

内94-10

早稲田大学大学院理工学研究科

# 博 士 論 文 概 要

## 論 文 題 目

ラドン濃度の測定法と  
大気放射能の線量評価に関する研究

申 請 者  
床次 眞司  
Shinji Tokonami

物理学及応用物理学専攻 原子核工学研究

1994 年 10 月

過去において、アメリカのコロラド及びニューメキシコ州、チェコスロバキアのボヘミア地方、カナダのオンタリオ及びサスカチュワン州のウラン鉱山の坑内作業員、及びニューファンドランドの螢石鉱山、スウェーデンとイングランドの金属鉱山の坑内作業員のグループの間で過剰の肺癌の発生が見いだされた。これらの作業員の積算照射線量の推定値と肺癌の過剰発生率について長期間の観察が行われ、その結果ラドン娘核種による集積照射量（単位：WLM）と肺癌の過剰発生率との間に500WLM以下では比例的な関係があり、さらに50 WLM以上についてしきい値のない直線で結ぶことが可能であることが見いだされた。近年では、国連科学委員会（UNSCEAR）の1982年報告で、ラドン娘核種の吸入に基づく被曝線量に、実効線量当量概念を導入して計算し、自然放射線による被曝の約半分を占めているとした。また1990年国際放射線防護委員会（ICRP）は、ラドン濃度の高い地下作業場の作業員を放射線作業員として扱うべきであると勧告した。このような背景のもとに社会的な要請から、欧米では様々な環境に存在するラドンの調査が行われている。土壌中にはウランやラジウム等を含む鉱物が広く分布しているため、これらがラドンの発生源として種々の形態で人の生活環境に関与している。これら天然放射性核種による放射能は一般的に低いとはされているものの、例えば近年の住宅構造の気密化などによって家屋内でのラドンの蓄積が見られ、それが世界的傾向になっているようである。このためわが国でも生活環境におけるラドン濃度の実態を把握するとともに、それによる線量の評価が急がれている。

ラドンに関わる線量評価は、通常その娘核種が放出する $\alpha$ 線により人が受けるであろう潜在的な損害の量で行われる。このため、この目的で行われる測定はラドン濃度が対象ではなく、その娘核種濃度が対象となる。3種類の娘核種濃度を一元的にしかも線量評価に便利なように表した濃度がPotential Alpha Energy Concentration (PAEC)あるいは平衡等価濃度である。しかしながら、これらの測定には動力を必要とするいわゆるアクティブ型の測定器が必要であるが、調査の規模が大きくなりまた生活環境に与える騒音や占有スペースなど好ましくない影響を与えるので、通常、小型で無騒音の簡易な方式のパッシブ型ラドンモニタを使用し、それよりPAECを推定する方式が採られている。このような装置により得られる濃度は長期間のラドンの平均濃度であるが、生活環境では様々な要因によってラドン濃度は時間的にもまた空間的にも変動し、その変動幅も大きい。したがって人の生活活動と関連を持って線量を有意に評価するためには、これらの濃度レベルと時間的かつ空間的な関連を調べる必要がある。本研究では、そのための濃度測定法について、低レベル環境に対応できる高感度の測定法や、短時間の濃度変動に追従できる測定法を中心に、開発もしくは整備してその性能を検討した。さらに線量評価のために必要と思われる幾つかのパラメータを工学的観点から評価した。

本論文は6章で構成され、第1章は序論、第2章はラドン濃度の測定法、第3章はラドン娘核種濃度の測定法、第4章はラドン娘核種の粒径分布の測定法、第5章は線量評価に係る測定法と結果、第6章は結論となっている。

第1章では、国連科学委員会の1982年報告、ICRP Publication 32, 50, 60を引用して、本研究の意義と目的を述べる。

第2章では、測定にあたって外部エネルギーを供給するか否かによってアクティブ法とパッシブ法に分類し、さらに前者をサンプリング方法で細分類したラドン濃度の測定法について述べる。ラ

ドン濃度は直接線量評価に組み入れられないが、その値もPAECの変動を予測する上で重要である。グラフサンプリング（間欠的な捕集）による測定では、活性炭濃縮法による低レベルラドン濃度測定法について、活性炭の吸着理論に基づいてラドン濃度が不均一であるような場合に対する測定システムを構成するとともに、活性炭への吸着時の条件について検討した。その結果、活性炭4.8 g、吸着時の流量 $0.5 \text{ l min}^{-1}$ 、総空気量 $20 \text{ l}$ として、検出限界が $0.7 \text{ Bq m}^{-3}$ となり、低レベル環境でのラドン濃度測定が可能となった。さらに空気中のラドン濃度が変化している場合の活性炭吸着法について必要な条件を実験的に確かめた。連続サンプリングによる測定では、two-filter法と静電捕集法の2法について測定原理及び特徴を述べる。two-filter法はグラフサンプリングによるラドン濃度測定法として考えられていたが、これを連続サンプリングによる測定に応用するため、Si半導体検出器を用いて生成直後のRaAの $\alpha$ 線を検出することにした。本法の感度の見積りに関してはディケイチェーン内での付着損失分の評価が重要であるため、種々の条件を仮定し拡散による付着理論に基づく計算値と実測値を比較した。流量を増せば測定感度は向上し、また湿度による影響は実測では認められなかった。流量 $9.4 \text{ l min}^{-1}$ のとき、30分間の測定で $2.7 \text{ Bq m}^{-3}$ まで測定可能となった。これに対し静電捕集法の感度は、流量とは無関係に電荷を持った娘核種を短時間に効率よく捕集するための電界強度に依存する。ここで述べる測定装置には検出器表面に娘核種を直接集めて検出する方式を採用したため、エネルギー分解能が高くなりラドンのみならずトロン濃度の定量も可能となった。流量 $3.5 \text{ l min}^{-1}$ とし、30分間の測定での検出限界はラドン濃度で $3 \text{ Bq m}^{-3}$ 、トロン濃度で $20 \text{ Bq m}^{-3}$ となった。しかしながら、たとえ捕集のための電界強度を高くしても、容器内の水分子による電荷の損失があり、このため除湿剤の効果の評価が重要である。両者の方法には特有の利点と欠点があり、使用環境に応じて測定法を選択すべきである。パッシブ法による測定法については、拡散付着を利用したモニタの過渡的特性について述べる。この特性はラドン濃度と曝露時間との相反則を確認する上で重要である。すなわちモニタの内壁に半導体検出器を設置し、モニタ内のラドン及び検出面に付着した娘核種より放出される $\alpha$ 線の時間的変化を以下の状態で測定した。a) モニタ内にエアロゾルのない状態、b) モニタ内に多量のエアロゾルが存在する状態、c) エアロゾルはないが、モニタ内に静電帯電に起因する電界が存在し、容器内壁が正で中心部の検出器（固体飛跡検出器）の部分が負の状態、である。これらの実験結果から、エアロゾルの影響はモニタの半径に依存するが、モニタ内部の帯電は短時間で消滅することが明らかにされた。さらに、従来間接的な測定から求められていたパッシブモニタの性能の1つである換気率もラドンから放出される $\alpha$ 線の時間的変化から直接決定することができた。

第3章では、第2章と同様にサンプリング方法で分類したラドン娘核種濃度測定法について述べる。これには、線量評価のみならずそれらの空気力学的性質を把握することを目的とした個別濃度の測定と、線量評価のみを目的としたPAECの測定の2法がある。グラフサンプリングによる測定では、娘核種個別濃度を迅速に測定するため、従来の $\alpha$ 線計測に $\beta$ 線計数を加えた濃度評価法を検討した。その結果、測定条件によっては従来の約半分の時間でかつ1回の測定で個別濃度が求められるようになった。連続サンプリングによる測定では、連続捕集型のPAECモニタを製作し、その計算方法について検討を行った。これにより比較的短時間の濃度変動がある場合や、ラドンとトロンが混在している環境においても連続的かつ正確に短い時間でのラドン娘核種のPAECのみならずトロン

娘核種のPAECも求められるようになった。さらに野外や任意の場所での調査を目的とし、可能な限りパッシブ法に近いPAECのモニタリング法について研究した。すなわち従来ウラン鉱山などで使用されている個人被曝管理を目的とした携帯用の積算型PAECモニタを、生活環境レベルの測定に対応できるように感度を向上させるため機構等を改良したモニタを製作してその性能を評価した。その結果、任意の場所に設置することができ、かつ十分な感度を有したモニタを得ることができた。また検出器として使用したCNフィルムの特性の信頼性が近年失われてきたため、安定した感度を得るための方法についても検討した。

第4章では、ラドン娘核種の粒径分布の測定法のうち、拡散バッテリー法とロー・プレッシャー・インパクター法について、両者の測定方法及び特徴を述べる。前者の方法は粒子の拡散付着を利用しているため、拡散速度の大きいフリー成分（エアロゾルに付着していない娘核種）の測定には適しており、また熱力学的粒径の分布が求められる。しかしながら付着成分の粒径分布測定を減量法により求め粒径を推定する必要があり統計誤差が大きく、また分級特性がブロードであり工学的に迅速性に欠ける。そのため、空気力学的粒径が求められる後者の方法を採用し、低レベル環境での測定に対応できるよう配慮した粒径分布測定装置を製作した。インパクターの各捕集ステージに小型のSi半導体検出器（フォトダイオード）を設置し、検出面に付着した娘核種を粒径別に捕集しながら同時に $\alpha$ 線を検出し、粒径別の娘核種個別濃度を求めることに成功した。これにより、70分程度の測定時間で生活環境のような低い濃度レベルにおけるラドン娘核種の粒径分布までも求めることが可能となった。

第5章では、線量評価に係る測定法と結果について述べる。線量評価にはいくつかの方法があるが、現在のところ確定されてはいない。しかしながらJacobi-Eisfeldモデル、James-Birchallモデルは線量評価上必要ないくつかのパラメータを細かく分類しているため、有力な評価法であるといえる。これらのうち主な工学的パラメータは、ラドン娘核種のPAEC、フリー成分のPAEC比 ( $f_p$ )、ラドン娘核種の粒径分布である。ここでは生活環境におけるこれらの実測結果とともに、その存在形態と傾向を示した。屋内環境では平衡等価ラドン濃度と平衡等価トロン濃度の濃度変動が良く一致する結果となり、居住者の生活パターンを表現していると考えられた。これに対し屋外の例では昼間低く夜間は高い濃度の日変化が認められた。屋内環境の連続測定の結果からは、大幅な換気条件を変えない限り平衡係数と $f_p$ は対数正規に近い分布型を示すことが明らかとなった。また生活環境におけるラドン娘核種の粒径分布の測定により、放射能中央径は大略 $0.1\sim 0.2\mu\text{m}$ の範囲にあることがわかった。

第6章では、本論文を総括し、得られた成果を述べる。