

技術論文

ラドン娘核種による計数効率の導出法

下 道國*1, 郭 秋菊*2

(1993年5月26日受理)
(1993年9月13日再受理)

On the Deriving Methods of Counting Efficiency with Radon Progeny

Michikuni SHIMO*1 and Qiuju GUO*

Experimental methods for determining the counting efficiency of instruments that measure radon progeny concentration are proposed and described in this paper. For determining the counting efficiencies of ^{218}Po and ^{214}Po , alpha particles from radon progeny were first sampled from a radon-tank and deposited on the surface of a filter. These alpha particles were then alternately counted by two instruments; a standard instrument, S, with known counting efficiency, and an instrument, G, with unknown counting efficiency. Using the proposed methods, the relative counting efficiency of ^{218}Po and ^{214}Po using instrument G was determined by comparing the indicated counting efficiency with the known counting efficiency of instrument S. In addition, measured radon progeny concentration data are shown that were calculated from the counting efficiencies obtained with this calibration procedure. These results show that it is important to accurately determine counting efficiencies because a small difference between the counting efficiencies of ^{218}Po and ^{214}Po may give relatively large differences between indicated concentrations of ^{218}Po , ^{214}Pb and ^{214}Bi .

KEY WORDS : experimental methods, alpha particle, counting efficiency, radon progeny, filter, radon-tank, compare, standard instrument, known counting efficiency

1. はじめに

すべての測定法は較正が行われてはじめて測定法として確立する。測定器の較正を正しく行うには、正確に値付けされた線源を用いなければならず、ラドンとその娘核種についても、もちろん例外ではない。しかし、これらの核種は、ガスまたは金属微粒子のために試料の作成と調整がなかなか困難であり、またそれらの半減期は、

もっとも寿命の長い ^{222}Rn でも 3.82 日に過ぎないことから、使用期間も極めて短い期間に限られ、現時点で、これら核種の較正線源として商業上のサービスは行われていない。

^{222}Ra については、検定された ^{226}Rn 線源があれば、それから発生する ^{222}Rn ガスを利用して較正することが可能で、著者らはその方法および実験値と理論値の一致度についてすでに報告している¹⁾。他方、ラドン娘核種は容易ではない。その理由は、ラドン短寿命娘核種は半減期が 3.05 分 (^{218}Po)、26.8 分 (^{214}Pb)、19.7 分 (^{214}Bi) と短い金属元素であるために、これらを標準線源として長期間 (たとえば、1 日以上) 保存することはできないからである。また、実際に使用する際には、原子オーダーの粒子だけでなくエアロゾルを添加してそれ

*1 岐阜医療技術短期大学; 岐阜県関門市平賀字長峰 795-1 (〒501-32)

Gifu College of Medical Technology; 795-1 Nagamine, Ichihiraga, Seki, Gifu 501-32, Japan.

*2 名古屋大学工学部原子核工学科 (現在 日本原子力発電株式会社); 名古屋市千種区不老町
Department of Nuclear Engineering, School of Engineering, Nagoya University; Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-01, Japan.

より大きい粒径の粒子も共存させて、実際の空気中の粒径分布に近い状態にする必要があるが、それも時間とともに性状が変化して濃度も変わってしまい、既知の濃度の線源とはなり得ない。

また、自然大気中のラドン娘核種の測定では、フィルタによるサンプリングがほとんどであるが、捕集対象であるエアロゾルの粒径は原子オーダーから $1\ \mu\text{m}$ 程度の範囲に広く分散しており、かつそれは時間的にも空間的にも変動している、その形状・組成ともさまざまである。フィルタの捕集効率と発現効率は、これらのほかにフィルタ自体の素材にも依存する。測定は $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレータや半導体検出器による α 線計測が主となるが、その場合、検出器とフィルタの幾何学的配置(幾何学的計数効率)のほかに、検出器とフィルタ間の空気層やフィルタ自体による α 線の吸収も計数に大きく影響する²⁾。それゆえ、3回計測法等^{*3}によって ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の濃度を得ようとする場合には、 α 線のエネルギー別の計数効率を知る必要がある。通常、計数効率は ^{241}Am や U_3O_8 など標準 α 線線源によって求められることが多いが、上述の理由により、ラドン娘核種の計数効率として使用することは適切ではない。

本報告では、ラドン娘核種の内の α 線放出元素である ^{218}Po と ^{214}Po について、強度既知の線源(標準線源)を用いる方法ではなく、計数効率が既知の計測器と当該測定器とで交互に測定して後者の計数効率を決定する方法(相互比較法)を提案し、さらに適用例について述べる。

2. 計数効率の導出

2.1 計算式

較正を行おうとする測定器(これをGとする)と基準測定器(これをSとする)とで、サンプリングした一つのフィルタ試料を交互に測定する。フィルタに捕集されたラドン娘核種(^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi)の原子数 N とそれらの α 崩壊による計数値 C の関係は、計数効率 ε を介して次の関係がある。

$$C = \varepsilon \lambda N \quad (1)$$

ただし、 λ は崩壊定数である。測定器が変れば、同じ試料を計測しても計数効率が異なるので、計数値が異なる。ここで、下付き文字のG、Sで両測定器を区別すると、較正を行おうとする測定器の計数効率 ε_G は、基準測定器の計数効率 ε_S と両測定器での計数値の比から、

次式

$$\varepsilon_G = \varepsilon_S (C_G / C_S) \quad (2)$$

で表すことができる。(2)式が、基準となる測定器に対する、計数効率が未知の測定器の計数効率を求める方法の基本式である。

実際には、試料中にラドン娘核種が3核種存在すること、エネルギーが異なるためにフィルタ素材や空気層での吸収の割合が違うこと、また半減期の違いなどもあって、それほど単純ではない。

付録の式(A-9)でも明らかのように、フィルタ試料から濃度を求める場合、計数効率のほかにサンプリング・フィルタの捕集効率と発現効率(フィルタ上の粒子から出た α 線が、幾何学的には検出器に入る条件になっているにもかかわらず、フィルタの吸収などにより計数されない分を補正する効率)に依存する。これらはフィルタの素材や流量、 α 線のエネルギーなどの影響を受ける。計数効率は幾何学的条件と測定器の電子回路によって決まる。したがって、理念上は発現効率と計数効率は全く別であって両者は区別し得るが、実際の測定では明確に分離・区別することはできない。そこで、以下の取扱では、発現効率をフィルタや流量、 α 線のエネルギーなどに依存しない一定値として扱い、それらによる変動部分はすべて計数効率に含めることとした。

2.2 ^{214}Po の計数効率

GおよびS測定器でフィルタ試料を測定するとき、全測定時間は1時間以上とし、一回の計測時間を2~3分として両測定器で交互に繰り返して計測を行い、それぞれの測定器で5~6点以上のデータを取る。この時、 ^{218}Po の半減期が3.05分と短いので、サンプリング後の第1回目の計数はできる限り素早く行う。G、Sの測定器で得られた値についてそれぞれの減衰曲線(Fig. 1これは概念図)を作る。

^{218}Po が十分に減衰し終わって(捕集終了後20分以降)、 ^{214}Po からの α 線だけによる計数部分を用いることによって、(2)式から直ちに次式が得られる。

$$\varepsilon_G^C = \varepsilon_S^C (C_G^C / C_S^C) \quad (3)$$

ここで、上付き文字Cは ^{214}Po からの α 線だけの計数を意味する。

すなわち、 ^{214}Po の場合、G、Sの測定系で得られた計数値 C_G^C 、 C_S^C から、 ε_S^C を介して直ちにG測定器の計数効率 ε_G^C が得られる。

なお、最も単純には、あるいは条件が適切な場合には、 ^{218}Po に対する計数効率と ^{214}Po に対する計数効率が等しいと仮定して、 $\varepsilon^C = \varepsilon^A$ とおくことができるが、ここではその方法は取らない。

*3 サンプリングしたフィルタを3回に分けて計測し、3元連立方程式を解くことによって ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の濃度を求める方法。波高分析法の場合、2回の計測値から3核種濃度が求められ、これを2回計測法という。

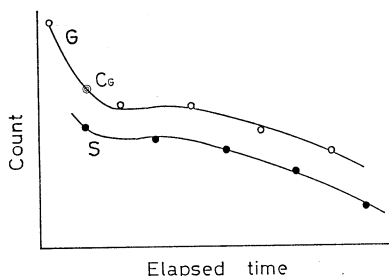


Fig. 1 Conceptual decay curves of Rn progeny sampled on a surface of filter; counting efficiency of S: known and G: unknown.

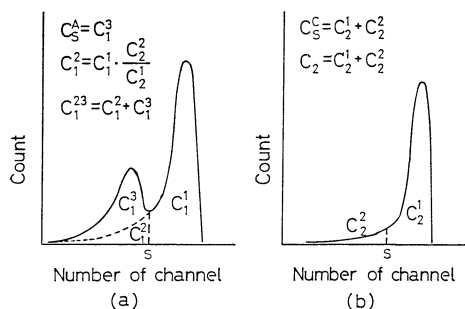


Fig. 2 An outline of pulse height distributions obtained by α -spectroscopy and explanation for each count.

2.3 ^{218}Po の計数効率

^{218}Po からの α 線に対する計数効率 ϵ_G^A を求める。この場合は、 ^{218}Po からの α 線をできるかぎり多く数えている計数値を用いるが、 ^{218}Po の計数領域には ^{214}Po から出る α 線の計数が被ってくるがあるので、この分を差し引いて、真の ^{218}Po から出る α 線による計数値だけにしなければならない。それには、測定器 S の第 1 回目と第 6 回目 (捕集終了約 1 時間後) の計測値を使うが、方法としてつぎに述べる 3 つの方法が考えられる。

(1) 第一の方法 (GC 法)

これは簡単な方法で、G、S 両系とも ^{218}Po 、 ^{214}Po 両チャンネルに相当する領域のグロスカウントから求める方法 (ここでは GC 法とする) である。

はじめに、式 (2) に基づいて、測定器 G の ^{218}Po からの α 線に由来する計数効率は次式で表される。

$$\epsilon_G^A = 0.5(C_G^A/C_S^A) \tag{4}$$

ただし、基準に用いたグリッド付き電離箱の ^{218}Po に対する計数効率を 0.5^{*4} とした。

C_G^A 、 C_S^A を求める具体的手順は次のとおりである。まず、測定器 S での ^{218}Po からの正味の計数値 C_S^A をつぎのように求める。測定器 S の第 1 回目と第 6 回目の計測値の波高分布図を描く (Fig. 2 に概念図を示した)。第 1 回目の図において ^{218}Po と ^{214}Po の計数チャンネルを分けるのであるが、第 1 回目の図 (Fig. 2(a)) で明らかなように、2 つのピークのうちのエネルギーの低い方 (^{218}Po に対応) に高い方 (^{214}Po に対応) の一部が重なってくる。そこで、 ^{218}Po ピークのすぐ右側で最もカウント数の低い点 (Fig. 2(a) の S 点) で、 ^{218}Po と ^{214}Po の計数チャンネルを分ける。ついで第 6 回目の図 (Fig. 2(b)) にもこのチャンネル区分を適用して、 ^{218}Po の計数チャンネル (以降、 ^{218}Po チャンネルという、以下同じ) に入った ^{214}Po の計数値分 (Fig. 2(b) で C_2^2 に相当) を求め、これから ^{218}Po と ^{214}Po の計数値の比 (C_2^2/C_2^1) を求める。さらに、この値を第 1 回目の ^{214}Po チャンネルの計数値 (Fig. 2(a) で C_1^1) に乗じて ^{218}Po チャンネルに入った ^{214}Po 計数値分を求め (Fig. 2(a) で C_1^3)、 ^{218}Po チャンネルの計数値からこれを差し引くことによって、正味の ^{218}Po からの計数値 (Fig. 2(a) で C_1^3) を求める。したがって、S 系の ^{218}Po の計数値 C_S^A は、

$$C_S^A = C_1^3 = (C_2^2 + C_1^3) - C_1^2 \\ = C_1^{23} - C_1^1 \times C_2^2 / C_2^1 \tag{5}$$

となる。

つぎに、Fig. 2(a) で第 1 回目の測定値を得た時間 T_1 に合せて、G 系の計数値をプロットした曲線の内挿値 (これを C_G とする) を求める (Fig. 1 の曲線 G 上の \odot 印)。これと Fig. 2 中に示した記号と式 (3) を使って、G 系の ^{218}Po の計数値分 C_G^A を求めるには、G 系の全計数値 C_G から ^{214}Po からの計数値分 C_G^C を差し引けばよいから、

$$C_G^A = C_G - C_G^C \\ = C_G - C_S^C (C_G^C / C_S^C) \\ = C_G - C_2 (\epsilon_G^C / 0.5) \tag{6}$$

となる。

したがって、 ϵ_G^A は式 (4) に式 (5)、(6) を代入して、

$$\epsilon_G^A = (0.5 C_G - \epsilon_G^C C_2) / \{C_1^{23} - C_1^1 \times C_2^2 / C_2^1\} \tag{7}$$

となる。すなわち、G 系の全計数値 (実際には内挿値) と S 系の第 1 回目と第 6 回目の計数値から G 系の ^{218}Po の計数効率が求められる。

(2) 第二の方法 (BF 法)

第二の方法は、基準測定器 S で測定したデータから試料中の ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 濃度を求め、これから当該測定器 G の計数効率 ϵ_G^A を求める方法 (BF 法とする) で、

*4 グリッド付き電離箱の計数効率は、理論的にかつ実験的に α 線のエネルギーに関係なく、ほぼ 0.5 であることがわかっている (2)、基準器として適切である。

GC 法よりより精確である。

G 系の第一回目の全計数値 C_G は, 試料空気中上の ^{218}Po の原子数 n_A を用いて^{*5},

$$\begin{aligned} C_G &= C_G^C + C_G^A \\ &= \varepsilon_G^A \eta \zeta q n_A F_G^A + \varepsilon_G^C \eta \zeta q n_A F_G^C \\ &= \eta \zeta q n_A \{ \varepsilon_G^A F_G^A + \varepsilon_G^C F_G^C \} \end{aligned} \quad (8)$$

となる。ただし,

η : 捕集効率 [-]

ζ : 発現効率 [-]

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

F_G^A, F_G^C : サンプリング時間 S , 測定時間 T_1, T_2 , 試料気体中の放射能平衡比 $R_1 (=^{214}\text{Pb}/^{218}\text{Po})$, $R_2 (=^{214}\text{Bi}/^{218}\text{Po})$ で決まる定数 [s^{-1}] それぞれ ^{218}Po , ^{214}Po に由来する α 線に対応する値で表される。

同一試料を S 系でも測定しているのので, S 系の全計数値 C_S についても同様に,

$$\begin{aligned} C_S &= \eta \zeta q n_A \{ \varepsilon_S^A F_S^A + \varepsilon_S^C F_S^C \} \\ &= 0.5 \eta \zeta q n_A F_S \end{aligned} \quad (9)$$

となる。ただし, $\varepsilon_S^A = \varepsilon_S^C = 0.5$, $F_S = F_S^A + g_S C^C$ とする。

次に式(8), (9)より

$$C_G / C_S = \{ \varepsilon_G^A F_G^A + \varepsilon_G^C F_G^C \} / 0.5 F_S \quad (10)$$

となるから, 結局, 計数効率 ε_G^A は測定値 C_G, C_S , および測定条件で決まる BATEMANN の方程式の解³⁾である F_G^C, F_G^A , (付録(A-5)式), F_S (付録(A-8)式)ならびに基準測定器の計数効率 $\varepsilon_S (=0.5)$ を用いて

$$\varepsilon_G^A = \frac{0.5 F_S C_G / C_S - \varepsilon_G^C F_G^C}{F_G^A} \quad (11)$$

となる。

具体的な手順は次のとおりである。G 系の第一回目と最終回のデータを用い, 2 回計測法により, $\varepsilon, \eta, \zeta, q$ に適当な値を入れて $^{214}\text{Pb}/^{218}\text{Po} (=R_1)$, $^{214}\text{Bi}/^{218}\text{Po} (=R_2)$ を求める^{*6}。つぎに, BATEMANN 方程式の解と, いま求めた R_1, R_2 , およびサンプリング時間ならびに測定時刻から, F_S, F_G^C, F_G^A を計算する。式(11)に実測値 C_G, C_S と, 2.1 節で求めた ε_G^C , および F_S, F_G^C, F_G^A を代入して, ^{218}Po に対する計数効率 ε_G^A を求める。

(3) 第三の方法 (PA 法)

この方法は, G 系も半導体検出器を用いたときのよう

に高分波析をする場合に適用する方法 (PA 法とする) である。そのために, BF 法で述べた(8)式のような ^{218}Po , ^{214}Po からの計数値の和を取ることはせず, それぞれへの分離した形にする (第1回目の計数値を使用するので, それを表すためにサフィックスに1を付けた)。すなわち,

$$C_{G1^A} = \varepsilon_G^A \eta \zeta q n_A F_{G1^A} \quad (12)$$

$$C_{G1^C} = \varepsilon_G^C \eta \zeta q n_A F_{G1^C} \quad (13)$$

Fig. 2 (G 系の計数値であるので, サフィックスに G を付けた) から,

$$C_{G1^A} = C_{G1^3},$$

$$C_{G1^C} = C_{G1^1} + C_{G1^2}$$

であるから, これと式(12), (13)から ^{218}Po の計数効率 ε_G^A は次のように表される。

$$\varepsilon_G^A = \varepsilon_G^C (F_{G1^C} / F_{G1^A}) (C_{G1^A} / C_{G1^C}) \quad (14)$$

なお, 式(14)は, 計数効率を求める G 系の ^{214}Po に対する計数効率, ^{218}Po と ^{214}Po 計数値 (C_{G1^A}, C_{G1^C}), さらに BATEMANN の方程式の解から求めた関数 (F_{G1^A}, F_{G1^C}) により ^{218}Po の計数効率を求める形になっているが, F 関数と ε_G^C を求める過程で基準測定器が必要である。

具体的な手順はつぎのようにする。G 系, S 系の両方について, Fig. 2(a)を参考に (下付きの G, S で両系を区別) して, $C_{G1^3}, C_{G1^1} + C_{G1^2}, C_{G2} (=C_{G2^1} + C_{G2^2}), C_{S1^3}, C_{S1^1} + C_{S1^2}, C_{S2} (=C_{S2^1} + C_{S2^2})$ を求める。ただし, C_{G1^3}, C_{S1^3} は G 系, S 系における第1回目の ^{218}Po の計数値であり, $C_{G1^1} + C_{G1^2}, C_{S1^1} + C_{S1^2}$ は第1回目の ^{214}Po の計数値, また, C_{G2}, C_{S2} は第2回目の ^{214}Po の計数値である。実際には, 半導体検出器などのようにカウントがピーク位置から低エネルギー側へテールを長く引くことのない場合は, Fig. 2 のようなテールのかぶりは考慮しない。

つぎに, S 系の $C_{S1^3}, C_{S1^1} + C_{S1^2}, C_{S2}$ から ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi 各濃度を求めるのであるが, 実際には, BF 法と同様に絶対濃度が必要ではなく, $R_1 (=^{214}\text{Bi}/^{218}\text{Po})$, $R_2 (=^{214}\text{Pb}/^{218}\text{Po})$ がわかればよいので, BF 法の場合と同様に $\varepsilon, \eta, \zeta, q$ に適当な値を入れて計算をし, R_1, R_2 を求める。さらに, BATEMANN の方程式の解を用いて, 前項で求めた R_1, R_2 , サンプリング時間, 測定時刻を使って E_{G1^A}, F_{G2^C} を求める。

これらと実測値 C_{G1^A}, C_{G1^C} , および ε_G^C を式(14)に代入して, ^{218}Po に対する計数効率 ε_G^A を求める。

3. 実験方法と測定例

3.1 実験方法

^{226}Ra 溶液内で発生した ^{222}Rn を 100 l のタンクに移

*5 付録参照, ただし, 付録の記号 $n_i, F_i(S, T_1, T_2), F_0(S, T_1, T_2)$ は本文中では n_A, F^A, F^C とした。

*6 濃度を求める場合は, $\varepsilon, \eta, \zeta, q$ は既知数でなければならないが, 濃度比 R_1, R_2 を知るだけの場合は, これらは相殺されるので, 適当な数値を入れて計算しても, 正しい R_1, R_2 が得られる。

Table 1 Counting efficiencies of a ZnS(Ag) scintillation counter.

Round	²¹⁸ Po		²¹⁴ Po	Remarks
	GC method	BF method		
①	0.245±0.104	0.341±0.05	0.296±0.006	mean of 5 runs
②	0.376±0.013	0.304±0.04	0.316±0.007	"
③	0.363±0.05	0.313±0.02	0.321±0.005	"

Table 2 Counting efficiencies of a surface barrier semi-conductor detector : PA method.

²¹⁸ Po	²¹⁴ Po
0.370±0.039	0.378±0.014

し、その中に室内エアロゾルを入れてラドン娘核種エアロゾル (ラドン・エアロゾル) をつくった。このタンクにフィルタ・ホルダを接続して、ラドン・エアロゾルをサンプリングしたが、その際、循環系にして排気をタンクに戻して ²²²Rn の寿命の間繰り返し使用した。エアロゾルはフィルタで除去されるので、必要に応じて適宜補給した。流量は、十数～数十 l/min を使用できるようにし、捕集時間は 2～3 分とした。捕集終了後のフィルタは、前節で述べた手法にしたがって、基準測定器と当該測定器との間で交互に計測を繰り返した。

この一連のサンプリング・計測実験を数回繰り返して平均値を取ることで、計数効率を求めた。

3.2 測定例

実測の一例を示す。なお、捕集には孔径 0.8 μm のメンブレン・フィルタを用い、サンプリング時の流量は約 20 l/min であった (以下のデータも同様)。計測装置は ZnS(Ag) シンチレーションカウンタである。Table 1 に GC 法、および BF 法による結果を示した。これは一台の測定器の結果であるが、①と②、③の間で ZnS (Ag) 膜の張り替えをしているために、異なる値となっている。③は②の半年後に再測定した値である。

BF 法による ²¹⁴Po の計数効率と、GC 法による値とは近い値となることが想定されるにもかかわらず、GC 法での値が、①では約 20% 小さく、逆に②、③では 20% ほど大きくなっている。また、²¹⁸Po と ²¹⁴Po とでは、α線のエネルギーが大きい ²¹⁴Po の方が計数効率が大きくなることが期待されるのであるが、①ではそれが逆になっており、そのようになった理由は不明である。これら 3 つの値の中では、計数効率の導出方法からして ²¹⁴Po がばらつきが小さく、信頼のおける値が得られる

ことが期待されるが、実測結果もそのようになっている。 ²¹⁸Po は計算途中で 3 回計測法が使われているので、10% 程度ばらつくのはやむを得ない。したがって、②と③とを比べると、いずれも数 % の差があるが、これはむしろよく一致した方といえる。

Table 2 には、表面障壁形半導体検出器に PA 法を適用した結果を例示した。表面障壁形半導体検出器を使用する場合、真空容器を用いることが多いが、連続測定では大気圧で使用するケースもあって、この例はそれに当たる。なお、この例では、²¹⁸Po に対する計数効率と ²¹⁴Po の計数効率がほとんど変わらない結果となっているが、その理由として遮光膜がないこと、フィルタにかなり接近してマウントされていることなどがあげられる。

同じ計測データに GC 法と BF 法で得た値を適用して、実際に ²¹⁸Po、²¹⁴Po、²¹⁴Bi の 3 核種濃度がどの程度違うかみたが、それを Table 3 に示した。両者の結果は、²¹⁸Po の計数効率の差が ²¹⁸Po のみならず、²¹⁴Pb、²¹⁴Bi の濃度にも影響を与えるために、計数効率はできるかぎり精度よく求めることが重要であることがわかった。すなわち、計数効率はラドン娘核種の個別濃度の確からしさに大きく影響するため、異なる測定器あるいは測定者による濃度データを比較検討する場合、十分に注意すべきことも示唆している。

4. おわりに

ラドン娘核種について、²¹⁸Po と ²¹⁴Po を分けてそれぞれの核種に対する複数の計数効率の導出法を提案し、ZnS (Ag) シンチレータと表面障壁形半導体検出器について実際に求めた例を示した。さらに、得られた計数効率を実際の濃度計算に適用した結果、計数効率の見目の差よりも濃度での違いが大きくなることもあることがわかった。計数効率はラドン娘核種の個別濃度の確からしさに大きく影響するため、これを求める場合、簡便な導出方法によらず、より精密な方法によることが重要である。

Table 3 Comparison between Rn progeny concentration Q [Bq/m^3] calculated by different counting efficiencies of a $\text{ZnS}(\text{Ag})$ scintillation counter.

Run	Q by GC method ($\varepsilon_{\text{G}}^{\text{A}}=0.36$)			Q by BF method ($\varepsilon_{\text{G}}^{\text{A}}=0.31$)		
	^{218}Po	^{214}Pb	^{214}Bi	^{218}Po	^{214}Pb	^{214}Bi
①	39.6	21.0	10.3	45.8	20.2	10.5
②	19.8	18.8	10.8	22.9	18.4	10.9
③	17.2	14.6	6.9	19.9	14.2	7.0
④	11.4	10.2	8.9	13.2	10.0	8.9
⑤	35.1	32.1	16.7	42.7	30.9	16.6
⑥	21.0	22.9	16.4	24.3	22.4	16.5
⑦	3.6	1.6	0.45	4.2	1.6	0.47
⑧	2.3	0.47	0.47	2.7	0.42	0.48
⑨	6.6	1.13	0.49	7.6	0.99	0.51

$\varepsilon_{\text{G}}^{\text{C}}=0.32$.

参 考 文 献

- 1) 下 道國, 池辺幸正, 前田 淳, 上村力也, 林 叶, 石黒 明; 活性炭を用いた気中のラドンの測定法—実用上の基礎的検討—, 日本原子力学会誌, **25**, 562 (1983).
- 2) 下 道國; $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレーション検出器を用いたフィルター法における測定効率, 保健物理, **23**, 209 (1988).
- 3) H. BATEMANN; Solution of a system of differential equation occurring in the theory of radio-active transformations, *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, **15**, 423 (1910).

付 録

大気中の ^{222}Rn 短寿命娘核種を捕集し測定するときの計数は, BATEMANN の方程式を用いて以下のように取り扱われる。

まず, 捕集しているフィルター上の短寿命娘核種の時間変化は

$$\frac{dN_1}{dt} = P_1 - \lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = P_2 + \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (\text{A-1})$$

$$\frac{dN_3}{dt} = P_3 + \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$

$$P_1 = \eta q m_i \quad (\text{A-2})$$

ここで,

N_i : フィルタ上の $^{218}\text{Po}(i=1)$, $^{214}\text{Pb}(i=2)$, $^{214}\text{Bi}(i=3)$ の原子数 [atom]

η : フィルタの捕集効率 [—]

q : 試料空気の流量 [$\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$]

m_i : 試料空気中の短寿命 i 娘核種の濃度 [$\text{atom} \cdot \text{cm}^{-3}$]

λ_i : i 核種の崩壊定数 [s^{-1}]

である。

初期条件, $t=0$; $N_1=N_2=N_3=0$ で解いた解を, N_1^{S} , N_2^{S} , N_3^{S} としておく。

つぎに, 試料捕集終了後 T_1 から T_2 まで計測した場合, その間の各核種の時間変化は,

$$\begin{aligned} \frac{dN_1}{dt} &= -\lambda_1 N_1 \\ \frac{dN_2}{dt} &= \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \end{aligned} \quad (\text{A-3})$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3$$

で表される。

このときの初期条件は, $t=0$; $N_1=N_1^{\text{S}}$, $N_2=N_2^{\text{S}}$, $N_3=N_3^{\text{S}}$ である。

さて, 時間 $T_1 \sim T_2$ の間に崩壊する ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi 原子数を $\lambda_1 N_1^{\text{I}}$, $\lambda_2 N_2^{\text{I}}$, $\lambda_3 N_3^{\text{I}}$ とすると,

$$\begin{cases} \lambda_1 N_1^{\text{I}} = P_1 F_1(S, T_1, T_2) \\ \lambda_2 N_2^{\text{I}} = P_1 F_2(S, T_1, T_2) \\ \lambda_3 N_3^{\text{I}} = P_1 F_3(S, T_1, T_2) \end{cases} \quad (\text{A-4})$$

と表される。ただし, S をサンプリング時間として,

$$\begin{cases}
 F_1(S, T_1, T_2) = \{1 - \exp(-\lambda_1 S)\} \{ \exp(-\lambda_1 T_1) \\
 \quad - \exp(-\lambda_1 T_2) \} / \lambda_1 \\
 F_2(S, T_1, T_2) = \{1 - \exp(-\lambda_1 S)\} \{ \exp(-\lambda_1 T_1) \\
 \quad - \exp(-\lambda_1 T_2) \} \lambda_2 / \lambda_1 / (\lambda_2 - \lambda_1) \\
 \quad + \{1 - \exp(-\lambda_2 S)\} \{ \exp(-\lambda_2 T_1) \\
 \quad - \exp(-\lambda_2 T_2) \} \lambda_1 / \lambda_2 / (\lambda_1 - \lambda_2) \cdot \{1 \\
 \quad + (\lambda_1 - \lambda_2) / \lambda_2 \cdot R_1\} \\
 F_3(S, T_1, T_2) = \{1 - \exp(-\lambda_1 S)\} \{ \exp(-\lambda_1 T_1) \\
 \quad - \exp(-\lambda_1 T_2) \} \lambda_2 \lambda_3 / \lambda_1 / (\lambda_2 - \lambda_1) / \\
 \quad \times (\lambda_3 - \lambda_1) + \{1 - \exp(-\lambda_2 S)\} \\
 \quad \times \{ \exp(-\lambda_2 T_1) - \exp(-\lambda_2 T_2) \} \\
 \quad \times \lambda_3 \lambda_1 / \lambda_2 / (\lambda_3 - \lambda_2) / (\lambda_1 - \lambda_2) \cdot \{1 \\
 \quad + (\lambda_1 - \lambda_2) / \lambda_2 \cdot R_1\} + \{1 \\
 \quad - \exp(-\lambda_3 S)\} \{ \exp(-\lambda_3 T_1) \\
 \quad - \exp(-\lambda_3 T_2) \} \lambda_1 \lambda_2 / \lambda_3 / (\lambda_1 \\
 \quad - \lambda_3) / (\lambda_2 - \lambda_3) \cdot \{1 + (\lambda_1 - \lambda_3) / \\
 \quad \times \lambda_2 \cdot R_1 + (\lambda_1 - \lambda_3) (\lambda_2 - \lambda_3) / \lambda_2 / \\
 \quad \times \lambda_3 \cdot R_2\} \quad (A-5)
 \end{cases}$$

である。なお、 R_1, R_2 はサンプリングしている空気中の娘核種の濃度比で

$$\begin{cases}
 R_1 = \frac{\lambda_2 \eta_2}{\lambda_1 \eta_1} \\
 R_2 = \frac{\lambda_3 \eta_3}{\lambda_1 \eta_1}
 \end{cases} \quad (A-6)$$

とする。

α 粒子を計測する時のカウント数を C とすると、

$$C = \varepsilon \zeta (\lambda_1 N_1^I + \lambda_3 N_3^I) \quad (A-7)$$

ただし、

ε : 計数効率

ζ : フィルタからの α 粒子の発現効率

で表される。ここで、

$$F(S, T_1, T_2) = F_1(S, T_1, T_2) + F_2(S, T_1, T_2) \quad (A-8)$$

とおくことによって、(A-7)式は(A-2)、(A-4)および(A-8)より

$$\begin{aligned}
 C &= \varepsilon \zeta P_1 \{F_1(S, T_1, T_2) + F_2(S, T_1, T_2)\} \\
 &= \varepsilon \zeta \eta q m_1 F(S, T_1, T_2) \quad (A-9)
 \end{aligned}$$

となる。

したがって、試料空気中の ^{218}Po 濃度 Q_1 は、サンプリング時間 S と計測時間 T_1, T_2 を測定条件による変数、また試料空気中の ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi の放射能濃度比 $R_1 (= ^{214}\text{Pb}/^{218}\text{Po})$, $R_2 (= ^{214}\text{Bi}/^{218}\text{Po})$ を未知数として

$$Q_1 = \frac{\lambda_1 C}{\varepsilon \zeta \eta q F(S, T_1, T_2)} \quad (A-10)$$

と求められる。

(A-9)は3つの未知数 Q_1, R_1, R_2 を含んでいるから、捕集フィルタを3回に分けて計測(3回計測法)すれば ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi の濃度が求まり、あるいは α 線波高分析法 (^{218}Po が独立に求まる) を用いて2回に分けて計測(2回計測法)すれば、娘核種の各濃度が求められる。