

# 空気中の放射性同位元素濃度測定

松尾邦夫

筑波大学アイソトープ総合センター

〒305-8577 茨城県つくば市天王台 1-1-1

## 概要

非密封放射性同位元素使用室における空気中の放射性同位元素濃度の測定に関して、試料の採取法、処理、分析から測定の前課程を検討したので報告する。

## 1. はじめに

平成16年度より国立大学の法人化に伴い、放射線に関わる従事者に対する労働安全面の法規制が人事院規則から労働安全衛生法に移行した。これに伴って、従来実施されていなかった作業環境測定の放射性物質に関する項目が義務づけられ、第一種作業環境測定士（放射性物質）の有資格者でなければ空気中の放射性同位元素濃度の測定、評価をすることができなくなった。この濃度評価に関して放射線障害防止法では、実測が著しく困難な場合には放射性同位元素の実使用量から、それぞれの使用室の換気量により計算によって評価する事もできる。しかし、労働安全衛生法では計算による評価ができないので、実際に使用室の空気を採取し、これを分析しなければならない。これらの事からアイソトープ総合センターの技術職員が資格を取り、環境測定用の器材等を整備放射線施設内の作業環境測定を実施することになった。

## 2. 試料採取について

放射線障害防止法においては、放射線量率や放射性同位元素による汚染の状況の測定方法について具体的な指定はしていないが、作業環境測定法においては作業環境測定基準で採取方法、測定方法、濾過捕集材の性能などに関して詳細に決められている。作業環境測定基準第9条の空気中の放射性物質の濃度の測定は、次の方法によらなければならない。（アルファ線を放出する放射性物質等は省略）

（採取方法）

- ・ 粒子状の放射性物質  
液体捕集方法又はろ過捕集方法
- ・ ガス状の放射性物質  
液体捕集方法、固体捕集方法、直接捕集方法又は冷却凝縮捕集方法

（分析方法）

- ・ ベータ線放出核種  
全ベータ放射能計測方法又はベータ線スペクトル分析方法
- ・ ガンマ線放出核種

全ガンマ放射能計測方法又はガンマ線スペクトル分析方法

以上のように採取法や分析法が細かく決められているので医学アイソトープ共同利用施設では次のような方法と器材を採用することとした。

## 2.1 採取方法

実験室は種々の過程において化学反応によるガスの発生、揮発性物質の拡散、採取や攪拌等によるダストやミストの発生、放射性廃棄物の詰め替え、床・実験台の表面汚染物質の再浮遊などにより作業環境中の空気は放射性物質によって汚染される。したがって、以下のように試料の採取に際してはそれぞれの異なる化学的状態、物理的性状を考慮し目的に適った方法を選ばなければならない。

### 2.1.1 粒子状（ダスト、ミスト）の放射性物質

ろ過捕集方法

（対象核種） $^{51}\text{Cr}$ 、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{75}\text{Se}$ 、 $^{32}\text{P}$ 、 $^{35}\text{S}$ 等  
（ろ材）セルローズ繊維とガラス繊維を組み合わせたダストろ紙を使用（HE-40T）。

HE-40T：0.3  $\mu\text{m}$ の粒子に対し、99.5%の捕集効率を有する。

### 2.1.2 揮発性またはガス状の放射性物質

固体捕集方法

（対象核種） $^{125}\text{I}$ 、 $^{131}\text{I}$ 、 $^{32}\text{P}$ 、 $^{35}\text{S}$ 等  
（吸着材）活性炭含浸ろ紙（CP-20）。

CP-20：相対湿度と捕集時間により10%～93%の捕集効率を有する。

それぞれのろ紙は図1のようにローボリュームムサンプラーに連結され、対象実験室の空気を吸引する。

空気中の汚染された粒子状物質はHE-40Tに捕集され、ガスのヨウ素等はCP-20の活性炭に吸着される。特に放射性ヨウ素はその化学的性質から空気中に遊離し、ガス状になって存在する可能性が高い物質である。

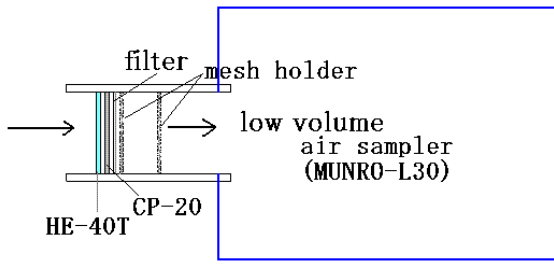


図 1. サンプルホルダー内の装着ろ紙

### 2.1.3 ガス状の放射性物質 (水素及び炭酸ガス)

冷却凝縮捕集方法、液体捕集方法  
(対象核種)  $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$

採取はサンプラー (Aloka HCM101B) を使用し、 $^3\text{H}$  は HTO (トリチウム水) の化学形で冷却凝縮捕集し、 $^{14}\text{C}$  は  $^{14}\text{CO}_2$  の化学形でモノエタノールアミンにより捕集する。この 2 核種の採取についての詳細を図 2 に示す。

ポンプ①によってろ過 (ダスト等の除去) 吸引された空気は、約  $750^\circ\text{C}$  の電気炉②でそれぞれ酸化される。HTO はコールドトラップ③で捕集され、 $^{14}\text{CO}_2$  は次のモノエタノールアミントラップ④によって捕集される。その後空気はモノエタノールアミン除去用活性炭層⑤を通過後、排気される。

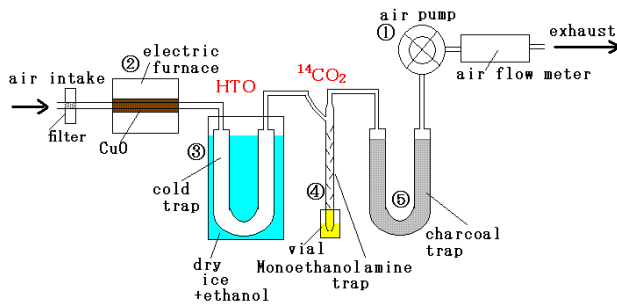


図 2. トラップ装置の概要

## 2.2 吸引試料空気量と検出限界について

実験室内における空气中放射性同位元素濃度の上限値は法律により厳しく規制されている。作業者は放射線による外部被ばくと、放射性同位元素を呼吸などにより体内に取り込んだ効果による内部被ばくの合算値を一週間で 1 ミリシーベルトを超えないようにしなければならない。たとえば  $^{125}\text{I}$  では空气中の濃度限度は  $0.001 \text{ Bq/cm}^3$  である。核種が 2 核種以上あれば、それぞれの空气中濃度の濃度限度に対する比の和が 1 を超えてはいけないうで更に厳しくなる。

したがって、採取する空気量は法定の濃度限度よ

り更に厳しい値を考慮して採取しなければならない。

下記の式は 1 核種の濃度限度の精度を必要とする空気量の算定式である<sup>[1]</sup>。

$$Q = \frac{3 \times \sqrt{2 N_b}}{1 \times 10^3 \times t_c \times \eta_M \times \eta_C \times (\text{DAC})}$$

Q : 必要吸引空気量 ( $\text{m}^3$ )

$N_b$  : バックグラウンド計数値 (counts)

$t_c$  : 計数時間 (秒)

$\eta_M$  : 計数効率 (cps/Bq)

$\eta_C$  : ろ紙の捕集効率 (%)

DAC : 濃度限度 ( $\text{Bq/cm}^3$ )

上記の式から  $^{125}\text{I}$  (濃度限度) について必要空気量を計算すると約  $2400 \text{ cm}^3$  となる。しかし、通常使用する核種は複数種使用され、測定器の測定効率、捕集効率などを考慮すると検出限界が濃度限度の 1/10 を超えないようにする必要がある<sup>[2]</sup>。われわれが行っている測定では更に一桁精度を上げて採取空気量を 100 倍以上としている。

## 3. 分析方法

### 3.1 ろ紙の計測

対象とする核種は  $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$  以外は全ガンマ放射能測定及び全ベータ放射能測定を実施し、異常値を検出した場合にスペクトル分析を行い、核種の同定と濃度を評価する事としている。この際、空气中に存在する天然のラドン及びトロンの崩壊生成物の影響を考慮しなければならないが、測定は試料採取後数時間経てからでないと実施できないので特にラドンの影響による補正はしていない。トロンについても 3 日後の測定値と数時間後の測定値とでは有意差がないので、測定は採取から数時間後に行っている。

全ベータ放射能の測定には  $2\pi$  ガスフローカウンターを、全ガンマ放射能はオートウェルシンチレーションカウンターを用いて測定し、何れの測定においても対象核種中で最も計数効率が低い核種の効率をもって放射能値を決定する。

サンプラーから回収したセルローズろ紙はベータ線測定用の試料皿の直径に合わせて切り出し、残りの部分を全ガンマ用の試料とする。この際、ろ紙の面積による補正をする。また、活性炭含浸ろ紙は放射性ヨウ素用にそのまま試験管に入れて測定する。

この活性炭含浸ろ紙の放射性ヨウ素に対する捕集効率はヨウ素の性状、雰囲気条件、捕集時間、流量、湿度などの諸条件によって大きく変化する (図 3)<sup>[1]</sup>。したがって、捕集効率をこれらの条件により補正をしなければならない。

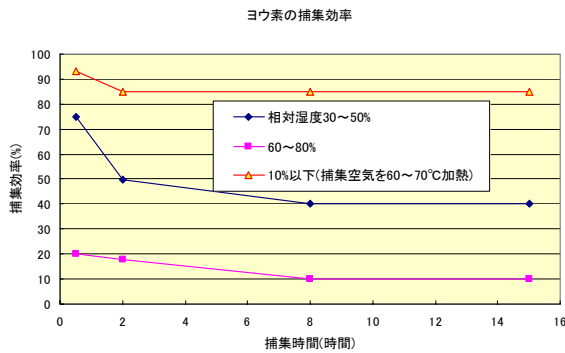


図3. 放射性ヨウ素の捕集効率  
(文献[1]の表3の一部よりグラフ化)

### 3.2 $^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ の計測

図2の装置においてトリチウム用の試料はコールドトラップ用のU字管内に霜状になって回収される。次に、このU字管を取り出し、液体シンチレーションカクテル8 mlで洗い出し所定のバイアルに移す。更にエタノール2 mlで洗い出し、これもバイアルに回収する。このときの水の捕集効率は温度と湿度により異なるのでこの補正をしなければならない。図4は装置のマニュアルから求めた水の捕集効率曲線である<sup>[3]</sup>。

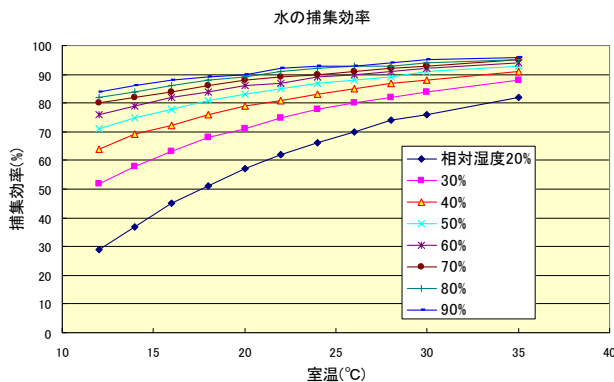


図4. 水の捕集効率

一方の $^{14}\text{C}$ はモノエタノールアミントラップ用ガス吸収管の下部に取り付けられたバイアルに回収される。次に吸収管の上部からエタノール3 mlで管内を洗い出し、最後にエタノール2 mlで吸収管下部を洗い流す。このエタノールの洗い出しの上下部の量の割合はどのような比でもかまわない。バイアル中にはあらかじめモノエタノールアミン2.5 mlが添加されているが、この中に液体シンチレーションカクテル8 mlを追加して測定用試料とする。マニュアルではモノエタノールアミンの $\text{CO}_2$ 回収率を95%としているが、99%以上の回収率の報告がある<sup>[4]</sup>。また、この物質は腐食性と急性毒性(吸引による肺水腫等)の危険性があるので十分注意して取り扱う必要がある。

試料測定用のそれぞれのバイアルは十分攪拌し、静置後、液体シンチレーションカウンターで測定する。

$^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$ 試料のバイアル中の成分は下記のとおりである。

#### ・HTO

液体シンチレーションカクテル (Aquasol2) 8 ml  
エタノール (99.5%) 2 ml  
回収水 (HTO)

#### ・ $^{14}\text{CO}_2$

液体シンチレーションカクテル (Aquasol2) 8 ml  
エタノール (99.5%) 5 ml  
Monoethanolamine (MEA) 2.5 ml  
回収 $\text{CO}_2$  ( $^{14}\text{CO}_2$ )

### 4. 測定における添加剤の影響

液体シンチレーション計測においてシンチレーションカクテル中の成分は測定値に大きく影響を与える。その主なものはバイアル中での発光を抑制する消光 (quenching) 作用によるものが大部分である。基本的にカクテル中に添加するものは何でも消光の原因になり得る。したがって、MEAやエタノールの添加剤による計測値への影響を以下のように検証した。

- ・添加剤の無い試料 A : 24364 dpm  $\pm$  60 dpm  
シンチレーションカクテル (Aquasol2) 8 ml  
 $^{14}\text{C}$ -希釈水溶液 100  $\mu\text{l}$
- ・A+MEAを0~5 ml 添加した試料 B
- ・A+エタノールを0~5 ml 添加した試料 C
- ・A+MEA 2.5 ml +エタノールを0~5 ml 添加した試料 D

それぞれ添加剤を0.5 ml~1.0 ml 毎追加して計測する。

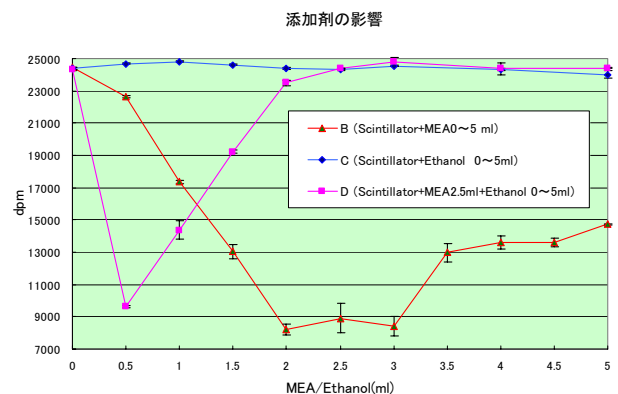


図5. 添加剤による計測値への影響

図5にその結果を示した。MEA添加の試料BはMEAを添加した直後から計数値が低下し、2~3 mlで計数値が極小値を示す。その後MEAが増加するに従って僅かに計数値の上昇が見られる。この時の液相はMEA添加直後から混濁を呈する。一方、エタノールの試料Cでは計数値の低下は殆ど見ら

れなく、液相も清澄である。また、MEA 2.5 ml をあらかじめ入れた試料 D はエタノール 0.5 ml 添加時は B の試料と同様の計数であったが、エタノールを増量するに伴って液相が清澄になり、計数値もエタノール 2.0 ml 以上の添加で正常に戻った。

この時の計数値に与える quenting の変化を図 6 に示した。図中の H#値はバイアル中でコンプトン電子のスペクトルが低エネルギー側にシフトする大きさを示したもので quenting の量を反映する指標である。図 6 で quenting は全ての試料で添加物の増加によって大きくなっている。しかし、液相の清澄な試料は図 5 から計数値の補正が正常になされているのが分かる。

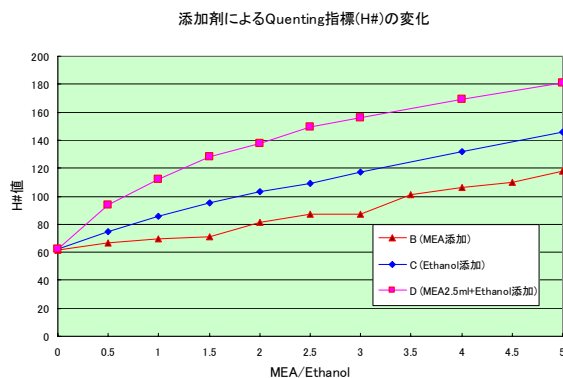


図 6. 添加剤による quenting の影響

## 5. 結果と考察

ろ紙の測定では特に問題とするような事はないが、活性炭含浸ろ紙の場合、試験管に入れる作業が少し煩雑になる。実測では殆どの試料がバックグラウンドレベルであったが、附属病院の核医学検査室（医学施設からは毎月核医学の空气中放射性物質濃度の検査を実施している。）で僅かに検出限界を超えた汚染試料があった。このときに測定済みのろ紙を重ねて置いたため、下のろ紙にも僅かに汚染が検出されてしまった。再度、同一場所を計測したが汚染は検出されなかったので明らかに試料間の汚染であることが判明した。この時の汚染はスペクトル分析で核種を同定する事ができたが、注射器内に残った放射性同位元素を取り出すときに内容物が空气中に飛散したのが原因であった。

$^3\text{H}$ 、 $^{14}\text{C}$  の測定では 4 項で述べたように試料中の成分比では計数値に影響が無いことが分かった。MEA の添加で計数値が大きく低下するのは添加量によって液相が微妙に変化し、乳濁と二層分離によって影響が異なる事によるためと推測される。この試料をしばらく静置すれば全ての MEA のみの添加物は二層に分離すると思われるが、これはシンチレータとエタノールの添加によって解消される。また、HTO の採取では使用室の湿度が高いときは、回収される霜状の氷が目視で容易に判別できるほどである。乾燥した冬期では図 4 でも明らかなように HTO の捕集率は悪い。

施設の許可を受ける際は放射性同位元素の 1/100 が空气中に飛散するとして使用室の放射性同位元素濃度を計算しなければならないが、通常の使用では放射性同位元素が空气中に飛散する事はあまり考えられない。筑波大学アイソトープセンターが実施した $^{14}\text{C}$  標識アミノ酸の加熱実験 ( $105^\circ\text{C}\sim 175^\circ\text{C}$ ) では始めの 2～3 時間に急激な放射能減少（半減期で 1 時間から 3 8 時間）がみられたが、常温での 6 0 日間の放置実験では検出できないレベルであった<sup>[5]</sup>。筆者が各種材料に放射性同位元素を滴下し、常温放置における実験を試みたが（図 7）、一週間、一ヶ月単位ではそれぞれの核種で放射能の散逸（半減期の減衰補正あり）は殆ど認められなかった。

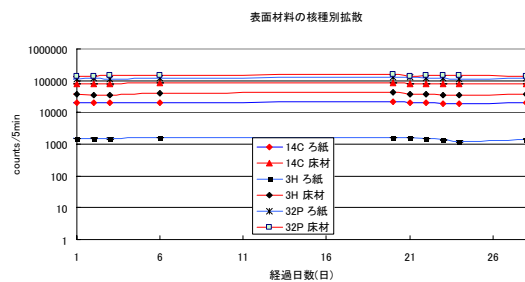


図 7. 汚染した表面からの放射能の散逸

## 6. まとめ

労働安全衛生法では空气中の放射性物質濃度測定は毎月 1 回実施することとなっている。我々が実施した平成 1 6 年 4 月から約 3 年間の実測データでは 1 度だけ下記のように $^{14}\text{C}$  が検出限界を超えた事があった。ただし、統計的にこの時の値を汚染レベルと判定する事はなかった。

- ・検出限界値 $\sim 2.53 \times 10^{-5} \text{ Bq/cm}^3$
- ・測定値 $\sim 2.98 \times 10^{-5} \text{ Bq/cm}^3 \sim 5.58 \times 10^{-5} \text{ Bq/cm}^3$
- ・濃度限度 $\sim 4.0 \times 10^{-2} \text{ Bq/cm}^3$

非密封の放射性同位元素を取り扱う実験室では前述のように飛散量を 1/100 と想定して換気量を設定しているので使用時、床の汚染時、詰め替え時であっても検出できる程度の汚染は少ないと思われる。

## 参考文献

- [1] 作業環境測定ガイドブック・電離放射線関係, 労働省安全衛生部環境改善室編, p. 33, p. 44-45, 日本作業環境測定協会, 2000.
- [2] 労働衛生管理とデザイン・サンプリングの実務, 厚生労働省安全衛生部環境改善室編, p. 117, 日本作業環境測定協会, 2002.
- [3] 空气中 $^3\text{H}$ ・ $^{14}\text{C}$  捕集装置 Aloka HCM-101B 取扱説明書, p. 15-17.
- [4] 斎藤智雄 他, 空气中の $^3\text{H}$ ・ $^{14}\text{C}$  の放射能測定, RADIOISOTOPES 25 (1976) 37.
- [5] 微量放射能汚染の測定法に関する研究, 研究代表者東京大学アイソトープ総合センター 森川尚威, p. 39-47, 昭和 61 年度科学研究費補助金 (総合研究 A) 研究成果報告書 (60303030).