

論 文

液体シンチレーションカウンターに対する 自然放射能の影響

松 山 政 夫*・佐 竹 洋**・渡 辺 国 昭*

*富山大学トリチウム科学センター 富山市五福3190

**富山大学理学部地球科学教室 富山市五福3190

Variations of the Background Count Rate of a Liquid Scintillation Counter due to Natural Radioactivities.

Masao Matsuyama*, Hiroshi Satake**, and Kuniaki Watanabe*

*Tritium Research Center, Toyama University, Gofuku3190, Toyama 930

**Department of Earth Science, Faculty of Science, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930

(Received December 24, 1983)

Abstract

Variation in the background count rate of a liquid scintillation counter due to natural radioactivity was measured by repeat and cycle modes. The samples used for measuring the background count rate were polyethylene, Teflon, quartz glass and low-potassium glass vials contained the liquid scintillator only. The background count rate of the polyethylene vial was found to be lowest among the four vials.

Variation in background count rate was correlated with the concentration of ^{222}Rn which was strongly affected by ventilation in the laboratory. ^{222}Rn and its daughter nuclides giving rise to the variation in background count rate were apparently carried into the detector section not only by adsorption on the vial but also by the solution in the vial material. To reduce the effects of ^{222}Rn and its daughter nuclides, each vial kept in the changer section of the liquid scintillation counter was covered with a "cap". As a result, variation in the background count rate was found to be considerably reduced for all the vials.

1 緒 言

トリチウムや炭素-14などのような低エネルギー β 線を放出する核種の放射能測定には、多くの場合液体シンチレーションカウンター (LSC) が用いられている。LSCは特に、環境水などに含まれる低濃度のトリチウムの測定に対して有効である。しかしながら、低濃度 ($\sim 100\text{pCi}/\ell$) のトリチウムを精度よく測定するには、バックグラウンド (B.G.) 計数値およびその変動幅を小さくする必要がある。

B.G. 計数値の変動は室内のラドン濃度に大きく依存していることは既に報告した通りである¹⁾。この B.G. 計数値に対するラドンの影響を少なくするためには LSC 内部に室内の空気が入らないようにしなければならない。そのためには、LSC 全体の空気流入口の日張り、あるいは LSC 内部を窒素ガスでパージするなどの方法が考えられるが、技術的な問題が多く困難である。

本研究ではラドンの侵入径路を明確にすると共に、先の研究結果²⁾に基づきラドンの影響を少なくするための簡便な器具を試作したのでその効果について報告する。

2 実 験

使用した B.G. 計数用試料は 20m ℓ のポリエチレン、テフロン、低カリガラスおよび石英ガラスバイアルにジオキサンシンチレーター (ALX-2, 和光純薬工業) を入れたものである。また、テフロンバイアルについてはインスタゲル (Packard Inst. Co.) を 100m ℓ 入れたものも用いた。これらの試料は各々 2 本ずつ調製した。

測定にはアロカ製の低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター (LSC-LB1) を使用した。LSC の測定条件は Table 1 に示した通りである。ただし、H および C チャンネルのウィンドウ幅以外の領域をも含めた全計数の変化を知るために、P チャンネルは同時計数回路からの信号を直接取り出すように設定されている。1 回の測定時間は 20 分 (リポートモードの場合)、あるいは 50 分 (サイクルモードの場合) である。

バイアルがサンプルチェンジャー部に止まっている時に室内のラドンを含む空気との接触を防ぐために、Fig. 1 に示すようなアクリル樹脂製の“キャップ”およびアダプターを製作し、前述の試料バイアル 2 本のうち

Table 1 Measuring conditions of the liquid scintillation counter (LSC).

H. V.	Out side	2500 V
	Center	2000 V
Anti-Coinc.	Count. Rate	Low
	Lower Level	1.0
Channel	H	Gain: 0.6x100 L=100, U=400
	C	Gain: 0.5x10 L=120, U=600
	P	Coin. Signal

一方にキャップをかぶせて測定した。

LSCが置かれている測定室の空气中ラドン濃度は可搬型トリチウムモニターを用いて測定した。

(MGR-110型, アロカ)

3 結果および考察

Table 2 は B.G. 計数値の変動が最も少ない¹⁾ リポートモードで各バイアルを20回測定した時の平均値と標準偏差をまとめたものである。HおよびPチャンネルの計数値は低カリガラスで最も大きく、石英ガラス、テフロン、ポリエチレンの順に小さくなった。この結果より、低濃度のトリチウム試料の測定にはポリエチレンバイアルが有利であると言える。

B.G. 計数値の変動の原因の1つである光電子

Table 2 Background count rates of vials measured by the LSC in the repeat mode.

channel \ vial	H (cpm)	C (cpm)	P (cpm)
Polyethylene	2.1±0.3	2.6±0.3	11.8±0.8
Teflon	2.6±0.4	2.5±0.4	12.1±0.7
Quartz	3.4±0.3	2.3±0.4	12.8±0.9
Glass	5.9±0.4	2.9±0.3	20.5±1.1
Polyethylene*	0.76±0.16	0.15±0.08	1.7±0.2

*) India ink was filled in place of the ALX-2 scintillator.

増倍管の偶発同時計数の度合いを調べるためにポリエチレンバイアルに墨汁を入れて測定した。その結果、約0.8cpmを得た。この値はポリエチレンバイアルにシンチレーターを入れた時の B.G. 計数値の約40%と大きな割合を示している。

次にリポートモードとサイクルモードとの B.G. 計数値の差を調べた。サイクルモードによる測定ではキャップの影響をも同時に調べるために、同じ種類のバイアルを2本ずつチェンジャー部に並べ、最初のバイアルの方にキャップをかぶせた。このようにして測定された結果の1例を Fig. 2 に示す。Aは空气中のラドン濃度の変化、Bはポリエチレンバイアルの B.G. 計数値の変化である。Aに示されたような空气中のラドン濃度の変化は夜間および日曜日の空調機の停止によるものである¹⁾。Bのキャップがされていない方のバイア

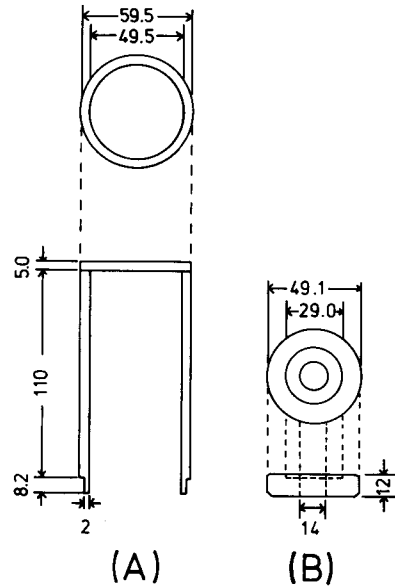


Fig. 1 Schematic diagrams of the cap (A) and the adaptor (B). The size is expressed in millimeter.

ルの B.G. 計数値は A の変化とよく一致している。つまりサイクルモードにおける B.G. 計数値の変化はランド濃度の変化によるものと言える。更に、キャップをかぶせたバイアルの B.G. 計数値は全体的に約 2 cpm 低くなり、変動幅も小さくなっていることがわかる。またこの場合、バイアルのキャップを入れ替えても同様の結果が得られた。

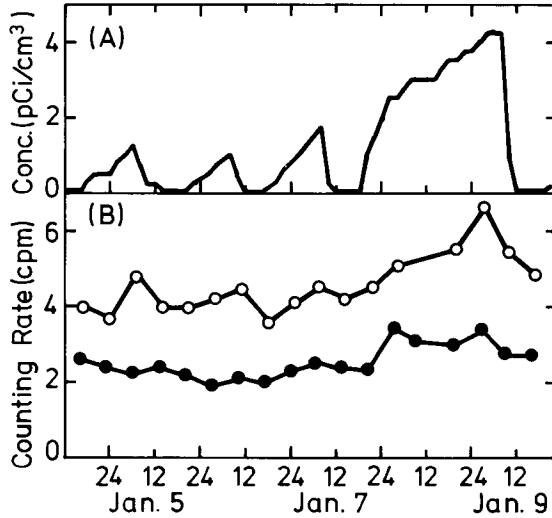


Fig. 2 Variations of the background count rate of polyethylene vial measured by the LSC in the cycle mode and those of the radio activity measured by the ionization chamber placed beside the LSC: ●, With using the cap; ○, Without using the cap.

Table 3 Background count rates of various vials measured by the LSC in the mode with/without using the cap.

channel \ vial	with cap (cpm)			without cap (cpm)		
	H	C	P	H	C	P
Polyethylene	2.4±0.4	2.9±0.3	13.4±1.2	4.6±0.9	3.0±0.2	19.1±2.8
Teflon	2.9±0.3	2.5±0.2	12.6±0.5	4.1±0.4	2.6±0.2	16.3±0.6
Glass	6.5±0.6	3.0±0.3	21.3±4.7	7.1±0.5	3.0±0.3	23.5±1.2
Polyethylene*	0.9±0.3	0.1±0.05	1.9±0.5	1.0±0.4	0.1±0.04	2.0±0.5

*) India ink was filled in place of the ALX-2 scintillator.

Table 3 はサイクルモードにおける各バイアルの測定結果をまとめたものである。この表より明らかなように、いずれのバイアルにおいてもキャップをかぶせたものの方が B.G. 計数の平均値、標準偏差が小さくなった。更に、キャップをかぶせたことによる影響は C チャンネルではほとんど見られないが、H および P チャンネルには見られた。その影響の大きさはポリエチレンが最も大きく、テフロン、低カリガラスの順に小さくなった。一方、リピートモードにおける測定結果 (Table 2) の H チャンネルと比較すると、キャップをかぶせたものでは約 10% 程度しか B.G. 計数値は増加しなかった。

B.G. 計数値の変化の体積依存性を調べるために 100ml のバイアルについても同様の測定を行った。その結果 (Hチャンネルの値) を Fig. 3 に示す。これは最初2本のバイアルのうち一方のバイアルにキャップをし、約190時間後に他方のバイアルにキャップをかぶせて測定した結果である。A, Bいずれのバイアルにおいても Table 3 の結果と同様に、キャップをかぶせた時には B.G. 計数の平均値が 0.3cpm, 標準偏差が 0.2cpm 小さくなった。

以上より、バイアルの種類、体積に関係なくキャップをかぶせることによって B.G. 計数値およびその変動幅を小さく出来ることがわかった。(以後、このことを“キャップ効果”という) B.G. 計数の変動に大きく作用しているラドンの検出部への侵入径路は次のように考えることが出来る。もしランドの娘核種 (RaA および RaC) がバイアルの表面に沈着して測定時に検出部へ運び込まれるのであるならば、表面積が同じバイアルでは同じ程度のキャップ効果が得られると考えられる。しかしこのキャップ効果はポリエチレンが大きくテフロン、ガラスの順に小さくなった。また池辺らは静電気作用によつてランドの娘核種が有機材の表面に多量に吸着することを報告している³⁾。本測定における B.G. 計数値の変動の主たる原因がこのような静電気作用によるものであれば、長期間の測定 (例えば、Figure 3) の場合には静電気の減少あるいは増加に伴う B.G. 計数値の変動傾向がみられるものと思われる。しかし Fig. 2 および Fig. 3 の両者の測定においてこのような傾向は見出されなかった。つまり、静電気作用の寄与は小さいものと考えられる。

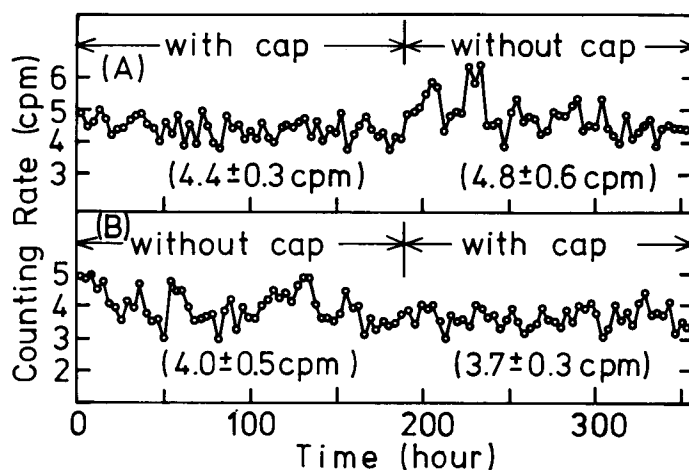


Fig. 3 Variations of the background count rate of Teflon vial measured by the LSC in the cycle mode with/without using the cap.

三宅らはポリエチレンおよびテフロン膜に対する不活性ガスの透過、拡散および溶解度係数を Time-lag 法により求めている⁴⁾。その結果によれば、両者の膜に対するラドンガスの溶解度係数はほぼ同じであるが、拡散係数はポリエチレン膜の方が約10倍大きくなっている。つまり、一定時間後に両者の材料中に溶解しているラドンの娘核種の総量はポリエ

チレンの方が多くなる。またガラスに対するラドンの拡散係数はこれらの有機材料に較べて極めて小さい⁹⁾。これらのことより、バイアル材料中に溶解しているラドンおよびラドンの娘核種の量は、ポリエチレン>テフロン>ガラスの順になると考えられる。この傾向はキャップ効果と一致する。つまり、バイアルがチェンジャー部に止っている時にラドンがバイアル材料中に溶解して、B.G. 計数値の変動に影響を与えることが示唆される。

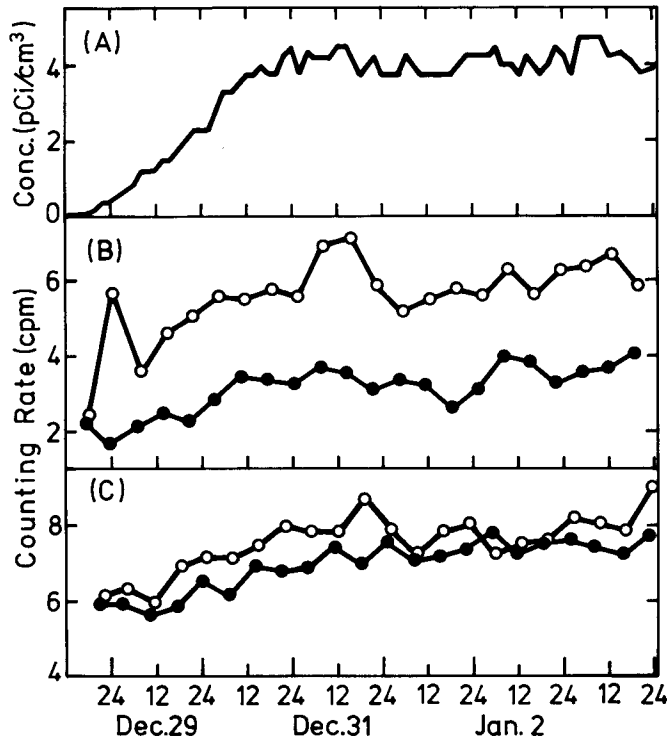


Fig. 4 Variations of the radioactivity measured by the ionization chamber (A) and those of the background count rates of polyethylene vial(B) and low-potassium glass vial(C). (the same symbols in Fig.2 were used)

キャップ効果を更に確かめるために長期間にわたって空調機を停止し、測定室内のラドン濃度の高い状態が続いた時 B.G. 計数値はどのように変化するかを調べた。その結果を Fig. 4 に示す。測定室内のラドン濃度は空調機を停止して約 2 日後にはトリチウムモニターの指示値が約 4 pCi/cm^3 となり、その後はほぼ一定値となった。また、B および C より明らかのように、ポリエチレンバイアルではガラスバイアルに較べて大きいキャップ効果のみとめられた。ただし、このように高いラドン濃度が続いた場合には Fig. 2 の場合とは異なり B.G. 計数値の増加傾向がいずれのバイアルについてもみられた。Table 4 はこれらの結果をまとめたものである。いずれのバイアルでも大きなキャップ効果は認められるが、Table 3 の結果と比較するとキャップをした場合でも B.G. 計数の平均値は約 1 cpm 高くなった。このように長期間にわたって空調機が停止している時に測定を行なう場合はキャップ内を窒素ガスでパージするなどの方策を追加する必要がある。

Table 4 Background count rates of various vials measured by the LSC in the cycle mode with/without using the cap.

channel vial	with cap (cpm)			without cap (cpm)		
	H	C	P	H	C	P
Polyethylene	3.4±0.5	2.9±0.3	15.3±1.3	5.9±0.6	3.4±0.3	26.6±1.5
Teflon	4.3±0.5	2.6±0.2	16.7±1.4	6.2±1.0	3.0±0.2	22.0±3.0
Glass	7.3±0.4	3.2±0.2	24.1±1.3	7.9±0.5	3.0±0.2	25.8±1.5
Polyethylene*	1.9±0.3	0.09±0.05	3.2±0.4	2.4±0.3	0.12±0.04	4.0±0.3

*) India ink was filled in place of the ALX-2 scintillator.

Table 3 および Table 4 から、墨汁を入れたポリエチレンバイアルについても他のバイアルの場合と同様にキャップ効果が見出された。つまり、ランドおよびその娘核種からの放射線が光電子増倍管に作用していると考えられる。例えば α 線と窒素との相互作用による蛍光の放出⁹⁾、あるいは増倍管のガラス表面の帯電による影響等が考えられるが、この原因を明確にするためには更に詳細な実験を行う必要がある。

4 ま と め

液体シンチレーション計測法に用いるバイアルの B.G 計数値およびその変動幅に対する自然放射能の影響を調べた。その結果、次のようなことがわかった。

1. B.G. 計数値の変動の主たる原因は室内のラドン濃度の変化によるものである。
2. LSC のチェンジャー部に侵入したラドンはバイアル表面への吸着（沈着）のみならず、バイアル材料中にも溶解して検出部へ運び込まれると考えられる。
3. ラドンに起因する B.G. 計数値の変動はバイアルにアクリル樹脂製のキャップをかぶせることによって、サイクルモードでもリピートモードにおける B.G. 計数値と同程度の値を得ることが出来た。

文 献

- 1) M. Matsuyama, H. Miyake, K. Ashida, K. Ichimura and K. Watanabe, Ann. Rep. Tritium Research Center, Toyama Univ., **2**,63(1982)
- 2) H.Satake and M. Matsuyama, *ibid.*, **3**(1983)
- 3) 池辺幸正, 飯田孝夫, 下 道国, 関 昭男, 中田 啓, 吉田 守, 保健物理, **17**, 157(1982)
- 4) H. Miyake, M. Matsuyama, K. Ashide and K. Watanabe, J. Vac. Sci. Technol., **A 1**,1447(1983)
- 5) V.O.Altomose, J. Appl. Phys., **32**, 1309(1961)
- 6) M.Takiue and H. Ishikawa, Nucl. Inst. Methods, **159**, 139(1979)