

論文

発泡ポリスチレンを利用したラドンの最新測定技術

斎藤正明* 高田 茂*

A new method of radon measurement - absorptive polymer dissolved liquid scintillation counting

Masaaki SAITO and Shigeru TAKATA

Abstract A new method of radon measurement, absorptive polymer dissolved liquid scintillation counting, was developed. A polystyrene foam absorber which absorbed radon was dissolved in liquid scintillator, and the radioactivity was measured. This measurement has merits in that, (1) a solid state absorber has no chemical hazard, and is easy to treat, (2) the absorber itself is easily dissolved in liquid scintillator, and maintains ideal condition for liquid scintillation counting. The measurement will be available for liquid state or gas state. The time to reach equilibrium was 24 hours for a cross section 10×10 mm polystyrene foam. Absorbed radioactivity was proportional to the mass of polystyrene foam and to the partial pressure of radon. Absorbed radon activity of polystyrene foam was 130 fold that of water, or 2.6 fold that of toluene. Although the accuracy is less than the toluene extraction method, quantitative measurement is suitable not only to radon but to other radioisotope gases.

Key Words: Radon, Polymer, Polystyrene, Water, Liquid scintillation counter, Measurement

1. はじめに

ラドンの液体シンチレーション計測法に使用されてきた抽出溶剤はトルエンなどの芳香族炭化水素である。芳香族炭化水素は放射線から光へのエネルギー伝達性に優れ、ラドン溶解能力が高いからである。ポリスチレンもまた芳香環を官能基に持つ鎖状高分子である。化学構造の類似性から考えてポリスチレンは、(1)ラドンを吸収または吸着しやすい、(2)芳香族系シンチレータに溶解しやすい、さらに、(3)その溶液は液体シンチレーション計測に適している、という期待がもてる。

ポリスチレンは発泡スチロールという通称で食品トレイ、鮮魚運搬容器あるいは梱包材料などに利用されており、一般になじみがあり、安全性、安定性に優れた扱いやすい材料である。気化、蒸発しないこと、常温で溶出しにくいという性質は高分子物質であることに起因するも

ので、有害性が懸念されるトルエンとは大きく異なる点である。

ポリスチレンのように、液体シンチレータに溶解しやすい高分子材料を放射性核種の吸収剤として利用できれば、安全で簡易な液体シンチレーション計測が可能になる。固体状で、蒸発したり、溶出したりしない高分子材料を利用すること、吸収した核種を吸収材ごと液体シンチレータに溶解して計測することが、これまでにない特長であり、新しい測定法として提案するものである。この方法を APDLS (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) 法と呼ぶことにする。

APDLS法による測定手順は、測定したい気相中あるいは水相中に平衡値に達するまで放置した発泡ポリスチレンなどを計数バイアル中のシンチレータに入れるだけという簡単なものである。本報では、測定法としての適切な放置時間、発泡ポリスチレン材料のサイズ、定量性な

*精密分析技術グループ

どについて報告する。

2. 実験及び結果

2.1 液体シンチレーション計測

ラドン測定¹⁻⁵⁾及びラドン水の調製⁶⁾の詳細は既報と同じであるので概略だけを以下に述べる。ラドンの計数は液体シンチレーションカウンタPackard 2750 TR/LL及び内蔵の自動効率トレーサ法プログラム(ET-DPM)を使用した。ガラスバイアル中に満たされたトルエン溶液、あるいは水溶液について放射平衡状態での²²²Rnから²¹⁰Pbに至るまでに放射される合計5本の線及び線を100分間計数し、その1/5をラドンの放射能とした。壊変補正は文中で特に記述した箇所以外は試料調製時刻に合わせて行った。使用したシンチレータは、水溶液についてはPackard Picofluor LLT, トルエン溶液についてはトルエンシンチレータPackard Permafluor 1であった。

2.2 ラドン吸収量の平衡値到達時間

密閉された三角フラスコ内にラドン水及び発泡ポリスチレン試料を貯蔵し、貯蔵時間と吸収ラドン量の関係を調べた。気密栓付きの三角フラスコ(200 ml 用)7本にそれぞれ等しい量の発泡ポリスチレン試料及びラドン水を入れ密栓した後、15℃の恒温槽中に貯蔵した。貯蔵時間を変えて発泡ポリスチレン試料を取り出し、平衡値到達時間の測定を行った。使用した発泡ポリスチレン試料はサイズ10×10×100 mmの角柱状で、質量は0.241 gであった。

貯蔵時間と吸収ラドン量の関係を Fig.1 に示す。図から発泡ポリスチレン中に吸収されたラドン量は時間とともに増加していき、24 h 以降では平衡値に至ったものと見なせる。Fig.1 が発泡ポリスチレン中をラドンが拡散していく様子を示しているものと考えれば、発泡ポリスチレンの断面積がより小さければ、平衡値に至る時間はさらに短いと考えられる。計測試料調製に際して口径15 mm の計測バイアルに押し込む都合上、断面10×10 mm 以上のポリスチレン試料は使用できないから、実用的には24h=1日間でラドン吸収に要するのに十分な時間ということになる。

2.3 平衡ラドン吸収量

気相、水相及びポリスチレン相でラドン分圧が等しい状態にあるとき、水相中及びポリスチレン相中のラドン量を調べた。

気密栓付きの三角フラスコ(1000 ml 用)にラドン水約200 ml を入れ、断面10×10 mmの角柱状の発泡ポリスチレン試料をフラスコ内の気相中に吊し密栓した後、マグネッタスターラで水を攪拌しながら15℃で24時間以上貯蔵した。発泡ポリスチレンを水面に浮かせておくと、フラスコ壁面に張り付きやすく、張り付いた部分のラドン分布が不均一となる懸念がある。試料を気相中に吊せば、この張り付きを防ぐことができる。熱平衡状態では理論的に気相、液相及び固相のいずれのラドン分圧も等しいから、ポリスチレンを水中に沈めても、空気中に吊しても違いはないはずである。

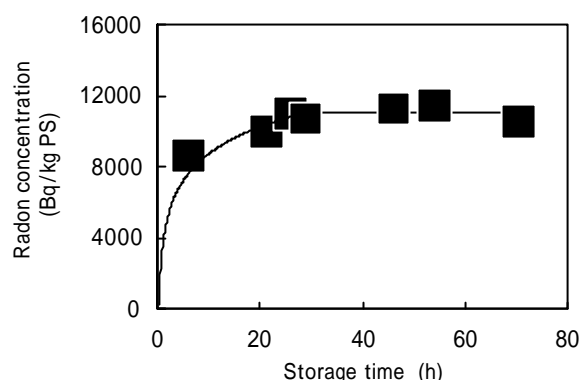


Fig.1 Storage time vs. radon concentration in polystyrene foam.

ラドン水の濃度及び発泡ポリスチレンの質量は実験の目的に合わせて変化させた。ラドンの水中濃度及び発泡ポリスチレン中濃度を以下の方法で測定し、分配係数を算出した。

ラドン水を三角フラスコから注射器で取り出し、予め水溶性シンチレータを入れておいたバイアル中に注入し、水中濃度の計測試料とした。水中濃度が20 Bq/kg以下の比較的低濃度ラドンについての実験では、トルエン抽出法¹⁻⁶⁾で水中濃度を測定した。

発泡ポリスチレンを三角フラスコから取り出し、表面に付着した水分を簡単に紙で吸い取った後、トルエンシンチレータでほぼ満たされたバイアル中に少しずつ押し込むようにして溶解させた。キャップを締め、バイアルをよく振って均一溶液としたものを発泡ポリスチレン中濃度の計測試料とした。

温度15℃における水中ラドン濃度を横軸に、発泡ポリスチレン中ラドン濃度を縦軸に取って Fig.2 に示す。図中のプロットからは(0,0)を通る直線関係が認められ

た。図中の直線はプロットデータの直線回帰計算から得たもので、傾き 129, 相関係数 0.997 であった。

この傾きは水とポリスチレンの二相間の濃度の比であるから、広い意味での分配係数と呼ぶことにする。発泡ポリスチレンのラドン吸収量は質量当たりの比較で水の約 130 倍であったことを意味している。この数値はトルエンの約 2.6 倍である。ここで、発泡ポリスチレン中濃度と水中濃度とが原点を通る直線的な比例関係にあることが重要である。この傾きが既知となれば、発泡ポリスチレン中濃度を測定して、共存していた未知の水中濃度、あるいは未知の空气中濃度が算出できることになる。

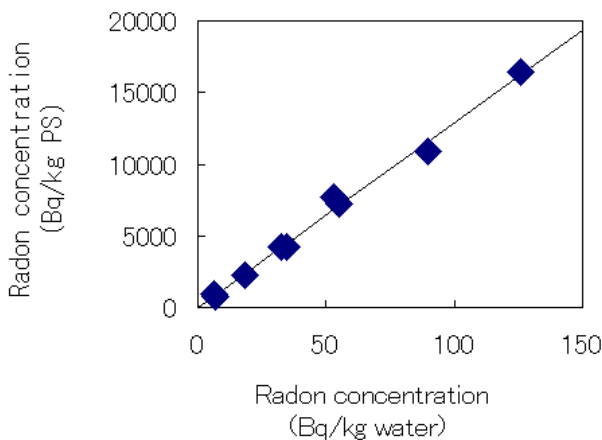


Fig.2 Radon concentrations of Polystyrene and water.

3. 考察

トルエン抽出法では、著者らが行ってきた通常の実験条件例ではトルエン中ラドン濃度は試料水初期濃度の約 10 倍に濃縮される。計測バイアルの容量から最大約 22 g のトルエン溶液を計測できるから、試料水 220 g 分に含まれるラドンを液体シンチレーション計測で計数できる勘定になる。

発泡ポリスチレンの分配係数が約 130 であったということは発泡ポリスチレン 1 g が試料水 130 g 分のラドンの吸収能力を持つことになるから、トルエン抽出法並の計数値を APDLS 法で達成するためには、1.7 g の発泡ポリスチレンを用いれば済むことがわかる。計測バイアルに満たされたトルエンシンチレータに対して発泡ポリスチレン 4 g 程度は容易に溶け均一な溶液となった。1.7 g の発泡ポリスチレンを使用することでトルエン抽出法に匹敵する計数率を達成することは可能ということになる。

APDLS 法は実験操作が簡易で有害物の使用を抑制できることが大きなメリットである。簡易であれば、総合的に実験及び計算ミスも生じにくい。APDLS 法では試料水の水質には影響されないこともメリットである。従来方法において、試料水中の溶存成分によってクエンチングを生ずる場合は直接測定が不可能であった。また、抽出法でもフミン酸など有機物を含有する試料水は抽出液と水試料の分離が困難であった。

発泡ポリスチレンの密度及びサイズなどを規格化したものが使用できれば計数精度で優位性がある。この規格化はまた、発泡ポリスチレン質量測定を不要なものとしてできるという利便効果も生み出すだろう。

4. 結論

断面 10×10 mm の角柱形の発泡ポリスチレン吸収材について、温度 15 の条件下では、

ラドンの存在する水中あるいは空气中に置かれた発泡ポリスチレンはラドンを吸収し、24 h で平衡値に至った。

発泡ポリスチレンの平衡ラドン吸収量はラドン分圧及びポリスチレン質量に正比例した。

発泡ポリスチレンのラドン分配係数は水に対して約 130, トルエンに対して約 2.6 であった。

APDLS法は、実験操作が簡易で有害物の使用を抑制でき、試料水の水質には影響されない、などのメリットを有する。

発泡ポリスチレンの密度、形状及び質量を標準化し、その分配係数を値付けした材料を用いることができれば、測定プロセスは液体シンチレーション計測だけとなり、実用的にもきわめて簡易な測定が可能となる。

APDLS 法の適用対象として、地下水、河川水、土中空気、地下坑内空気などが考えられる。また、ラドン測定以外の用途としても、放射性気体への適用などさらに発展の余地がある。

本報の内容の詳細は「核種を吸収した高分子材料を液体シンチレータに溶解する新ラドン測定技術」⁷⁾ *Radioisotopes* 誌1999年4月号にて公表され、「放射性核種吸収体とこれを用いた放射性核種の濃度測定法」⁸⁾ として特許出願がなされた。

文献

- 1) 野口正安: *Radioisotopes*, **13**, 362-366(1964).
- 2) 野口正安: *Radioisotopes*, **24**, 741-744(1975).

- 3) 野口正安 : *Radioisotopes*, **24**, 745-748(1975).
- 4) Saito,M. and Takata,S.: *Radioisotopes*, **41**, 391-396(1992)
- 5) Saito,M., Takata,S. and Masuda,Y.: *Radioisotopes*, **42**, 330-334(1993)
- 6) 斎藤正明 , 高田 茂 : *Radioisotopes* , **43** , 515-522 (1994)
- 7) 斎藤正明 : *Radioisotopes*, **48**, 257-262(1999)
- 8) 斎藤正明 : 特願平198208

(原稿受付 平成12年8月2日)