

◎原 著

液体シンチレーション計数器を用いるRn-222の簡易定量法

御船 政明

岡山大学医学部附属病院三朝分院中央検査部

要旨：鉱泉水中のラドンを測定するため、抽出法を省略し、少量の試料水を直接液状シンチレーターに溶解し、液体シンチレーション計数器を用いて放射能を測定し、次いで簡単な計算法により試料水中のラドン濃度を計算する簡易定量法を試みた。本法を用いて一鉱泉水のラドンを反復測定した際の精度は、 $\sigma = 0.136 \text{ nCi/l}$ 、 $\text{CV} = 5.77\%$ 、 $(\bar{x} = 2.36 \text{ nCi/l})$ であった。次に本法でのRnの最少検出量は、 0.2 nCi/l である。原法と本法とを用いて得られた測定値の間には、 $r = 0.996$ 、 $y = 0.818x + 0.875$ なる相関関係が成立した。本法を使用すると、簡単な予備処理後、極短時間内にラドンの測定が可能のため、花崗岩地域の井水、鉱泉水中のラドンを定量するためには、有用な方法である。

キーワード：鉱泉水、ラドン、放射能泉、液体シンチレーション計数器

Mineral waters, Radon, Radioactive springs, Liquid scintillation counter

緒 言

鉱泉水中のRn-222の測定は鉱泉分析法指針¹⁾に示される如く、主としてIM泉効計、液体シンチレーション計数器（以下LSC）を用いて行われている。前者は低価格の機器で以前より使用されているが、測定に時間を要するので多数検体の測定には、不適當である。後者は高価な測定機器であるが、これを用いて鉱泉水中のRn-222（通称ラドン）、Rn-220（通称トロン）、Ra-226（通称ラジウム）の測定法が堀内・村上^{2), 3)}によって開発された。この方法を用いると、比較的簡単な前処理によって、高感度に再現性よく測定され得る。この方法でRn-222（以下ラドンまたはRn）を測定した際、筆者ら⁴⁾は、パソコンを使用して、容易に、しかも極短時間（1～2分間）に計算できる方法を開発した。その後筆者は少量の試料を用いて、鉱泉水中のラドンを簡単に測定する方法を開発したので、その概要について報告する。

1. 測定装置、試薬、器具および測定試料

- (1) 測定装置 液体シンチレーション計数器、Tri-Carb 460C (Packard社)
- (2) 試薬 液状シンチレーター、Hionic-Fluor (Packard社)
- (3) 器具 超高性能ガラスバイアル (20ml)
- (4) 測定試料 三朝温泉水、池田鉱泉水および三朝温泉地附近の湧水

2. 測定方法

バイアル瓶中に約15mlのHionic-Fluorを入れる、次いで2.0mlの試料水を容器の器壁に伝わせ静かに添加すると、試料水は瓶の底部に溜まるので静かに混和する。ついでHionic-Fluorを容器に全満するまで追加混合し、密栓後混和して均一な溶液とする*。次いでこのバイアル瓶をLSCに入れ、堀内・村上³⁾の方法により放射能を測定する。

脚 注

* 室温が20℃以下の場合には、振とうしても均一な溶液に成り難いことがある。その時には水浴中で弱く加温して溶解する。

3. 実験の結果

a) ラドン濃度と経過時間との関係

使用した試料水中のラドンの放射能は、時間の経過とともに減弱するが、採水より測定までの経過時間と計数率との関係は、Table 1 およびFig.1に示す如く、試料水をバイアル瓶にいれた時点で、既にかなり放射平衡に達していることが理解されるが、試料水をHionic-Fluorに溶解し、3時間10分経過後放射能を測定することが、望ましい。

Table 1 Elapsed time after sampling of mineral waters and counting rates

Elapsed time after sampling (min.)	Counting rates (counts/min.)
69	71
135	68
202	76
262	75
336	79
401	76
468	71
547	75

$\bar{x} = 73.9 \text{ counts/min.}$

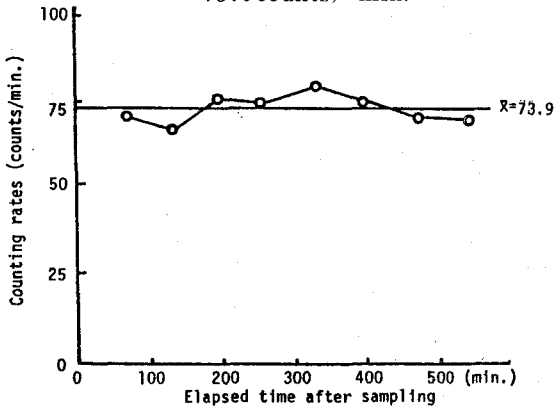


Fig. 1 Elapsed time after sampling of mineral waters and counting rates

b) 分析精度

同一試料水を反復分析した際の精度は、 $\bar{x} = 5.85 \text{ nCi/l}$ では、 $\sigma = 0.114 \text{ nCi/l}$, $\text{CV} = 2.46\%$, $\bar{x} = 2.36 \text{ nCi/l}$ では、 $\sigma = 0.136 \text{ nCi/l}$, $\text{CV} = 5.77\%$ であった (Table 2)。

なお本法のバックグラウンド値は、 $37 \pm 2.2 \text{ cpm}$ ($\bar{x} \pm 2\sigma$) で、その1/10まで有意の測定が出来るとすると、 0.2 nCi/l まで測定が可能である。

Table 2 Precision of the assay on radon in mineral waters

No.	Rn	
1	5.86	2.16
2	5.69	2.52
3	5.65	2.38
4	6.06	2.58
5	5.79	2.35
6	6.11	2.35
7	5.88	2.16
8	5.81	2.37
9	5.80	2.28
10	5.87	2.44
σ (nCi/l)	0.144	0.136
\bar{x} (nCi/l)	5.85	2.36
CV (%)	2.46	5.77
n	10	10

c) 原法と簡易法とによる測定値間の相関関係について

Table 3およびFig.2に示す如く、これら

2方法を用いて得られた測定値の間には、 $r=0.996$ 、 $y=0.818x+0.875$ なる正の相関関係が成立した。

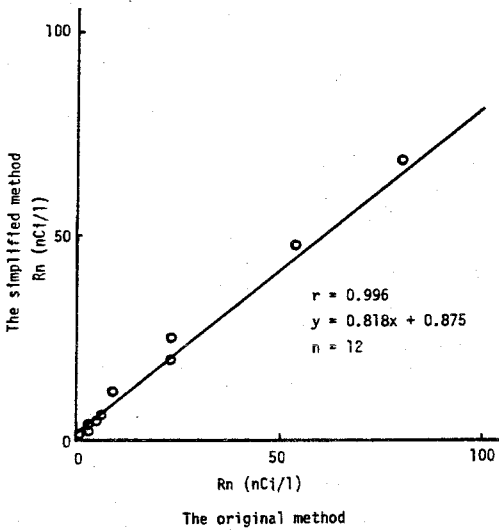


Fig. 2 Correlation between radon concentrations determined by the original and the simplified methods

d) 計算方法について

原法では試料水中のラドンを溶媒抽出し、ラドンとその崩壊生成物が放射平衡に達した後(3時間10分後)に測定を行っているが、簡易法では試料水をHionic-Fluorに直接溶解しているため、抽出操作は不要である。しかし試料によっては、Rnとその崩壊生成物との間に、放射平衡が成立する前に、地表に湧出している温泉水もある^{6),7)}ので、試料水をHionic-Fluorに溶解し3時間10分後に測定する必要がある。

従って計算式 (1)

$$No (dpm) = N \cdot e^{\lambda t} \times \frac{\lambda d \cdot B}{5(1 - e^{-\lambda d}) \text{Eff} \cdot A \cdot C}$$

において、

λ : Rn-222の崩壊常数, 1.258×10^{-4} (min.⁻¹).

t : 採水より測定までの経過時間 (min.)

d : 測定時間

$$\frac{\lambda d}{1 - e^{-\lambda d}} = \text{測定時間中におけるラドン}$$

減衰の補正項 $\div 1$

N : 計数率の外挿値 (積分バイアス曲線より求める。

Eff : 液体シンチレーション計数器の計数効率, 積分計数法を使用するため, 計数効率は1となる。

A : トルエンの回収率の補正項

B : 分離時の測定用試験溶液の温度 t における抽出容器内の水・トルエン・空気系のRn分配の補正項

C : 試料水の液量の補正值 (1リットルに換算のため)

試料水中のラドンは、Hionic-Fluorに溶解されるので、 $B=1$ となる。

またトルエンの回収項 $A=1$ となる。

従って、式(1)はさらに簡略化されて、

$$No (dpm) = N \cdot e^{\lambda t} \frac{1}{5 \times C} \quad (2)$$

と成る。

簡易法では、試料水を2 ml使用するので、式(2)はさらに簡略化され、

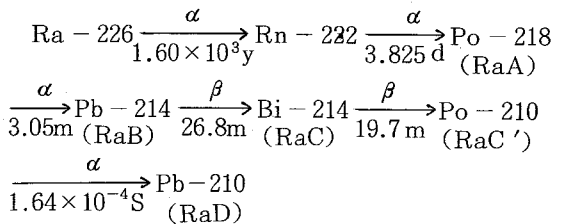
$$No (dpm) = N \cdot e^{\lambda t} \times 100 \quad (3)$$

と成る。

原法中の式(4)より、試料水1リットル中のラドン濃度が、求められる。

$$Rn (Ci/l) = \frac{No}{60 \times 3.7 \times 10^{10}} \quad (4)$$

4. 考 察



試料水をHionic-Fluorに溶解し、3時間10分以上経過すると、Rn-222とその崩壊変物との間に放射平衡が成立する。そこでLSCによっ

て、試料中の放射能を測定すると、 α 線源として一緒に測定される温泉水中のウラン系の元素の、 $Rn-222$, $Po-218$ (RaA), $Po-210$ (RaC') が、また β 線源として $Pb-214$ (RaB), $Bi-214$ (RaC) が、従って、LSCによって 3α , 2β が測定されると、考えられる。

Table 3 Radon concentration measured by the original and the simplified methods

No.	Sample	Rn (nCi/l)	
		The original method	The simple method
1	Ikeda, mineral waters (No.5)	80.5	69.6
2	Ibid (diluted)	23.9	26.0
3	Okadai, (drinking) thermal waters	5.8	5.9
4	Nakamatsu, spring waters	2.8	2.4
5	Mifune, thermal waters	7.4	6.0
6	Ikeda, mineral waters (No.5, diluted)	1.4	1.1
7	Okadai bunshitsu (Nekkiyoku)	24.4	20.1
8	Ikeda, mineral waters (No.5, aged)	1.9	2.4
9	Yamadaku Kyodoyu, thermal waters	4.5	3.7
10	Tabakoya hotel, thermal waters	53.6	48.9
11	Okadai bunshitsu, thermal waters	9.4	12.4
12	Matsubara, spring waters	0.3	0.2

1) 本簡易測定法のメリット

- 試料の必要量は僅かに 2 ml であり、かつ抽出操作が不要で、前処理が簡単なため、多数検体の測定が極めて容易である。
- 簡易法では、常に一定量のサンプルおよびシンチレーターを使用するので、式(1)における溶媒の回収量を目測することによる誤差が生じない。
- 計算式が極めて簡単になったので、市販の安価な電卓を用いて、ごく短時間に計算が可能になった。

2) 本測定法について考慮すべき事項

- 測定感度について
試料水を僅か 2 ml 使用するため計数値が

低いので、このため 0.2 nCi/l 以上の Rn を含有する試料水について測定することが望ましい。

b) Ra-226による影響について

多くの放射能泉では、Ra-226と放射平衡量以上の Rn-222が溶存しているため、Rn-222の測定にあたって、その影響は少ない。しかし低ラドン濃度の鉱泉水では、Ra-226の α 線が、ラドンの測定値にかなりの影響を与える可能性がある⁵⁾。

c) トロンの影響について

ラドンおよびトロンを含有する鉱泉水中のラドンを測定する場合には、ThBによる影響を避けるため、前処理してから100

時間以後に測定を行う必要がある²⁾。

本法によってラドンの測定を行う場合には、上述の如く注意すべき事項があるけれども、本法は花崗岩地域の井水、鉱泉水中のラドンの簡易定量法として、有用な方法である。

稿を終えるに当り本報告についてご校閲を給わった岡山大学名誉教授森永 寛博士に深謝致します。

文 献

1. 環境庁自然保護局監修：鉱泉分析法指針（改訂），17-19，温泉工学会，東京，1978。
2. 堀内公子，村上悠紀雄：鉱泉水中のラドンの液体シンチレーションカウンターによる新定量法とその基礎的検討，温泉科学，28，39-52（1970）。
3. 堀内公子：鉱泉中ラドンの抽出-液体シンチレーションカウンターによる新定量法について，温泉工学，13，95-103（1978）。
4. 御船政明，御船正樹：液体シンチレーションカウンターを用いたRn-222濃度計算の電算化の試み，温泉工学，21，1-4（1987）。
5. 堀内公子，村上悠紀雄：鉱泉中のラジウム，ラドンの同時定量に関する研究 その1-三朝，勝浦，白浜，湯ヶ島，網代，増富におけるラジウム，ラドンの同時定値について-，温泉科学，29，68-75（1978）。
6. 芦沢 峻：三朝温泉の化学的研究（第15報），RaBとその測定法（続報），岡大温研報，6，12-14（1952）。
7. 横山祐之：強放射能泉におけるラドンとその壊変生成物との平衡（第2報），日化，70，399-402（1949）。

The simplified method of measuring Radon in mineral waters by the liquid scintillation counter.

Masaaki Mifune

Clinical laboratory, Misasa Hospital,
Okayama University Medical School.

Radon in mineral waters was determined with simplicity by newly developed method. In this method, 2.0ml of water sample was directly mixed with 15ml of Hionic-Fluor in a vial, which was then filled up with additional Hionic-Fluor; 190 minutes were allowed for the radioactivity to equilibrate.

The radioactivity of Radon was measured by the Liquid Scintillation Counter (Tri-Carb 460 C). Radon content was easily calculated with the proposed formula by an electric desk calculator.

The reproducibility was proved $CV = 5.77\%$; the lowest detection limit was 0.2 nCi/l. An adequate correlation was obtained from the results of measurements compared with the original method; $r = 0.996$, $y = 0.818x + 0.875$.