

簡易型測定器 (Triathler) を用いた水中のラドン濃度測定法について

堀内公子, 庭山直子, 中山亜矢子

要 約

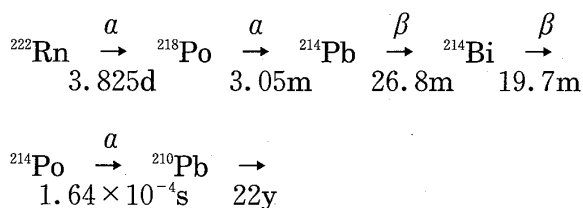
現在水中のラドン濃度測定には液体シンチレーションカウンター (LSC) を用いる方法が一般的であるが, フィールドワーク等の際, 現地で直ぐ濃度を知りたい場合には不向きである。

近年, 現地調査に適した小型測定器が幾つか開発され, 使用され始めて来た。トライアスラー (Triathler) もそうした測定器の一つで, 専用のケースに入れて調査地域に運び, その場で測定することが出来る α , β 波形弁機能を備えた小型液体シンチレーション測定器 (LSC) である。トライアスラーは一体型の鉛シールドにより自然放射線の影響をブロックし, バックグラウンドを下げる方式になっているが, ラドン濃度測定の場合はラドンの崩壊により生ずる α 線と β 線が計測出来れば十分であり, 自然界に存在する α 線は飛程が短く, 殆どラドン濃度測定の際の障害にはならない。

トライアスラーは小型・軽量であることから, 自家用車や宅配便を利用すれば簡単に測定現場へ運ぶことが可能で現地でパソコン処理をすれば測定値が得られ, スペクトルの形状も確認でき, 現地調査には有効である。

1. はじめに

ラドン (^{222}Rn) は半減期3.825日 (壊変定数: $\lambda = 1.258 \times 10^{-4} \text{min}^{-1}$) で崩壊し, 次に示すような娘核種との間に3.17時間で放射平衡が成立する。



LSCは α , β を同時に計数出来るため, ラドン測定においては ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po の3つの α , ^{214}Pb , ^{214}Bi の2つの β を同時に計数することになり, 積分計数法が開発, 使用されているがその時の $3\alpha + 2\beta$ の計数効率は100%である。

水中のラドン濃度測定には現在 LSC を用いる方法が一般的に用いられているが, フィールドワーク等の際, 現地で直ぐ濃度を知りたい場合には不向きである。調査地域へ持ち運べる機種として従来 IM 泉効計が用いられているが, 計測にか

なりの熟練を要し、一日に測定できる試料数も多くない等の難点がある。

近年、現地へ運んで測定することが可能な測定器が幾つか開発され、使用され始めて来た。トライアスラー (Triathler) もそうした測定器の一つで、専用のケースに入れて調査地域に運び、測定することが出来る小型液体シンチレーション測定器 (LSC) であり、採水した試料を実験室へ持ち帰り、測定を開始するよりも効率的である。

本報は可搬式 α 、 β 波形弁別型 LSC: トライアスラーを用いた実際的な水中のラドン濃度測定法について検討した結果をまとめた。

2. トライアスラー

フィンランドで開発されたトライアスラー (Triathler) は小型の機器 1 台をマニュアルで操作するだけで、液体シンチレーション測定、 γ 線測定およびルミネッセンス測定を行なうことが出来る。3 種類の検出機能を備えていることから Triathler と命名されているが、もちろん本体のみで 3 種類すべての測定が出来るわけではなく、それぞれ目的の測定に必要なオプションのパーツを組み込む必要がある。

トライアスラーの液体シンチレーション測定機能はエネルギーの低い軟 β 線測定用に開発されており、通常の測定条件は最も一般的な 13 種類の標識核種 (^3H , ^{14}C , ^{32}P といった β 線放出核種が主体) が内蔵されており、ユーザーは標識核種の名前さえ分かっているならば 13 種類の中から必要な標識核種を選択するだけで測定条件を提供してくれる。また同時に β 線、 γ 線放出の多標識核種試料の測定も出来るよう設定されている。

α 線も同様に測ることは出来るが α 線、 β 線のカウント数はトータルの放射能値として出力される。トライアスラーではラドン試料のように α 、 β の共存する試料を測定する場合にはオプションの α 、 β 分離機構を用いて α 線と β 線を分離し、エネルギーピークを明確に捉えることが出来る α 線のみで計数値からラドン濃度を求めるよう設計されている。ラドン濃度測定の際得られる α 線の

計測値は ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Po の 3 つの α のトータルを示している。

2. 1 トライアスラーの特徴

高さ 19cm, 奥行き 33cm, 幅 25cm, 重量 9 kg とコンパクトであり、サンプリングの際に直接現地に運び、その場で測定することが可能である。トライアスラーを図 1 に示した。測定用のバイアルは通常大型の LSC と同じ容量 20ml のガラスバイアルが用いられるが、3 種類のホルダーを利用することにより多種類の容器が使用可能である。使用可能な各種バイアルを図 2 に示した。

次にトライアスラーの主な特徴をまとめてみると次のようになる。

- ① 1000チャンネル MCA 搭載
- ② 2 keV~2000keV までのエネルギー範囲の核種の測定が可能
- ③ ^3H では 45% までの測定効率をもつ

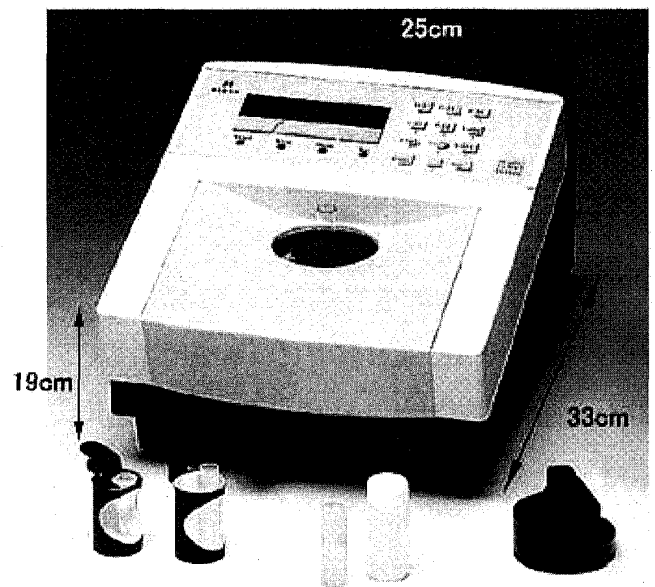


図 1 トライアスラー

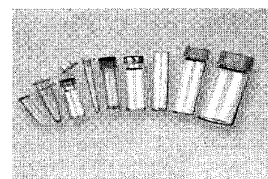


図 2 使用可能各種バイアル

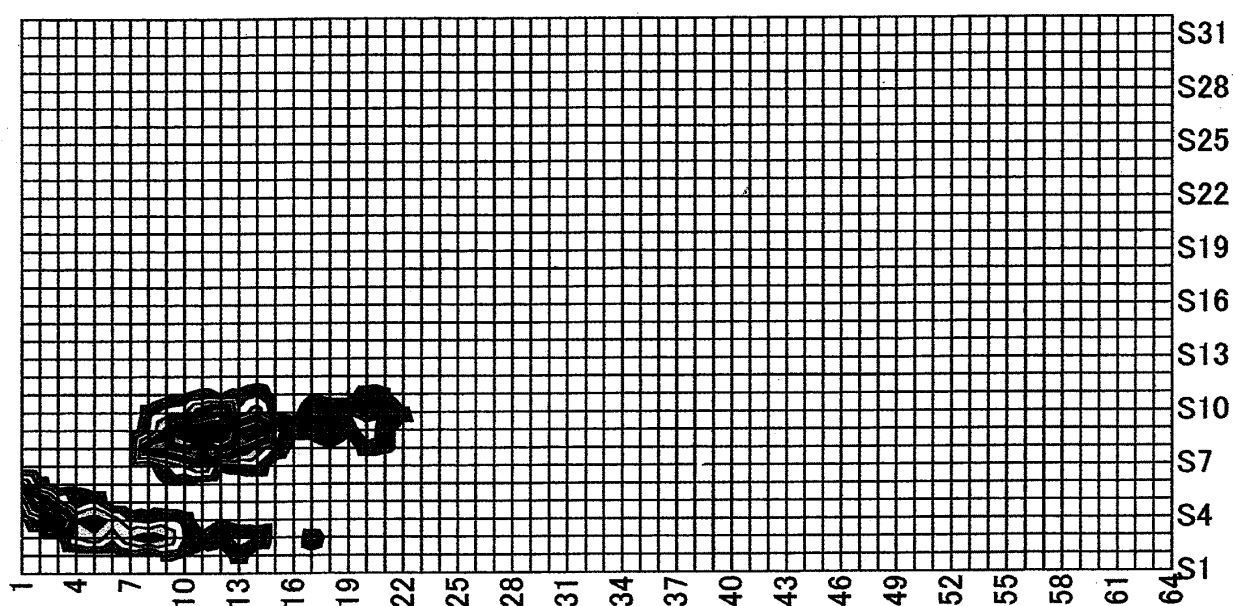


図3 トライアスラーによるラドン測定試料の二次元グラフ

- ④ 電源：12V DC, 1.5A/100V AC, 50/60Hz
 ⑤ 規格・寸法：190mm (高さ)×330mm (奥行き)×250mm (幅), 重さ 9 kg

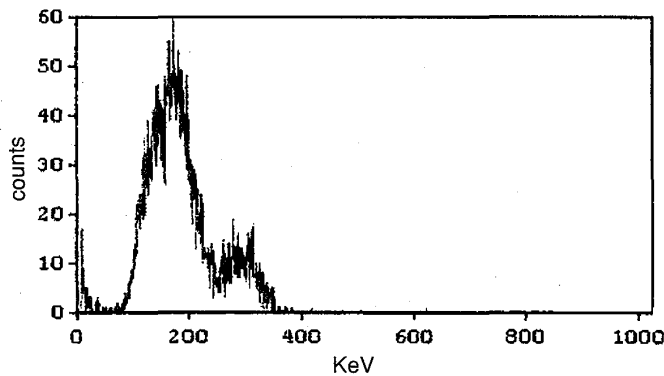
その他付属品として内部一体型鉛シールドや頑丈なアルミのフレームつきで高密度のクッション材により本体を保護出来る機器ケース等の付属品があり、野外調査に有効である。トライアスラーはコンパクトながら LSC と同様の原理で、微弱な光を測定することの出来る装置であり、光エネルギーは光電子増倍管 (PMT) へ誘導され電気パルス信号に変換して計測する。

トライアスラーにおける α 線/ β 線の分離機構は Mc Dowell の理論¹⁾に従っており、 α 線、 β 線の異なった性質を利用している。即ち、LS カクテル剤の中で、 α 線は β 線よりも若干持続時間の長い光パルスを発生させている。測定中それぞれのパルスはデジタル化され、数的に処理されるが、その際 α 線または β 線スペクトルの相対的なパルスの長さに応じてパルス特性が強調され、 α 線と β 線の領域を分けて捕らえることが出来るようになる。 α 線と β 線のスペクトルは、パルスの数量をパルスのエネルギーとして表示し、スペクトルから得たカウントは CPM 値に処理される。

また、収集されたそれぞれのパルスを接続したパソコンで処理すると図3のような二次元グラフ

が得られる。この二次元グラフには二つのブロックが見られるが、上部の島状に独立したやや楕円形をした部分は α 線のピークを示している。その中のいくつもの丸い線は α 線の同じカウント数の所を結んであり、地図の等高線と同じで三次元で表せば画面から α 線のピークが垂直に立ち上がってくると思えばよい。下部の裾を引いたような部分は β 線の連続スペクトルを示している。パルスの高さ (エネルギー全体) は X 軸で、パルスの長さは Y 軸で示される。接続したパソコンでラドン濃度測定の際の α 線と β 線のスペクトルをみると図4のようになる。

二次元グラフは信号伝達の都合上 1024×1024 から 64×32 に圧縮してパソコンの画面上に表示されるようになっている。即ち、X 軸スケールの圧縮率は 16 (1024/64) であり、Y 軸スケールは 32 (1024/32) である。二次元グラフからは α と β の領域を分離する Pulse Length Index (PLI) を決めることになる。この際 PLI の上に来るパルスは α 線、下は β 線として記録される。図3の試料の二次元グラフでは PLI 値は Y 軸の数値からみると S6 である。 β 線も同様に領域を定めるが、0 チャンネル付近のノイズを除いて下限を定め、上限はスペクトルの終わるところまでである。

図4-1 トライアスラーによる α 線のスペクトル

次に α 線のピークの領域を定める必要がある。 α 線と β 線のエネルギー領域（ウインド幅）はX軸の数値から下限は7，上限は23と見ることが出来る。しかし，上に示したようにパソコンでは α 線， β 線のスペクトルも見ることが出来るので，最終的に α 線と β 線の分離パラメータの影響はスペクトル図を見ながらより相応しい値を選ぶことが出来る。

図3を例にしてPLIとウインド幅を求めた結果を下に示した。

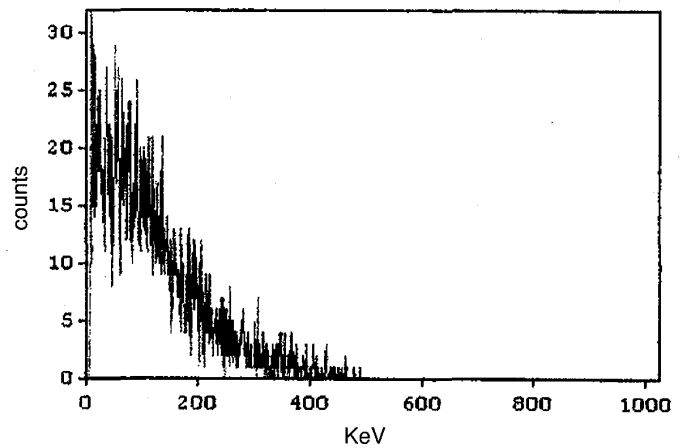
PLI 値は	6	×	32	=	192
ウインド幅（下限）	7	×	16	=	112
ウインド幅（上限）	23	×	16	=	368

PLI 値は192， α 領域は112～368となる。

最適な結果を得るには，ウインドと境界線の設定を何度か変更する必要がある。 α 線と β 線双方を測定したい場合， α 線のみを測定してバックグラウンド（ β 線）カウントを最小にしたい場合など状況によって値は異なる。しかし，PLI 値や α 領域はかなり安定した値なので同じ条件で同一核種の測定を行う場合には，毎回PLI 値や α 領域を決める操作を繰り返すことなく同じ値を用いることが出来る。

3. トライアスラーによるラドンの測定

トライアスラーのテクニカルノートによるとラドン測定の場合，計数効率率は約90%と記されてい

図4-2 トライアスラーによる β 線のスペクトル

る。絶対測定することも可能であるがその際には濃度既知のスタンダードを用いて計数効率を機器毎に定めなければならない。

今回は従来使用している大型のLSCとの相対比較法を検討した。試料調製は1Lの試料水からトルエンベースの液体シンチレーター（LS）による抽出法により行った。各種ラドン濃度の試料につき実験室の大型LSCとトライアスラーの両方で測定し相関のグラフを作成し，その結果を図5に示した。相関係数は0.997，原点を通る直線が得られた。

4. 実試料への応用

トライアスラーを用いて2003年指定された東京都の57名湧水の試料を測定した結果を表1に示した。実測したキャリブレーションカーブを用いてトライアスラーによる測定値を求め，大型LSCで得られた値と比較検討を行ったが，現在のところあまり満足の行く結果は得られていない。両者の測定に時間が開きすぎる，といったような不備な点があったこともデータのバラツキの一つとして考えられる。

5. 鉛シールドのないトライアスラーとの比較

自然界には宇宙線や大地からの放射線があって通常の放射線計測には大きな障害になる。トライ

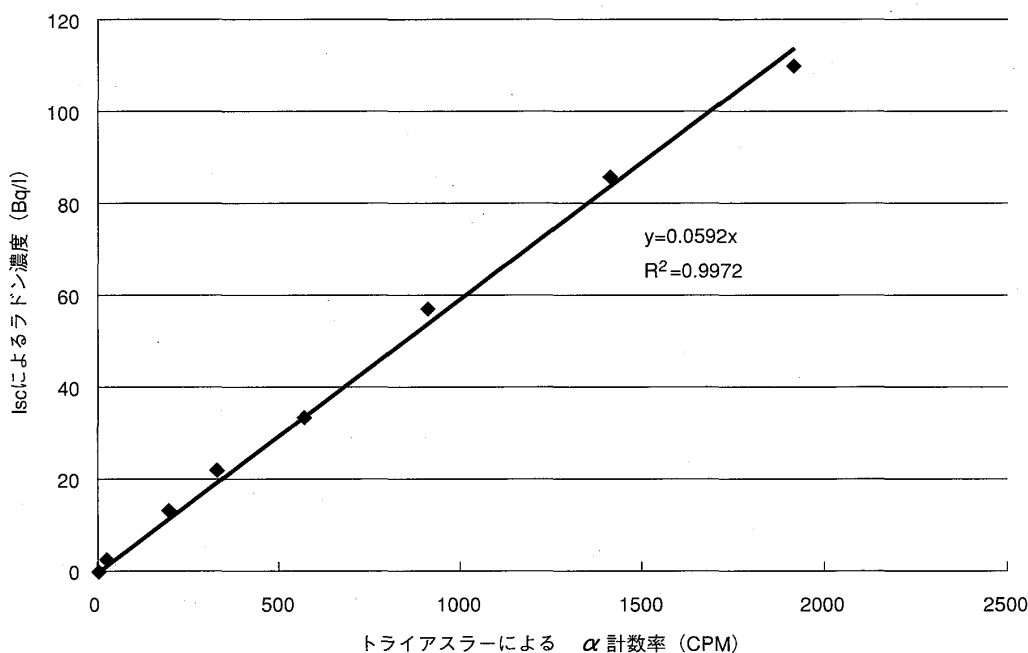


図5 キャリブレーションカーブ

表1 東京名湧水中のラドン濃度測定結果 (Bq/l)

試料名	α CPM	Triathler (A)	LSC (B)	A/B
穴澤天神社	209	10.91 \pm 0.83	7.03 \pm 0.06	1.55
中央図書館下湧水	545	16.84 \pm 1.35	17.67 \pm 0.08	0.95
二つ池公園	601	17.83 \pm 1.42	13.45 \pm 0.07	1.33
竹林公園	994	24.76 \pm 1.82	23.62 \pm 0.10	1.05
南沢緑地	1126	27.08 \pm 1.94	25.42 \pm 0.10	1.07
目黒川天神	999	24.85 \pm 1.82	21.79 \pm 0.09	1.14
釜の水	511	16.24 \pm 2.61	17.34 \pm 0.09	0.94
二宮神社	638	18.48 \pm 2.92	21.88 \pm 0.10	0.84
八雲神社	707	19.70 \pm 3.07	23.08 \pm 0.10	0.85
常盤の清水	394	14.18 \pm 2.29	13.25 \pm 0.08	1.07

アスラーは一体型の鉛シールドをオプションで入れることにより自然放射線の影響をブロックし、バックグラウンドを下げる方式になっている。しかしラドン濃度測定の場合はラドンの崩壊により生ずる α 線と β 線が計測出来れば十分であり、自然界に存在する α 線は飛程が短く、殆どラドン濃度測定の際の障害にはならないと考えられる。そのうえ一体型の鉛シールドは重量が6.5kgもあり現

地調査等の際使い勝手が悪くなり、またそれだけコストも上がることになる。

そこで鉛シールドのある器種とない器種との二台のトリアスラーを用いてラドン濃度測定の際のバックグラウンドの比較を行なった。まずラドン含有試料を用いて二つの測定器のPLI値を定めた。次に α 線と β 線のスペクトルの形を見ながら両器の高圧電源を設定した。機器により高圧電

表2 鉛シールドの有無によるバックグラウンドの違い

鉛シールド	測定時間 (分)	α カウント数	α CPM	β カウント数	β CPM
あり	10	7	0	1988	200
	10	7	0	1978	200
	10	8	0	2003	206
なし	10	8	0	2165	220
	10	7	0	2138	218
	10	6	0	2092	210

源の設定が異なり、ウインド幅、すなわち α 線と β 線のピークの領域の定め方によって最終的には α 線と β 線のカウント数に差が出てくるからである。そこで同一試料を用いて α 線と β 線のカウント数に差が出ず、両者とも最大のカウント数になるようにスペクトルを見ながら繰り返し高圧電源とウインド幅を調整した。

二つの測定器による測定結果を表2に示した。

測定の結果鉛シールドのあるなしは α 線の計測にはほとんど関係ないということが分かった。よってラドン計測には鉛シールドのない器種で十分である。

6. 考察および今後の課題

トリアスラーは小型・軽量であることから、自家用車や宅配便を利用すれば簡単に測定現場へ運ぶことが可能で現地でパソコン処理をすれば測定値が得られ、スペクトルの形状も確認できる(試料の純度が推定出来る)。また安定した測定値が短時間で得られ、連続測定は出来ないが、かなりの数の試料が測定出来、現地調査には有効で

ある。

トリアスラーは測定条件を定めれば絶対測定することが可能であるし、 α 線と β 線の分別能や発光効率の高いナフタレン系化合物等を用いた LS²⁾を用いると計数効率があがる可能性もある。大型 LSC に α と β の波形弁別器を接続してラドンの計測を検討した結果半減期の短い RaC' (²¹⁴Po) が他の2つの α 線の1に比べて0.78~0.94であるとの報告がある。そこでトリアスラーの α 線のスペクトルから RaC' (²¹⁴Po) ピークを分けてカウント数を求めてみたが本器の場合0.5以下であった。この点の検討は今後の課題である。

7. 参考文献

- 1) W. J. Mc Dowell; Alpha Counting and Spectrometry Using Liquid Scintillation Method, Report NAS-NS-3116, 1986
- 2) 野口正安, 佐藤兼章, 樋口英雄; α β ・PSD による微弱 α 放射能測定, 第21回理工学における同位元素

Determination Method of Radon Concentration in Water by the Small Handy Device : Triathler

HORIUCHI KIMIKO, NIWAYAMA NAOKO, NAKAYAMA AYAKO

School of Social Information Studies, Otsuma Women's University

Abstract

When natural radio-nuclides have to be determined in water samples sampling and sample conservation during transport to the laboratory, it is generally considered as the main cause for errors. Especially, when Radon and daughter nuclides are investigated onsite analysis is advantageous.

Triathler is a small handy LSC type device which one is able to carry to the analytical site easily. Triathler can separate alpha and beta spectrum too. Alpha and beta separation technique is based on the different properties of these particles, in LS cocktail alphas produce light pulses with slightly longer duration than betas. During counting, each pulse is digitized numerically processed and added either to the "alpha" or "beta" spectrum, depending on its relative length. Alpha and beta spectra show a number of pulses as a function of pulse energy. Counts are obtained from the spectra and processed to CPM values as with other methods.

This paper describes methods for in-situ measurement of Radon and daughter nuclides followed by LS spectrometry with the portable LS system type Triathler.

Key Words (キーワード)

Triathler (トライアスラー), Alpha and beta pulse separation (α β 波形弁別), Portable LSC (可搬式液体シンチレーションカウンター), Radon (ラドン), Field work (野外調査), Handy (手軽)