

論文

プラスチック吸収型ラドン測定装置の試作

齋藤正明* 谷崎良之*

A New Detection of Radon Water by Absorptive Plastic Scintillation Counting

Masaaki SAITO and Yoshiyuki TANIZAKI

Abstract Polystyrene is the main component of plastic scintillator, and it absorbs radon as well as liquid aromatic solvents. A new radon monitor which detects radon distributed into plastic scintillator has been developed. A photomultiplier tube and plastic scintillator film were installed in a dark chamber, and radon water was introduced in the chamber. It was found that a scintillation spectrum of radon series was observed. Then the radon concentration in water could be measured by use of plastic scintillator as an absorbent of radon. This method, APS: Absorptive Plastic Scintillation counting, is useful as a continuous radon monitor for environmental research.

Keywords Radon, Water, Plastic scintillator, Polystyrene, Monitoring

1. はじめに

ラドンが液体トルエン同様に固体ポリスチレンに分配されること、この現象を利用して、ポリスチレンをトルエンシンチレータに溶解し、ラドンを計測する APDLS 法 (Absorptive Polymer Dissolved Liquid Scintillation counting, 吸収型高分子溶解液体シンチレーション測定¹⁾²⁾)を報告した。プラスチックシンチレータがポリスチレンに発光体分子を分散させた物質であることに着目し、APDLS 法を発展させ、ラドンを吸収したプラスチックシンチレータフィルムを固体状に保ったまま計測する新規な放射線検出方式を提案した。この方式を APS 計測 (Absorptive Plastic Scintillation counting 吸収型プラスチックシンチレーション) と呼ぶことにした³⁾⁴⁾。

本報では、APS 計測器を実際に試作し、ラドンの検出を試みた。プラスチックシンチレータをラドン水あるいはラドン空気にさらすと、ラドン分子がプラスチック内部に拡散して、熱平衡状態でラドンの一定比率がプラスチック中に吸収 (分配) される。表面吸着だけでなく、プラスチックによるラドンの溶解現象が生じることは次のように APDLS 法によって容易に確認できた。同質量の 2 枚のポリスチレンフィルム試験片を用意し、一方の試験片は半分に折って重ね周囲を熱融着しておいた。2 枚の試験片を攪拌によって濃度を均一に保ったラドン水中でラドンを吸収させた後、

それぞれトルエンシンチレータに溶解して液体シンチレーションカウンタで比較した。2 枚の試験片はラドン水に接する表面積が 2 倍異なるにもかかわらず両者のラドン吸収量に違いが認められなかった。ラドンはプラスチック内部に拡散、吸収されることが確認できた。

プラスチックシンチレータ内部に拡散・吸収されたラドンから放出される α 線および β 線のエネルギーはポリスチレンのベンゼン環を経て発光体分子と作用して発光現象を生じる。この発光を光電子増倍管で検出することで放射線を検知する。

本研究の着想は液体シンチレータをフィルム状プラスチックシンチレータに置き換えたものと捉えることができ、プラスチック内部に吸収された放射性物質のシンチレーション測定という概念がこれまでになく独創的である。理論的には吸収される物質量が熱平衡論に従うことから定量的信頼性が高く、放射線検出プロセスも液体シンチレーション計測同様に理想的であることが期待できる。

2. 理論

一般に知られているプラスチックシンチレーション計数器とは、光電子増倍管の検出部に円柱形ブロック状のプラスチックシンチレータを密着させ、金属カバーを透過して外部から入射してくる透過性の高い α 線を光に変換し検出するもので放射性物質など物質の出入りは全く想定されていない。

*放射線応用技術グループ

これに対して、APS計測器ではFig.1のように測定対象物質中(水や空気)に露出して置かれたフィルム状のプラスチックシンチレータと光電子増倍管とは密着させないで隙間が設けてある。フィルムの両面から放射性物質が入りしやすすい構造でフィルム内部まで拡散したラドンを検出するのである。

2.1 プラスチックシンチレータへのラドンの溶解

常温では、ポリスチレンなど鎖状高分子の非結晶部分は高分子セグメントの運動によって微視的に液体分子類似の挙動をする。試料水中のラドンはプラスチック中に入ることができる。ある温度における熱平衡状態では、共存する気相、液相及び固相でのラドンの自由エネルギーが等しくなる結果として、プラスチックへのラドンの出入りの数の比率が一定値となる。換言すると水中ラドン濃度あるいは大気中ラドン濃度に対し、プラスチック中ラドン濃度は一定比の関係となる。

既報¹⁾では、単位質量当たりのラドン濃度の比率は熱平衡状態で水 1 に対してシート状ポリスチレン 51 で、標準状態での化学構造の似かよったトルエンやベンゼンなど低分子物質とほとんど同じであった。この熱平衡状態のラドンの分配比率を単位体積当たりで比較すれば、水中 1 に対してほぼ空气中 4、ポリスチレン中 50 である。

2.2 放射線の光への変換

このプロセスは、固体のプラスチックでありながらも液体シンチレーションと同様である。プラスチックシンチレータ中のラドン系列核種から一つの放射線が放出されると、そのエネルギーはポリスチレンのベンゼン環パイ電子を伝播して、多数のシンチレータ分子から多数の光子が放出される。光子の進行方向はある一方向であるが、多数の光子が生じる結果として同時に 4 の全方位に向けて光子が放出されることになる。これらの光子のうち何分の一かは光電子増倍管で検出され、放射線が放出されたという現象が検出される。

フィルムに吸収される放射性物質の物質量が抽出平衡における分配係数に従うことから、水中あるいは空気中の放射性物質濃度に比例した計数値が得られることになる。Fig.2のように遮光容器内にプラスチックシンチレータフィルムと光電子増倍管を対面配置した測定器を試作し、放射線検出を試みた。

放射線のエネルギーが高いほど励起されるシンチレータ分子数が多く、放出される光子数も多くなる。光子数に応じて光電子増倍管からの検出パルス波高も高くなる。パルス波高別に計数することで、APSにおいても放射性物質を判別する放射線エネルギー解析が可能となる。

ラドンの水中濃度に比例した計数およびエネルギースペクトルが得られることは他には見られないAPS計測の重要なポイントである。

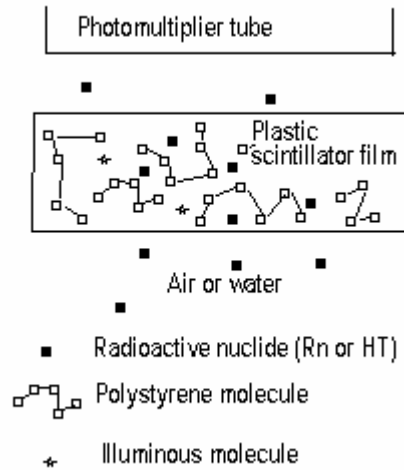


Fig.1 The new detection of radioisotopes.

The illumination frequency is proportional to the mass of the absorbed nuclide.
The strength of illumination (the mass of photon) is proportional to the radiation energy.

3. 実験方法

3.1 プラスチックシンチレータフィルムの調製

トルエンシンチレータ(同仁化学製 SCINTISOL AL-1)に等量のポリスチレン(和光純薬製)を溶解し、水面上に浮かべてトルエン溶媒を揮発させ、プラスチックシンチレータフィルムを作製した。実験に使用したフィルム厚さは約0.1mmであった。このフィルムを50mmに切り取り1枚あるいは5枚を約1mm間隔の隙間で積層して実験に用いた。

3.2 装置の試作

プラスチック吸収型ラドン測定装置のシステムは応用光研工業(株)に製作委託した。使用したユニットの内訳及び設定条件はそれぞれ以下のものであった。光電子増倍管は浜松ホトニクス社製 R878 印加電圧 = 650V, 計数カウンタは応用光研工業社製ラディエイションカウンタ RC-101B, 波高分析器(マルチチャンネルアナライザ)はCANBERRA社製 2802, であつた。マルチチャンネルアナライザ及び計数カウンタを同時に作動させた際に、ラドンの核種エネルギー範囲 90-1600ch の計数率とほぼ等しくなるように計数カウンタを利得設定ゲイン 300, デスクリミネータ 35-500ch に設定した。

3.3 模擬ラドン水の調製

ラドン水の初期濃度は約 300 Bq/L に調製した。ラドン濃度の定量は既報¹⁾³⁹⁾と同様に行つた。当初は遮光チャンバーの入水管, 出水管をシリコンゴムチューブ, 塩化ビニルチューブで外部のチューブポンプに接続して水を循環させたが, 樹脂によるラドン吸収が著しく, 定量的な比較が困難であつた。このため, チャンバー部に試料水を導入した後に入水管,

出水管のコックを閉じた気密状態で計数実験を行った。

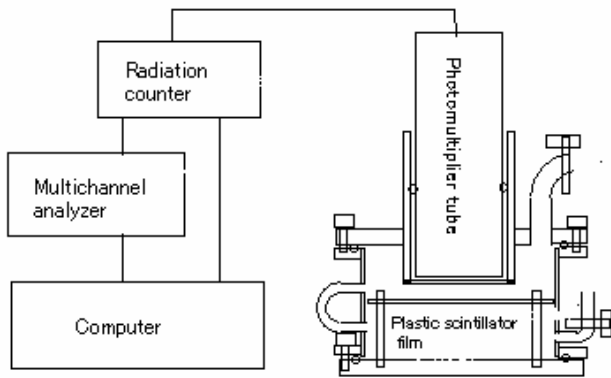


Fig.2 The structure of Absorptive Plastic Scintillation counting (APS).

4. 結果および考察

4.1 ラドンスペクトルの検出

プラスチックシンチレーターフィルム 50mm 厚さ 0.1mm 1枚を約 4mm の間隔で光電子増倍管に近接させ、遮光容器内にラドン水を導入したところ、マルチチャンネルアナライザによって、Fig.3 に示すように典型的なラドン系列のエネルギースペクトル (APS) が確認できた。高エネルギー側のピークが ^{214}Po の線 (7.687 MeV) である。低エネルギー側のピークは ^{222}Rn の線 (5.490 MeV) および ^{218}Po の線 (6.003 MeV) が重なり合っている。プラスチックシンチレーターフィルムに替えて、液体シンチレーションカウンタ用のラドンのトルエン溶液を同条件で観察したところ、Fig.3 に示すように同じ放射線エネルギー位置に同形のスペクトル (LS) が得られた。

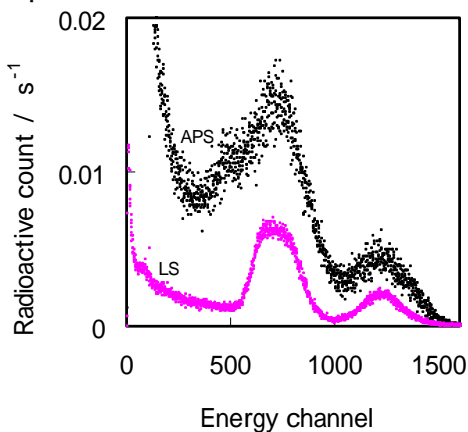


Fig.3 The energy spectra of Radon.
 APS: APS film in water sample.
 LS: Toluene scintillator vial.

プラスチックシンチレーターフィルムを厚くすれば計数率は増加し感度の向上が期待できるが、ラドン分子が拡散して平衡値に到達するのに時間を要し、濃度変化に対する時間応答性能が犠牲になる。このため、水が通過できる程度の 1-2mm の間隔で 0.1mm のフィルムを多層化したものを実験に用いた。

フィルムを多層化、大口径化すると発光点と光電子増倍管との距離や幾何学的位置関係が多様なものとなり単層小面積の場合より低エネルギー側にシフトしたスペクトルが多層化され、低エネルギー側に広がったものとなる。結果として分解能は劣ることになるが、地下水などでは、測定対象をプラスチック中に拡散しやすいラドンに限定できるので感度、計数率を向上させることができる。

4.2 ラドンの検出感度

プラスチックシンチレーターフィルム 0.1mm x 5 枚を使用した場合、830 Bq/kg のラドン水に対し計数率は 27cps であった。この感度は東京における環境濃度レベル地下水 10-40 Bq/kg に換算すれば 0.3-1.2cps と推定される。バックグラウンド計数率が 0.4cps であったことを考慮すると、実用には本報の実験よりさらにフィルムを多層化して計数値を増加させることが好ましい。平坦精度の高いフィルムを用いれば 2 倍の 10 枚重ね (1mm フィルム厚さ相当)、あるいは 3 倍の 15 枚重ね (1.5mm フィルム厚さ相当) 程度の製作及び測定は十分可能であろう。関西、中国地区などさらに一桁大きい地下水濃度のケースなどは本実験モデルでも実測可能と考えられる。

4.3 時間応答性能

本測定器はラドン系列のラドン、ポロニウム、ビスマスなど 5 核種を計数するために、吸収されたラドンが放射平衡に到達するのに約 4 時間を要する。この時間は本測定器の時間応答性能とは無関係である。他方、水中ラドン濃度が低下してフィルム内部からラドンが放出される際には放射平衡に要する時間を考慮する必要はない。従って水中ラドン濃度の低下変化から応答特性を観察した。

チャンバー内にラドン水を導入し平衡値に達した後に、ラドンを含まない水を数秒間導入 (Fig.4 中 印) し、強制的にラドン濃度を低下させた。Fig.4 中の 2 本の横線はそれぞれ濃度変化前の計数値の平均及び濃度変化後の計数値の平均を表示したものである。x 軸のプロット間隔は 1 時間である。濃度変化 2 時間経過後で新計数値の変動範囲に到達した。このことからラドン濃度変化に対する応答時間は 1 時間から 2 時間の間ということになるが、チャンバー内のラドン水が流動、攪拌されて常に均一であったならば、さらに短縮されたものと考えられる。以上を考慮して、濃度変化に対する応答時間は約 1 時間と推定される。

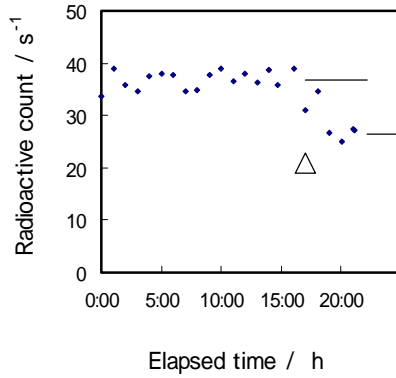


Fig.4 Time response of concentration change in radon water.

4.4 計数率の温度依存性

循環水の温度をリボンヒーター及び氷水を用いて、4時間にわたってチャンパー温度を 32 14 21 と変化させた。ただし、光電子増倍管部は氷水で常に 0 に保った。ラドン計数値の変化を x 軸に温度をとって Fig.5 に示す。

この実験では温度を均一化するために外部のポンプを用いて水を循環させたため、ラドン壊変に加えチューブ樹脂吸着による一定の減少が認められた。本実験結果のラドン計数値は温度変化操作前の 10 時間にわたって観測して得た見かけの半減期 1.25 日で補正したもので、時間変化に対して一定となったことを確認済みである。昇温 - 冷却 - 昇温という偏りのない変化過程における計数値であることも考慮すれば、水温 14-32 の変動範囲で計数値の温度依存性はみられなかったものといえる。

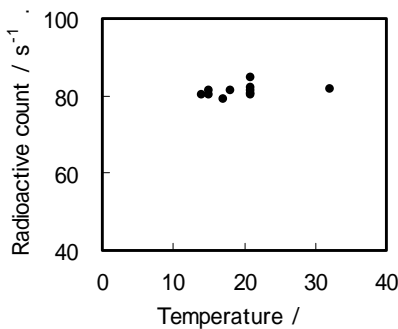


Fig. 5 Temperature dependence of radioactive counting.

ラドンの線の飛程は空気中で約 4cm、水中で 0.1mm と物質透過性が低く、これまで直接的な検出は容易ではなかった。一般的には、それらの放射性物質をバイアル瓶中のトルエンなどの液体に溶解し、定量性の高い液体シンチレーション測定⁵⁾⁻⁹⁾するが、測定毎に化学実験操作を必要とすること

から連続監視モニタなどには不適であった。これに対して、APS では何らの試薬類も使用せず、地下水を始めとした様々な環境水の連続測定が可能である。

従来の実用機種である硫化亜鉛式ラドン水連続測定装置は気相に移行したラドンからの放射線を検出面の発光現象として検出する方式である。この方式は放射線飛程範囲に存在するラドン分子のうち検出器方向の放射線だけを検出するため、定量測定に難点があった。APS は放射線エネルギー伝達物質中に溶解した量を計るため、線の飛程を考慮することもなく、また直接の計測対象が気相である必要もない。

5. まとめ

プラスチック中を放射性物質が出入りするということ、これまでに着目されたことのない現象を利用した装置を試作し、液体シンチレーションではない方式で初の線核種、線核種のエネルギースペクトルの検出に成功した。

本方式の利点として、発光現象がプラスチック内部の3次元空間で生ずることであり、自己吸収も少なく計数に関わる幾何的計数効率が 100 % であるなど他の放射線計測法の抱える問題点を解決している。エネルギースペクトルが得られることから、液体シンチレーション計測と同等の放射性物質別の測定が可能である。計数率が水中ラドン濃度に比例するという現象が熱平衡理論の単純なプロセスに基づくことから水中濃度あるいは空気中濃度に対する定量的直線関係に優れた連続測定モニタ用途として今後の活用が期待できる。

参考文献

- 1) 斎藤正明: *Radioisotopes*, **48**, 257-262(1999).
- 2) 斎藤正明: 特許第 3559727 号, May 28, 2004.
- 3) 斎藤正明: *Radioisotopes*, **50**, 563-569(2001).
- 4) 斎藤正明: 特開 2003-329775.
- 5) 野口正安: *Radioisotopes*, **13**, 362-366(1964).
- 6) Saito, M. and Takata, S.: *Radioisotopes*, **41**, 391-396(1992).
- 7) Saito, M., Takata, S. and Masuda, Y.: *Radioisotopes*, **42**, 330-334(1993).
- 8) 斎藤正明, 高田 茂: *Radioisotopes*, **43**, 515-522(1994).
- 9) 斎藤正明, 高田茂, 山澤典子, 堀内公子: 日本化学会誌, **1999**, 363-368(1999).

(原稿受付 平成 16 年 8 月 6 日)