

# 液体シンチレーションカウンターによる 地下水のラドン定量法について

山口県衛生公害研究センター

歳弘克史・藤原美智子・畠中啓治

河村憲治\*

## Determination of Rn in Underground Water by Liquid Scintillation Counter

Katsushi TOSHIHIRO, Michiko FUJIWARA, Keiji HATAKENAKA, Kenji KAWAMURA

*Yamaguchi Prefectural Research Institute of Health*

### はじめに

鉱泉のラドン (Rn) の定量は、IM泉効計及び液体シンチレーションカウンター (LSC) による方法が鉱泉分析法指針<sup>1)</sup> (以下指針) に示されている。LSC法は、Rnがトルエンによく溶解する性質に基づき、水中のRnをトルエンで抽出し、LSCで測定する方法である。当センターでは、鉱泉のRn定量を平成5年10月より、従来のIM泉効計法に比べ、多数の試料のRn定量ができ、定量可能域が広い利点がある<sup>2)</sup>。LSC法に切り替えた。しかし、指針では、抽出及び計測の時間が長く、一日に処理できる試料数が限られるため、分析時間の短縮化を検討した。さらに、地下水のRn分布調査に当たり、多数の試料を採取する場合、当日にRn定量ができないこともあるため、試料中のRn濃度の変化を検討した。

### 実験方法

#### 1 試料

平成4年9月～6年5月にかけて、県内40ヵ所の井戸水等を、それぞれ1ℓ細口ポリびんに、上部に空気が残らないよう静かに満たし試料(満水時1,084mℓ)とした。

#### 2 測定機器

アロカ(株) LSC-3500 (ETM)

#### 3 測定方法

実験は原則として指針に準じ、分析時間の短縮のために、LS量、抽出時間及び計測時間について実施した。Rnの測定方法は、検水量が1,000mℓとなるように分注器で試料84mℓを静かに抜きとり、LS30mℓを加え、手動で2分間激しく振とうする。静置後、ポリびんの横を手で押さえ、LS層を押し上げて、ラドン分取管<sup>3)</sup>で、低カリ

ガラスLSC用バイアル (22mℓ) に移し、LSCでRnの崩壊数を10分間計測する。Rn濃度を求める計算は、御船ら<sup>4)</sup>の方法によった。

バイアル中でのRn濃度の変化は、濃度の異なった4種類の試料を用意し、各試料は、LSでRnを抽出した後、バイアルに分取し、放射平衡に達した後、直ちに測定した。そのLSを、冷暗所に保存して1日及び2日後のRn濃度を測定した。

試料の保存性はRn濃度の異なった4種の試料を各3組ポリびんに満水し、1組は、当日直ちに抽出し測定した。残り2組は、実験室で暗所(ダンボール箱)保存して、1日及び2日後のRn濃度を測定した。

### 結果及び考察

#### 1 試料のRn抽出時間

Rn抽出時間は、10分間の振とうによるとされているため時間的にも、労力的にも単位時間当たりの処理件数には限りがあり、検査処理時間の短縮は、労力の効率化にもつながるため、抽出時間の短縮を試みた。

これまで、著者らは現地で採取した試料にLSを加え、Rn抽出時間を指針どおり10分間振とうしたものと、5分間振とうしたものとで定量値に差がないことを経験していることから、さらに、抽出時間を短縮することができないか、9試料を用いて、2分及び5分間振とうしRn濃度を測定した。両者のRn濃度の相関は極めて高く( $R=0.998$ )、2分間と5分間の抽出時間には差が認められなかった。また、Rnを一回抽出した試料からは、再抽出しても検出されることなく、2分間の抽出時間で十分であることを確認した。

## 2 LSの使用量

LS量25mℓでは、バイアル22mℓにLSを移す時、水溶液の混入がしばしばあり、クエンチング現象を起こし測定に障壁があった。そのため、12試料について30mℓ及び40mℓで定量したRn濃度の関係を図1に示す。

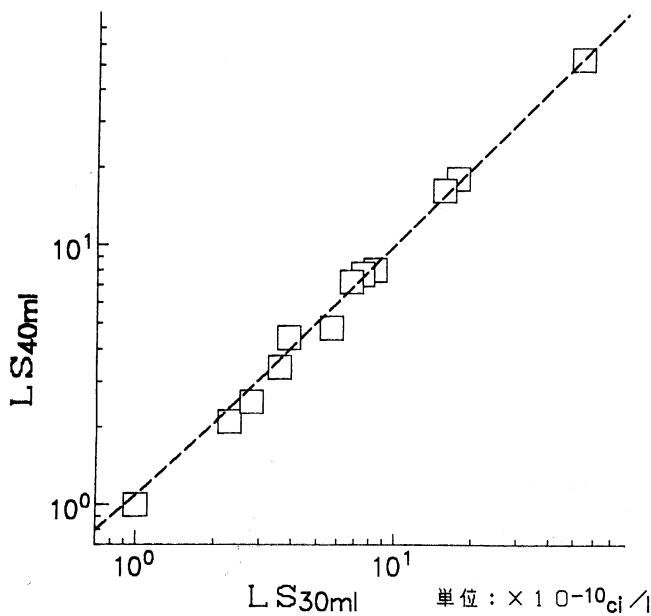


図1 LSの使用量

両者はRn濃度に関係なく相関があった ( $R = 0.999$ ).

トルエンは有害物質であることから30mℓとした。

## 3 LSCのRn計測時間

5試料について、5, 10, 30及び60分間計測してみた。

Rn崩壊率(DPM値)は、図2に示す。

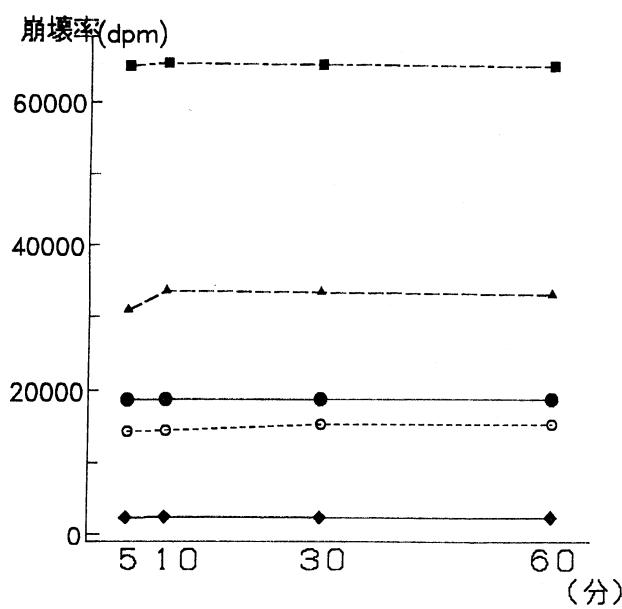


図2 LSCのRn計測時間

Rn濃度に関係なく、5分間ではわずかに低値を示したが、10分間以降は、ほぼ安定していたので計測時間は10分間とした。

## 4 バイアル中でのRn濃度の変化

指針では、Rnを抽出したLSをバイアルに移し、放射平衡に達した3時間10分後(当日)にRn濃度をLSCで計測することになっており、多数の試料が搬入されると当日中の処理が困難なこともある。そのような時、バイアルに分取したLSを冷暗所に、1日～2日保存後測定すれば、多数の検体に対応できるため、Rn濃度の経日変化の法則性を求めた。

Rn濃度を当日、1日後及び2日後で比較すると、減少率は濃度により異なり、1日後が0.00～6.11%，2日後には1.52～6.72%となった。検水のRn濃度をX軸に、その減少率をY軸にした相関図は図3に示す通り、1日後及び2日後共にRn濃度の高いものほど減少率が大きく、2次曲線を示した。従って、Rn濃度 $60 \times 10^{-10} \text{ Ci/l}$ 以下の検水は2日間保存しても、ここで得られた2次回帰式から当日濃度を推定できるが、 $40 \times 10^{-10} \text{ Ci/l}$ 以下の場合には、最も大きいものでも2.2%に過ぎず、補正することなく1日後及び2日後の測定値を、そのまま当日濃度としても実用上差し支えない変動であった。

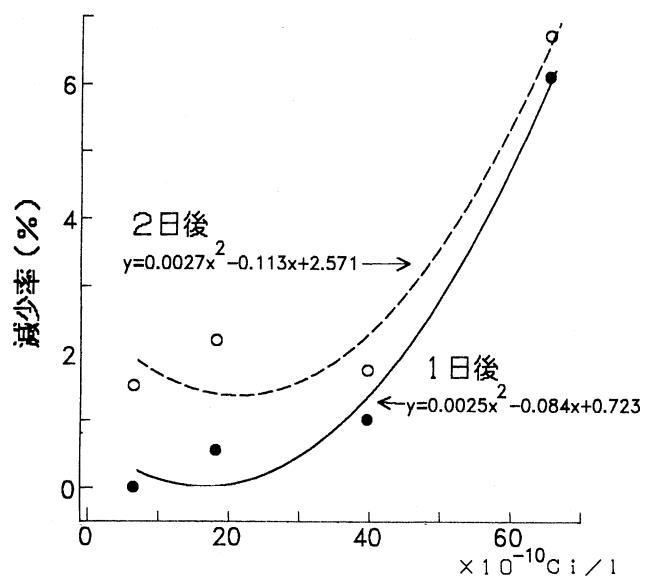


図3 LS中でのRn濃度

## 5 試料保存中のRn濃度の変化

Rnは、半減期が3.825日と短く、また、極めて散逸しやすい揮発性ガスであるため、現地で直ちにLSで抽出し、Rnを計測することになっている。しかし、直ちに抽出できないこともあるため、ポリビンに保存した試料

中のRn濃度を測定し経日変化をみた。測定値は表1に示す。

表1 試料保存中のRn濃度の変化

番号	当 日	1日後(減少率%)	2日後(減少率%)
1	6.3±0.0	5.9±0.1( 6.3)	5.8±0.0( 7.9)
2	16.8±0.0	16.7±1.0( 0.6)	15.7±0.3( 6.5)
3	36.6±1.7	33.7±0.9( 7.9)	31.8±0.4(13.1)
4	63.8±2.0	60.4±0.6( 5.3)	57.2±3.9(10.3)
平均		( 5.0)	( 9.5)

平均値±標準偏差 ( $N = 3$ ) 単位:  $\times 10^{-10} \text{Ci}/\ell$

採水当日のRn濃度に比べ、Rn減少率は、1日後0.6~7.9%，平均5.0%，2日後6.5~13.1%，平均9.5%で、濃度別にみた減少率には法則性が認められなかった。しかし、測定許容誤差を5%とすると<sup>5)</sup>、1日後であれば、測定誤差の許容範囲内の変動であった。

試料保存中にみられるRnの減少は容器内への揮散や吸着など<sup>5)</sup>によるものと思われる。なお、この実験と併せて、試料を冷暗所(12°Cの恒温恒湿器内)に保存したものについて同様の実験を行ったが、ほぼ同じ値を示し保存方法による影響はほとんどなかった。

## 要 約

地下水のRn定量法の時間の短縮化とRn濃度の経時変化について検討し次の結果を得た。

10分間であった抽出時間を2分間とし、50~100分であったRn計測時間を10分間とした定量法で問題点はみられず、定量操作時間の短縮が図られた。

LSで抽出しバイアルに分取したRnの経時変化は、Rn濃度が大きいほど減少率が高く、今回の実験範囲内の濃度では、回帰式により補正でき、試料採取当日に定量が行えない場合、 $40 \times 10^{-10} \text{Ci}/\ell$ 以下の濃度であれば抽出後2日以内まで補正することなく抽出当日のRn濃度として取り扱えた。

著者らが行った地下水のRn含有量調査の結果から、大多数が $40 \times 10^{-10} \text{Ci}/\ell$ 以下であったため、本法は多数の試料のRn定量法として十分実用に供しえるものと考えられる。

## 文 献

- 環境庁自然保護局編：鉱泉分析法指針（改定）(1978)
- 歳弘克史ら：山口衛公研年報. 35, 72~73 (1992)
- 堀内公子：温泉工学会誌. 13, 95~103 (1978)
- 御船政明ら：温泉工学会誌. 21, 1~4 (1987)
- 栗屋 徹ら：神奈川温研報告. 13, 99~108 (1982)