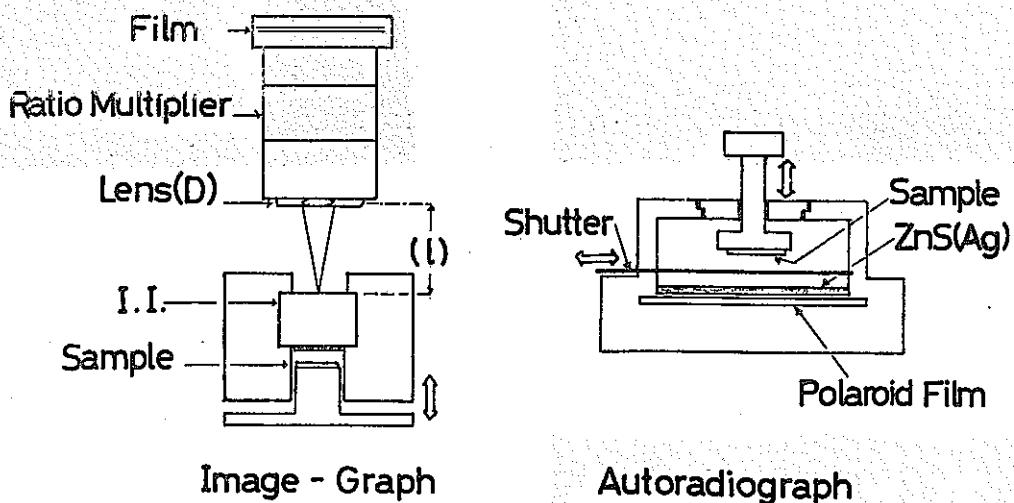


図 4-4 イメージグラフとオートラジオグラフの撮影法

接写ボラロイドカメラによる  $\text{PuO}_2$  粒子の撮影方法の概略図を図 4-4 に示す。また、現在動燃の施設内で使用されているオートラジオグラフ用カメラの断面図も図 4-4 に示す。オートラジオグラフ用カメラの特徴は、総ての操作に暗室を要しないことと、支持軸の回転により 1 枚のボラロイドフィルム上で校正できることである。フィルムは接写ボラロイドカメラと同じ TYPE 667 (ASA 3000) を用いた。

試料は布テープに付着した 1 粒の  $\text{PuO}_2$  粒子を用いた。布テープは飛散を防ぐために、厚さ 4  $\mu\text{m}$  のマイラー膜で包んでいた。試料の  $\alpha$  放射能は動燃側の測定によると約 70 dpm であった。オートラジオグラフにも同一の試料を用いた。

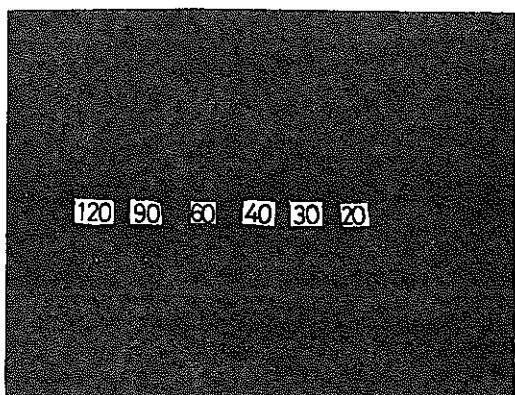
イメージグラフの撮影に於いては、露光時間を変えて撮影する方法と、出力面での発光が肉眼で計数可能なので、発光数を変えて撮影する方法がある。前者の方法では、 $\alpha$  崩壊に伴なう揺動の影響が大きくなる。後者の場合、肉眼による計数誤

差が大きい。

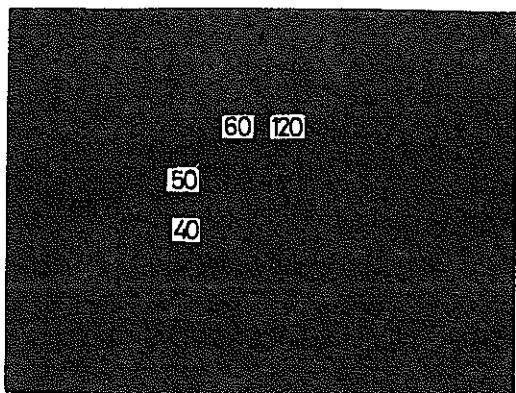
### 3-2 $\text{PuO}_2$ 粒子の撮影結果

$\text{PuO}_2$ 粒子のイメージグラフを撮影した写真と、オートラジオグラフ用カメラで撮影した写真を図4-5に示す。図4-5(a)は接写ボラロイドカメラで撮影したイメージグラフの写真である。スポット上部の数字は露光時間(秒)を示す。スポットは露光時間20秒まで確認できる。(b)は接写リング付標準レンズのカメラで撮影した結果である。露光時間10秒でも十分スポットはみえる。(c)はオートラジオグラフィの結果である。この場合、確認できるスポットは40秒の露光時間を要する。

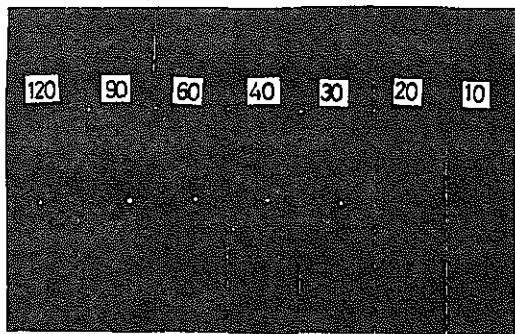
これら3枚の写真を比較すると、接写リング付標準レンズのカメラを用いてトライXフィルムで撮影した写真が、一番短い露光時間で  $\text{PuO}_2$  粒子を検出できる。又、接写ボラロイドカメラによる写真はオートラジオグラフィの結果に比べ短い露光時間で済む。



( a )



( c )



( b )

図4-5

$\text{PuO}_2$  粒子の撮影結果：

- (a) イメージグラフ(接写ボラロイドカメラ)
- (b) イメージグラフ(接写リング付標準レンズ)
- (c) オートラジオグラフィ

## 4. 考察

### 4-1 バックグラウンド光

イメージグラフによる  $\text{PuO}_2$  粒子の接写ボラロイド写真を図 4-6 に示す。写真には 3 個のスポットが写っている。下のスポットは  $\text{PuO}_2$  粒子に対応しており、上 2 個のスポットは I. I. 内の放電による発光である。露光時間はそれぞれ(a) 1 分、(b) 20 分である。 $\text{PuO}_2$  粒子の  $\alpha$  放射能は約 70 dqm である。2-2 の概算で示したように、バックグランド光による光子の蓄積数と  $\text{PuO}_2$  の  $\alpha$  線 1 本による光子数が等しくなる時間は 36 秒である。

$\text{PuO}_2$  粒子からイメージグラフに入射する  $\alpha$  線の割合を 0.5 とすると 1 分間に入射する  $\alpha$  線数は 35 本である。一方バックグランド光の 20 分間の蓄積数は 33 本の  $\alpha$  線の入射に相当する。この概算から、1 分露光の  $\text{PuO}_2$  粒子の像の明るさで、20 分露光のバックグランド光が写ると予想される。実際には図 4-6 に示すように、20 分露光のバックグランド光は殆んど感光していない。

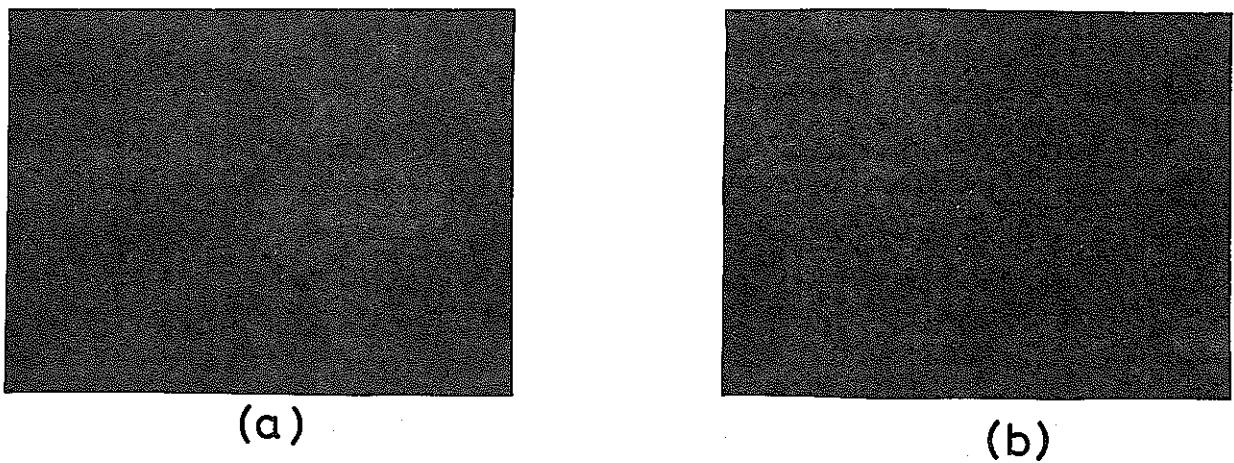


図 4-6 イメージグラフによる  $\text{PuO}_2$  粒子の写真：

(a) 露光 1 分, (b) 露光 20 分

$\alpha$  線 1 本によるイメージグラフの出力面での発光の面積を、2-2 の概算では、 $1 \text{ mm}^2$  と仮定した。撮影したトライ X フィルム上の  $\text{PuO}_2$  粒子の像の直径は約 0.15 mm であった。その数値を (4-4) 式に代入して計算すると、 $t = 2037$  秒となる。即ち、34 分に 1 本の  $\alpha$  線が入射しても  $\alpha$  線とバックグランド光と識別できる。従って、バックグランド光のイメージグラフへの影響は無視できる。

### 4-2 イメージグラフ出力面での $\alpha$ 線による発光量の相違

$\text{PuO}_2$  粒子の  $\alpha$  線によるイメージグラフ出力面での発光を肉眼で観察した場合、その発光が一定ではない事に気付く。発光量が一定でない原因としては；(i)  $\text{PuO}_2$  粒子による  $\alpha$  線の自己吸収による  $\alpha$  線エネルギーの減少、(ii)  $\text{PuO}_2$  試料と  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  膜の間のマイラー膜による  $\alpha$  線エネルギーの減少、(iii)  $\alpha$  線の  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  膜への入射角による  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  膜出力面での発光量の違い、(iv)  $\alpha$  線の I. I. への入射位置による光増幅率の相違、などが考えられる。以下各項目について考察を行う。

$\text{PuO}_2$  粒子による  $\alpha$  線の自己吸収によるエネルギーの減少は、 $3 \mu\text{m}\phi$  の球形  $\text{PuO}_2$  粒子の場合について計算を行った。その結果、最大の自己吸収の後の  $\alpha$  線のエネルギーは 4.4 MeV であった。実験に用いた  $\text{PuO}_2$  粒子の大きさは約  $1 \mu\text{m}\phi$  であるので、自己吸収による  $\alpha$  線のエネルギーの減少は少ない。

マイラー膜の厚さは  $\text{PuO}_2$  試料を包んである  $4 \mu\text{m}$  と  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  膜の入射面に被せた  $6 \mu\text{m}$  の合計  $10 \mu\text{m}$  であった。 $\text{PuO}_2$  粒子の  $\alpha$  線のマイラー膜への入射角と出射時の  $\alpha$  線エネルギーとの関係を図 4-7 に示す。入射角が  $60^\circ$  まではエネルギーの減少も少ないと  $60^\circ$  以上になると急激に減少する。そして  $72.5^\circ$  でエネルギーが零となる。この効果が発光に及ぼす影響は大きいと考えられる。

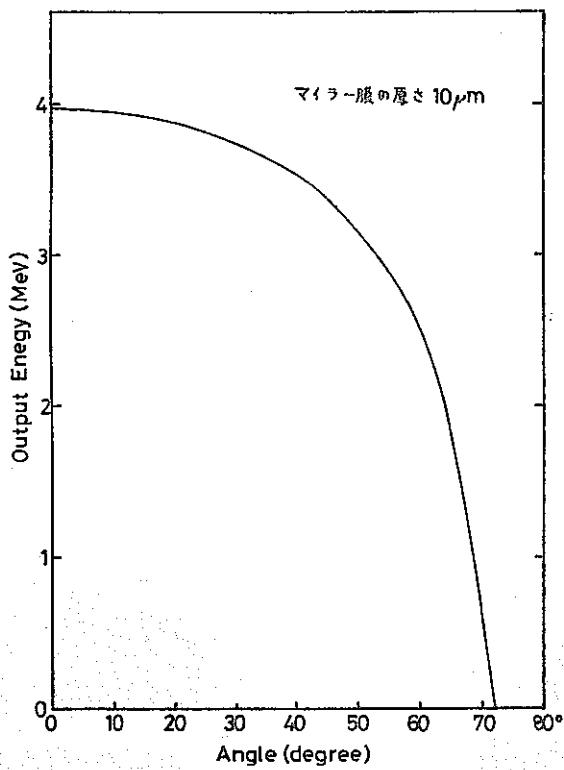


図 4-7  $\alpha$ 線エネルギーの入射角依存性

$ZnS(Ag)$  膜への入射角による  $ZnS(Ag)$  膜出力面での違いは、(4-1)式の  $F_p$  に関係する。2-2で述べた様に  $ZnS(Ag)$  は可視光には半透明である。 $ZnS(Ag)$  膜内での発光位置から、 $ZnS(Ag)$  膜出力面までの間に光が吸収される。発光位置から出射面までの距離は  $ZnS(Ag)$  膜への  $\alpha$  線の入射角に依存する。しかし、この効果については、定量的に評価できなかった。

ITT社製の I. I. (F-4747) の光の入射位置による光増幅の割合の違いは最高で 1 : 3 である。この違いは I. I. に内蔵されている MCP のチャネル径は  $12 \mu m\phi$  である。一方、 $\alpha$  線による  $ZnS(Ag)$  面での発光はそれより大きな面積と考えられる。故に、イメージグラフによる使用法では、この効果の影響は小さいと考えられる。

#### 4-3 イメージグラフとオートラジオグラフの感度の比較

ボラロイド写真上の  $PuO_2$  粒子の像を比較する場合、2つの方法がある。即ち、像の明るさと像の大きさである。 $PuO_2$  粒子の撮影で得られたボラロイド写真を、光学顕微鏡により 70 倍で観察した。露光量が少い場合は、露光時間が増すに従い像の明るさは増加する。しかし、像の直径は約 0.15 mm でほぼ一定である。露光量がある一定値を越えると像の明るさは一定で像の面積が増加する様になる。

ボラロイド写真上の像の明るさの比較は難しい。そこで、露光時間が同一の時、より大きなスポット径の得られる検出器を感度が良いと考える。

接写ボラロイドカメラによるイメージグラフとオートラジオグラフの露光時間とスポット径との関係を図 4-8 に示す。この結果より、接写ボラロイドカメラのイメージグラフはオートラジオグラフの約半分の露光時間で同一のスポット径が得られることが分る。

スポットの明るさが一定になり、面積が増加し始めるスポット径は  $0.2 mm\phi$  である。また、 $0.2 mm\phi$  のスポットは肉眼で確実に認められる。そこで、 $0.2 mm\phi$  を最小読み取りスポット径とする。

70 dpm の  $PuO_2$  の場合、最小読み取りスポット径を得るには、イメージグラフが 23 秒、オートラジオグラフが 47 秒か

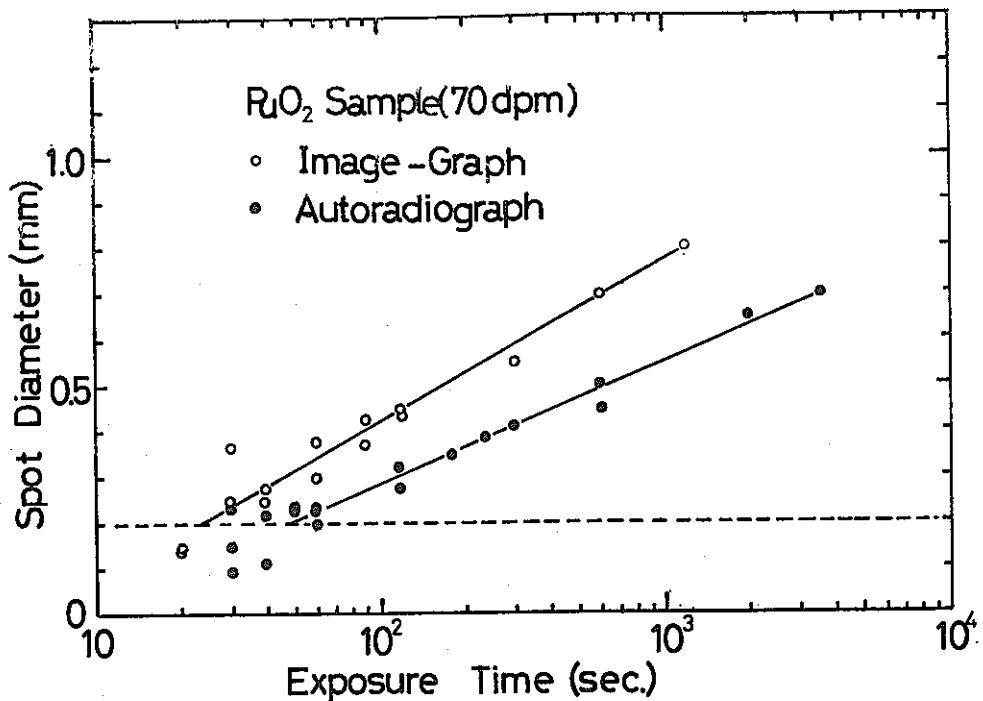


図4-8 スポット径と露光時間

かる。イメージグラフの方が  $1/2$  の検出時間で  $\text{PuO}_2$  の像を得ることが出来る。

#### 4-4 接写ボラロイドカメラと標準レンズに接写リングを装置したカメラによる写真の感度の比較

前に示した図4-5(a)と(b)より、標準レンズに接写リングを装置したカメラによるイメージグラフの写真の方が、接写ボラロイドカメラによる写真よりも短い時間で検出できることが分る。その理由について考察する。

カメラでスポット光を撮影した場合、フィルム上のスポットの濃度は近似的に次式で表わされる。

$$S = K \cdot \omega' \cdot \frac{1}{m^2} \cdot A \cdot B \quad (4-5)$$

ここで、Kは発光量を含む比例定数、 $\omega'$ は発光全体に対するカメラレンズに入射する光の割合、mはカメラの倍率、AはフィルムのASA表示による最小有効濃度(M.U.D)値、Bは現像時間及び方法がスポットの濃度に与える影響の割合である。

光学レンズ用のガラスの透過率が可視光に対しては95%以上であり<sup>6)</sup>、又、カメラレンズ面での反射は増透処理<sup>6)</sup>により非常に小さく抑えられている。このため、(4-5)式ではカメラレンズによる吸収、反射による光の損失を無視した。

表4-1 撮影条件

	接写ボラロイド カメラ	接写リング付 標準レンズ
出力面からレンズまでの距離 (I)	1.06 cm	9.0 cm
レンズの直径 (D)	1.66 cm	2.88 cm
発光がレンズ入射する割合 ( $\omega'$ )	$3.06 \times 10^{-3}$	$1.25 \times 10^{-2}$
カメラの倍率 (m)	2	約 1
ASA 値 (A)	3000	400

式(4-5)の計算に必要なパラメーターの値を表4-1に示す。 $\omega'$ は図4-4に示すようにレンズが見込む立体角から求まる。表4-1の値を用いて  $S/K$  を計算すると、接写ボラロイドカメラによるイメージグラフの方は  $S_p/K =$

2.3  $B_p$ 、標準レンズに接写リングを装着したカメラは  $S_T / K = 5.0 B_T$  となる。 $B_p$  及び  $B_T$  はそれぞれボラロイドフィルムとトライXフィルムのBの値である。

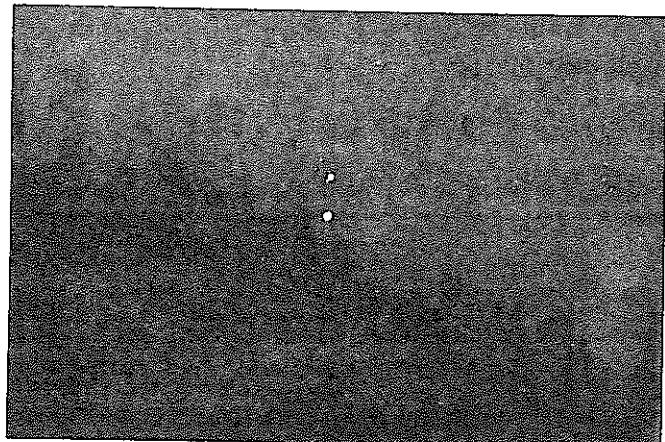
$B_p$  と  $B_T$  を比較に於いては、ボラロイドフィルムの現像処理の簡便さを考慮すると  $B_p < B_T$  であると予想される。

$S_p / K$  と  $S_T / K$  を比較すると、 $S_p / K < S_T / K$  となる。これは、標準レンズに接写リングを装着したカメラの写真の方が感度が良いという実験結果と一致する。

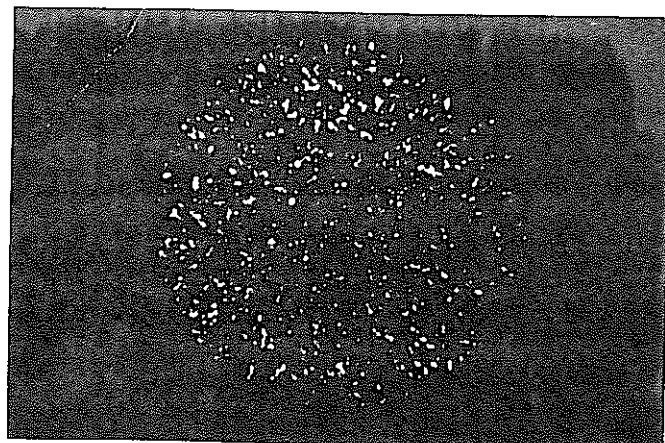
#### 4-5 イメージグラフによる Rn 娘核種の撮影

標準レンズに接写リングを装着したカメラによる  $\text{PuO}_2$  粒子のイメージグラフの撮影で、入射  $\alpha$  線が 1 ~ 2 本でもトライXフィルム上に像が認められた。このため、 $^{222}\text{Rn}$  娘核種を用いて、入射  $\alpha$  線が 1 本だけで検出できる可能性を強めた。

II章のBで述べた T-type Chamber の集電極にビニールシートを貼り、 $\text{RaA}^+$  を捕集した。そのビニールシートを迅速にイメージグラフに装着し、イメージグラフ出力面での発光を、標準レンズに接写リングを装着したカメラで撮影した。



(a)



(b)

図 4-9 Rn 娘核種の撮影結果：(a)  $\text{RaA}^+$  を 1000 V で 1 分捕集  
(b)  $\text{RaA}^+$  を 4000 V で 3 分捕集

撮影した  $^{222}\text{Rn}$  娘核種のイメージグラフによる写真を図4-9に示す。図4-9の(a)は、T-type Chamberに1000V印加してRaA<sup>+</sup>を1分捕集し、捕集後3分から撮影を開始し、30分露光した結果である。(b)は4000V印加して3分捕集し、30分露光した結果である。以前にも述べたように、 $^{222}\text{Rn}$  娘核種は単体で存在するものが多い。写真上のスポットはRaA及びRaC'の $\alpha$ 線1本によるスポットである。

この結果は、イメージグラフがPuO<sub>2</sub>粒子の検出器としてばかりでなく、RaA及びRaC'をはじめ総ての $\alpha$ 線放射性核種の位置検出器として利用できる事を示す。

## 5. 結　　び

試作したイメージグラフを用いて、PuO<sub>2</sub>粒子の撮影を行った。その結果、従来のオートラジオグラフの検出時間を約 $1/2$ に短縮できた。イメージグラフ製作上の問題となったI. I. のバックグランド光も、実際の検出に支障の無いことが分った。イメージグラフによるRn娘核種の位置検出も、トライXフィルム上に検出することができた。この事は、試作したイメージグラフが1本の $\alpha$ 線の入射に対しても検出可能であることを示している。

本年度試作したイメージグラフの写真撮影には暗室が必要である。又、イメージグラフの有効検出面積が $18\text{ mm}\phi$ と狭い。これらの事より、今後のイメージグラフの改良点は次の3点が挙げられる。

- (1) 試料、ZnS(Ag)膜、I. I. 及びボラロイドカメラを1つの装置に組み込み、暗室を使用することなしにPuO<sub>2</sub>粒子を検出できるようにする。
- (2) I. I. の交換によりI. I. の有効面積を増すか、光学的な方法により $50\text{ mm}\phi$ の大きさの試料を検出可能にする。
- (3) I. I. の交換によりI. I. の利得を上げるか、撮影法を改良して、写真上に1本の $\alpha$ 線の像を検出できるようにする。将来的には、I. I. 出力面の蛍光面の代わりに、マルチアノードを用いて電気信号として二次元的に検出する方法が考えられる。また同様に蛍光面の代わりにISITカメラとメモリーチューブを使用する事により、 $\alpha$ 線による発光をテレビ画像に処理する方法も考えられる。

## 参　考　文　献

- 1) 中田 啓、福田整司：Radioisotopes, 41 (1977) 747.
- 2) 小泉勝三、大高 正、齊藤節子：保健物理, 14 (1979) 163.
- 3) W. J. Price : 「放射線計測」コロナ社 (1974).
- 4) 三浦 均、菅 浩一、侯野恒夫：「放射線計測学」裳華房 (1969).
- 5) 世古淳也、小林 寛：応用物理, 41 (1972) 634.
- 6) 藤波重次：「写真技術」共立出版 (1964).

(飯田孝夫、山本誠一)

## B. 気中ラドンモニタの製作

### 1. モニタ製作の意義

屋外環境における $^{222}\text{Rn}$ ( $\text{Rn}$ )濃度は通常 $100\text{ pCi} \cdot \text{m}^{-3}$ ( $3.7\text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ )程度である。屋内環境ではその2~3倍程度の値を示すことが多い。気中 $\text{Rn}$ 濃度の測定法は数多いが、この程度の低濃度を直接 $\text{Rn}$ の検出から求めるには、試料気体を大量に使用する(活性炭法、2段フィルタ法)しかない。これらの測定も1つの値を求めるのに、捕集から計数まで最低2時間程度の時間を要する上、操作もそれ程簡単ではなく、かつまた自動測定も無理である。

また、 $\text{Rn}$ とその娘核種( $\text{RaA}, \text{RaB}$ および $\text{RaC}$ )の間の放射平衡を仮定して、娘核種の測定から親の濃度を推定する手段もよくとられる。この手段を用いることは屋外環境ではまだしも、屋内環境ではよくないことは第2章Aでも明らかである。 $\text{Rn}$ 自身の測定でなければ大きく誤ることが十分に予想される。

今回考案している方法は、自然環境のような低濃度領域において連続自動測定しうることを目的としている。本法の完成により、原子力施設周辺におけるモニタリングにとって極めて有益なデータを得ることが期待される。また、こうして得られたデータは大気中における $\text{Rn}$ および短寿命娘核種の挙動の解明や、それらによる呼吸器管の内部被曝の評価等に大きく寄与することであろう。

### 2. 概念設計

自然環境程度の低濃度において、連続自動測定できることが設計上要求される。これを満足させる手段として大型の連続通気式電離箱を使用する。この場合、電離箱に対して通常応用される高抵抗による電流測定法では、 $\gamma$ 線や宇宙線に由来する電流との識別が困難であるため、 $\alpha$ 線の電離の大きさに着目したパルスによる測定を検討している。

#### 2-1 通気式電離箱

##### (1) 期待されるパルス数

自然環境における $\text{Rn}$ 濃度を $100\text{ pCi} \cdot \text{m}^{-3}$ とすると、 $1\text{ m}^3$ 当り毎秒崩壊する $\text{Rn}$ の数は3.7個である。そこで、電離箱の有効容積を $50\text{ l}$ とすると理想的には毎分約11個のパルスが計測できることになる。

電離箱の壁からの $\alpha$ 線( $\text{U}-, \text{Th}-$ 系列のラドンより先祖の核種および子孫の核種)が電離電流として混入しないよう工夫できれば、外からのバックグランドはかなり小さくできるから、この程度の計数値で有効であろう。

##### (2) 電離箱の形状と容積

電離箱の形状として円筒型、平行平板型などが考えられるが、後述するように、構成材料からの $\alpha$ 線を極力少なくするためににはコレクタの表面積を小さくすることが重要なことの1つであるので、円筒型を用いることにする。

円筒の内壁に起因するバックグランドを減少するためには、金網を使用することが有効であると思われる。即ち、ラドンの先祖核種による $\alpha$ 線の飛程よりも、円筒とその内側に張るべき金網筒との距離を長くしておけば、壁材からの $\alpha$ 線分は防止できる。ただし、箱内で発生したラドン子孫からの寄与は完全には防ぎ得ないと考えられる。この点に関しては更に詳しく検討する必要がある。

電離箱の有効容積は前項の検討から $50\text{ l}$ 程度が望ましい。

概念的な電離箱の構造を図4-10に示しておく。

##### (3) $\text{Rn}$ 娘核種除去フィルタ

試料空気を電離箱に導入する際、 $\text{Rn}$ 娘核種およびエアロゾル等を除去するために高性能フィルタを使用する。

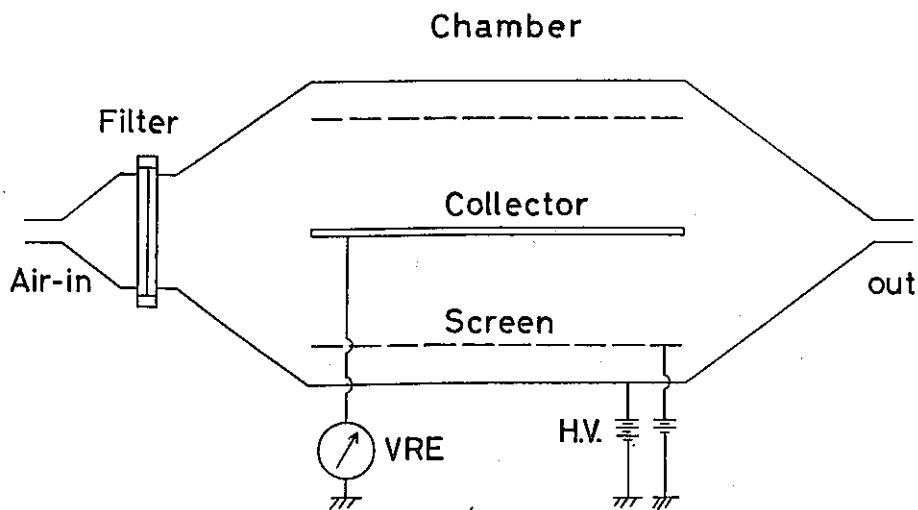


図4-10 電離箱の概念図

## 2-2 測定系

### (1) パルス法を用いる理由

振動容量型電位計を用いて、電位降下法によりこの電離箱の電離電流を測定すると、環境 $\gamma$ 線と宇宙線のみで、およそ次の値が期待される。

$$\begin{aligned}
 i_{\gamma+CR} &= e J V \\
 &= 1.6 \times 10^{-19} \times 5 \times 10^4 \\
 &= 4.8 \times 10^{-14} \quad [\text{A}]
 \end{aligned} \tag{4-6}$$

ただし、 $\gamma$ 線と宇宙線による電離を6イオン対・ $\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ とした。

一方、Rn濃度が $100 \text{ pCi} \cdot \text{m}^{-3}$ である時、期待され $\alpha$ 線による電流値 $i_\alpha$ は、

$$\begin{aligned}
 i_\alpha &= e \frac{E}{W} \cdot Q V \\
 &= 1.6 \times 10^{-19} \times \frac{5.49 \times 10^6}{35.5} \times 100 \times 10^{-18} \times 3.7 \times 10^{10} \times 5 \times 10^4 \\
 &= 0.46 \times 10^{-14} \quad [\text{A}]
 \end{aligned} \tag{4-7}$$

となり、 $i_\alpha$ は $i_{\gamma+CR}$ より約1桁小さい。しかし、この値は時定数の極めて長い測器による時の平均値であって、実際には、この程度の濃度では数mVのパルスとして測定される。

次に、電荷蓄積法では図4-11の概略図に示すように、 $\gamma$ 線+CRによる電荷の蓄積は時間的に均されていて、かつ勾配が緩やかであるのに対し、 $\alpha$ 線による電荷は短時間に賦与され、それ故階段状の出力として観測される。例えば、電離箱の容量を $10 \text{ pF}$ とすると、

$$\begin{aligned}
 V &= e \frac{E}{W} \cdot \frac{1}{C} \\
 &= 2.5 \quad [\text{mV}]
 \end{aligned} \tag{4-8}$$

の出力が観測される。

このように、低濃度における $\alpha$ 線の測定では、通常の平均電流測定よりもパルス測定の方が遙かに感度がよい。

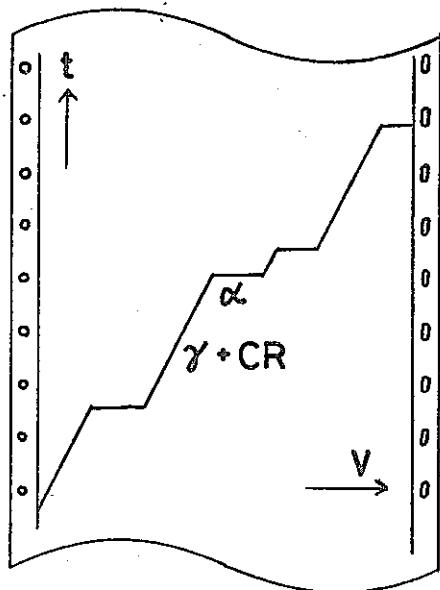


図 4-11 電荷蓄積法による測定例

## (2) 測定系回路

振動容量型電位計を用いて、連続的に自動測定する回路については目下検討中である。回路のブロック・ダイヤグラムを図 4-12 に示す。

(1) の検討でわかるように、出力パルスは  $\alpha$  線のエネルギーに依存する。本回路のエネルギー分解能を上げることによって、 $Rn$  (5.49 MeV),  $RaA$  (6.00 MeV) および  $RaC'$  (7.68 MeV) からの  $\alpha$  線を各々分離することが可能であろう。また、 $^{220}Rn$  ( $Tn$ ) およびその娘核種からの  $\alpha$  線の分離もできよう。

## 3. 本モニタの特徴と適用範囲

本モニタの特徴は、電離箱にパルス測定法を用いることにより自然環境程度の  $Rn$  濃度の連続測定を行うという点にあり、手段と対称の組合せが新しいと言えよう。なお、ここで言う連続とは、電離箱の測定などで通常見られるアナログ記録計の

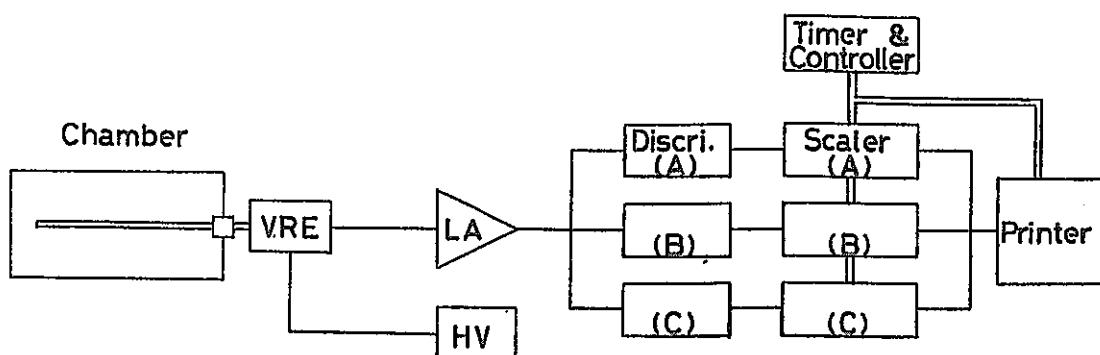


図 4-12 測定系のブロック・ダイヤグラム

記録などと異なり、1～10分程度計測しては、それを記録として打ち出すという操作を繰り返し行うという意味である。

適用範囲については次のように考えられよう。Rn濃度が  $100 \text{ pCi} \cdot \text{m}^{-3}$  より1桁下った場合には、計測時間を適当に延ばすことなどにより測定が可能となろう。逆に高濃になった場合は、それが1桁位であれば十分この使用領域にある。数桁以上になれば、通常の電流測定法がそのまま適用されよう。

( 下 道 国 )

(

(