

## 解説 自然環境に出現する自然放射性物質ラドンとその娘核種

室蘭工業大学工学部 望月 定

### 1. はじめに

人間の生活環境に出現する自然放射性物質ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) とその娘核種の挙動が気象要素、地質構造等に大きく支配されていることは論をまたないところであるが、大気中に存在する自然放射性物質ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) とその短寿命娘核種による呼吸器官の被曝の危険性（肺ガンの一因となっている）が指摘され、評価の必要性が国連科学委員会から指摘されてからかなりの年月が経過している。自然大気中のラドンとその娘核種の挙動に関する研究は、ラドンが発見されて以来継続され、膨大なデータが蓄積されている。しかし、人間の主たる生活環境である建屋内の空気中に存在するラドンとその娘核種に関する研究は前者に比較し極めて少ないので現状である。

今まで、地下室・建屋内空気中におけるラドンとその娘核種の研究はアメリカ、カナダ、北欧諸国等の寒冷地帯、石造りの多い地帯を中心に進展してきたが、我が国では、温帯、多湿気候に属する建屋構造に起因して、一般に換気の良いことから、建屋内空気中のラドン濃度は低いと考えられ、これを対象とした研究は極めて少ない。

地下街・地下室・建屋内空気中に存在するラドンとその娘核種の源は主としてそれが接する地面、壁や床などから発生するラドンであり、蓄積効果により一般にその濃度は屋外に比較し高く、4～5倍、時には数10倍にも達するといわれている。しかし、アメリカにおける最近の例として、昭和60年5月末、ペンシルバニア州の民家の地下室で許容濃度の800倍にも達することが見出され、州内21000世帯がラドンの潜在的汚染の危険にさらされている事態となり、この面での研究が緊急を要する課題となっている例もある。

我が国ではまだ研究が十分行われていない事もあって、上記のような報告例はないが、最近の大都市の地下街の普及、地下室の利用の増大、又建築資材の進歩から、一般家屋でも密閉度が良くなつたこと（特に寒冷地の建屋で顕著）等でこれらの環境に出現するラドンは予想以上に高まり、上記のような事態の発生も十分予測される。それ故、特にその重要性が増している体内被曝線量評価および保健衛生の視点から、1日の約80%が建屋内生活であると見積られている（1982年、国連科学委員会）<sup>1)</sup> 建屋内空気中のラドンとその娘核種及びエアロゾルの動態に関する研究の進展が望まれるところであり、昭和60年10月17日、日本の原子力安全委員会は「環境放射能安全研究計画」を決め、その中でラドン、トロンなどによる自然放射線被曝にかかわるこれらの分布と体内蓄積・排出の研究の重要性を指摘している。このことからもわかるように、この種の研究の重要性が我が国ではやっと認識されてきたところである。そこで、地表面近くの地中、地下街、地下室、建屋内空気中に出現・蓄積するラドンとその娘核種の動態把握に関する基礎的知見と理解をもつことが肝要であると考え、これに資することを目的として、ラドンとその娘核種の基本

的性質、最近の研究成果の一端を紹介し、参考に供したい。

## 2. ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ )とその娘核種の特性と挙動

### 2-1 ラドンの性質とその挙動

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ )：融点 $-71^\circ\text{C}$ 、沸点 $-62^\circ\text{C}$ 、密度 $9.73\text{ g/l}$  ( $0^\circ\text{C}, 1\text{ atm.}$ )、臨界温度 $104.5^\circ\text{C}$ 、臨界圧 $62.4\text{ atm.}$ 、水への溶解度 $0.51\text{ cm}^3/\text{cm}^3$  ( $0^\circ\text{C}, 1\text{ atm.}$ )、有機溶媒にかなりよく溶ける。

ラドン：天然に存在する原子番号86、希ガス元素の1つ。質量数222(半減期3.825日、 $\alpha$ 崩壊、 $\alpha$ 線エネルギー5.48 MeV)のウラン系列、質量数220(半減期54.5秒、 $\alpha$ 崩壊、 $\alpha$ 線エネルギー6.28 MeV)のトリウム系列、質量数219(半減期3.92秒、 $\alpha$ 崩壊)のアクチニウム系列、の3種がある。一般にはラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ )の崩壊で生成するラドン ( $^{222}\text{Rn}$ )だけをさしてラドンという場合が多い。

トリウム系列のものはトロン、アクチニウム系列のものはアクチノンといわれている。この3種のうち自然大気中では、ラドン、トロンが主要であるが、本稿ではラドン ( $^{222}\text{Rn}$ )にしほって説明する。又、これらの放射性壊変系は地球上のどこにでもみられ、人類とのかかわりも深いので、ラドンの元祖であるウランと親核種であるラジウムについて少しふれておく。ラドンとその娘核種が属するウラン系の壊変系列を図1に示した。<sup>2)</sup>

ウラン：天然に存在するウランの同位元素は質量数234、235、238の3種である。ラドンの属するウラン系列の元祖である  $^{238}\text{U}$  の存在比は99.28%であり、又原子力として利用することから重要な核種である。 $^{235}\text{U}$  の存在比は0.71%で、これはアクチニウム系列の元祖である。ウランは地殻を形成するあらゆる岩石や土壤、海水に含まれている。したがって、極微量ながら大多数の工業製品はもとより、土壤や肥料中に含まれているから食物や人体中にもウランは存在することになる。表1に各種岩石中に含まれるウラン、ラジウムの平均濃度を示した。<sup>3)</sup>

ラジウム：表1に示されているようにウラン ( $^{238}\text{U}$ )の子孫であるラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ )も又あらゆる岩

U 92	$^{238}\text{U}, \text{U}_1$ (ウランI) $4.51 \times 10^9\text{ y}$	$^{234}\text{U}, \text{U}_2$ (ウランII) $2.48 \times 10^5\text{ y}$				
Pa 91	$\alpha: 4.18$ $\gamma: 0.05$ $A: 15$ $T: 10$ $\gamma: 0.03-0.10$	$^{234}\text{Pa}, \text{U}_3$ $\alpha: 2.31$ $\gamma: 11 (0.15\%)$ $^{234}\text{Pa}, \text{U}_4$ $\alpha: 5.55, -$ $\gamma: 7.06, -$ $t: 6.7\text{ s}$	$\alpha: 4.783$ $\gamma: 6.701$			
Th 90	$^{232}\text{Th}, \text{U}_5$ (ウランX) $24.1\text{ d}$	$^{230}\text{Th}, \text{U}_6$ (トリウム) $8.0 \times 10^4\text{ y}$				
Ac 89			$\alpha: 4.685,$ $\beta: 4.619$ $t: 7.1$			
Ra 88		$^{226}\text{Ra}, \text{Ra}$ (ラジウム) $1622\text{ y}$				
Fr 87		$\alpha: 4.777$ $t: 11$				
Rn 86		$^{222}\text{Rn}, \text{Rn}$ (ラドン) $3.825\text{ d}$				
At 85		$\alpha: 5.484$ $t: \sim 2\text{ s}$	$^{210}\text{At}$			
Po 84		$^{218}\text{Po}, \text{RaA}$ (ラジウムA) $3.05\text{ m}$	$\alpha: 0.029\%$ $t: 6.83$	$^{214}\text{Po}, \text{RaC}'$ (ラジウムC) $1.64 \times 10^{-4}\text{ s}$		$^{210}\text{Po}, \text{RaF}$ (ラジウムF) $126.4\text{ d}$
Bi 83		$\alpha: 9.98\%$ $t: 5.958$	$^{214}\text{Bi}, \text{RaC}$ (ラジウムC) $19.7\text{ m}$	$\alpha: 0.999\%$ $t: 1.65, 3.17, 7.68$	$^{210}\text{Bi}, \text{RaE}$ (ラジウムE) $5.00\text{ d}$	$\alpha: 1.17$ $t: 5.225$ (γ)
Pb 82		$^{214}\text{Pb}, \text{RaB}$ (ラジウムB) $26.8\text{ m}$	$\alpha: 59, 65, 7.253$ $t: 10.04\%$ $1.351$	$^{210}\text{Pb}, \text{RaD}$ (ラジウムD) $22\text{ y}$	$\alpha: 0.223$ $t: 5 \times 10^{-4}$ (γ)	$^{206}\text{Pb}, \text{RaG}$ (ラジウムG) $16.2\text{ d}$
Tl 81			$^{207}\text{Tl}, \text{RaC}'$ (ラジウムC') $1.32\text{ m}$	$\alpha: 8, 1.8$	$^{206}\text{Tl}, \text{RaE}$ (ラジウムE) $4.19\text{ m}$	$\beta: 1.51$

ウラン系列—(4n+2)系列—

図1  $^{238}\text{U}$ の壊変系列<sup>2)</sup>

石や土壤に含まれているが、岩石の種類により相当異っている。海水中にももちろん含まれ、海洋毎にかなりの濃度変化はあるものの同一海洋中ではほぼ均一に分布しているのに対して、河川水や井戸水中に含まれるラジウムは場所によって濃度はそれぞれ大きく異なっている。人体中にもウランと同様に食物を通して取り込まれている。

表1 各種岩石中のラジウム、ウラン、カリウムの平均濃度<sup>3)</sup>

岩石の種類	<sup>226</sup> Ra (pCi/g)	<sup>232</sup> U (pCi/g)	<sup>230</sup> Th (pCi/g)	<sup>40</sup> K (pCi/g)
火成岩	1.3	1.3	1.3	22
堆積砂岩	0.71	0.4	0.65	8.8
頁岩	1.08	0.4	1.1	22
石灰岩	0.42	0.4	0.14	2.2

\* UNSCEAR (1988)による

地殻中で生成されたラドンの一部は地中空気中に漏出し地下水中に溶け込んだり、又地表面から大気中に散逸し、拡散していく。この散逸の機構は地域毎の土壤および気象状態により大きく影響され、地域毎に日毎に異なった変動を示すが、地質学的あるいは気象学的因素との相互関係はまだ完全には解明されていない。しかし、一般的には散逸率は大気圧の低い時に増加し、地面が湿っている時には土壤の気孔が狭まり、かつラドンの溶解度が大きいため減少する。さらに北国のように雪によって大地が覆われたり、地表面が凍結するようなところでは減少する。

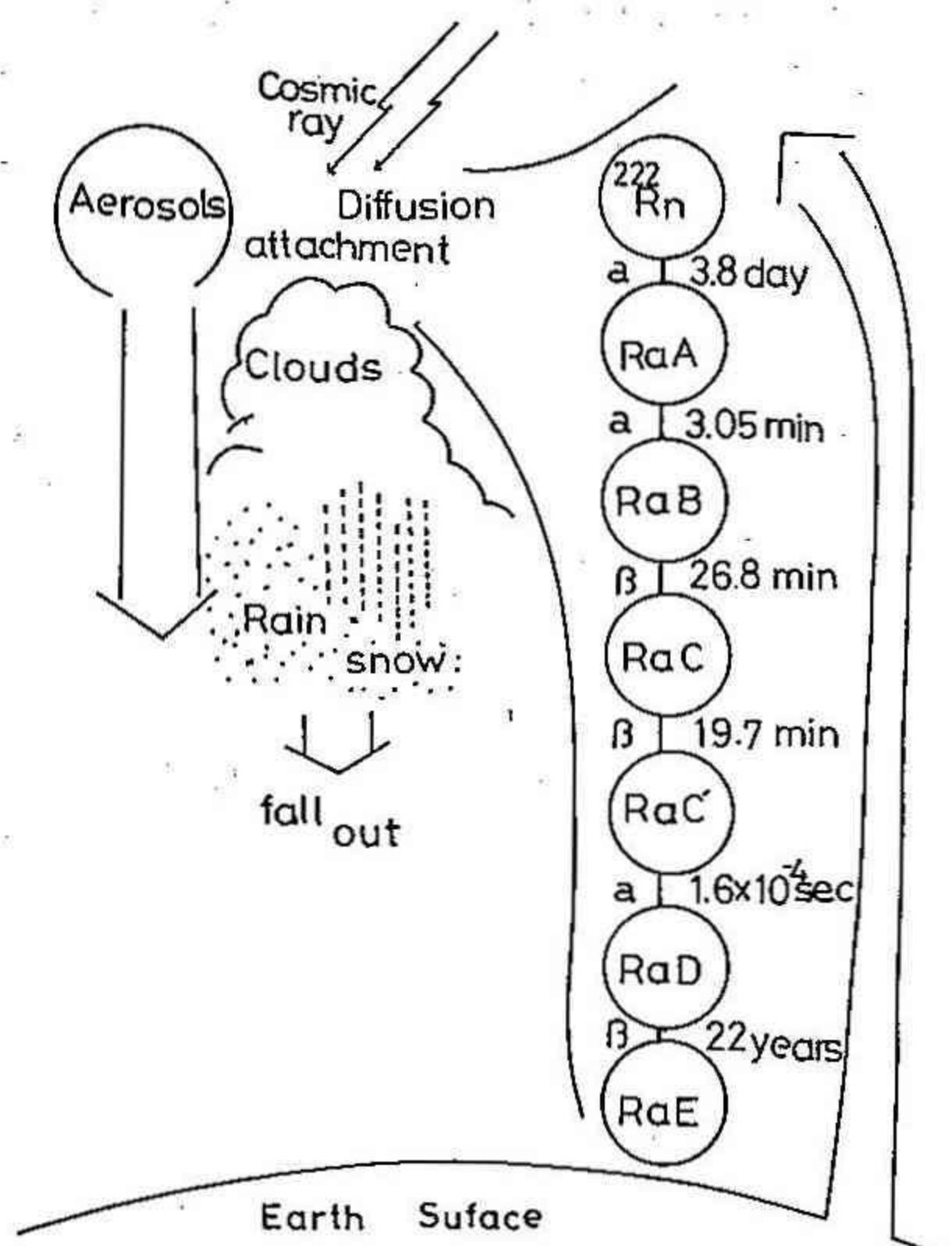


図2 ラドン娘核種循環モデル

図1に示されているように、ラジウム(<sup>226</sup>Ra)が壊変すると半減期3.82日の不活性希ガスであるラドン(<sup>222</sup>Rn)となる。前述のようにラドンの親核種であるラジウムが地殻中のあらゆるところに存在していることから、ラドンも地殻中のあらゆるところで生成されている。ラドンは気体であり、半減期が3.82日であることから、

地表面より散逸したラドンは大気中に拡散していくのであるが、大気中のラドン濃度は一般に大きく変動し、かつ、海上や堆積層の上よりは火成岩地帯の方が濃度が高い。その要因の第1は発生源である地表面からの散逸率が上述のように土壤および気象学的因素の影響を受け変動しているためであり、第2には気団に伴って輸送されることからその地域を通過する気団の経歷によって大きな影響を受けるからである。静穏日における日変化には周期性がみられ、最高濃度は早朝に現われ午后遅く最低となる変動傾向を示す。この日変化は多くの要因により生じるものであり、地面からの散逸は地面の温度が上昇し空気の動きが活発化する午后に増加するが、これは大気が安定している早朝にはあまり寄与しないためである。又季節変化も地域によっては顕著にみられ、この場合には、土壤中の水分量の変動、凍結、積雪、気団の差異が重要な要因となって生じるものである。

これらを裏付ける資料として、発散、日

変化、季節変化、地上から洋上へ拡散する様子を示す測定例を図2、3、4、5<sup>4)</sup>、6<sup>5)</sup>、7<sup>6)</sup>、8<sup>7)</sup>に示した。

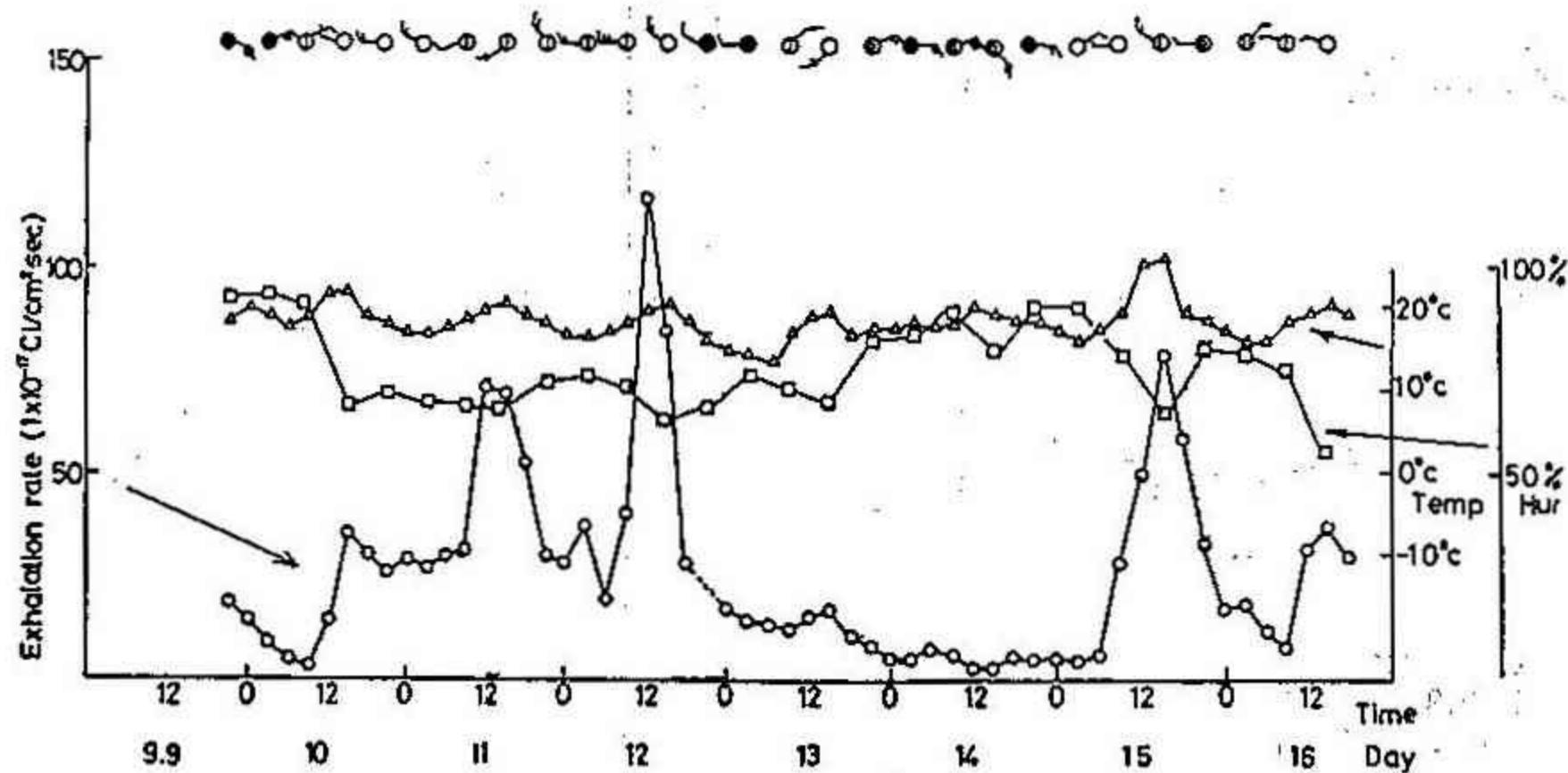


図3 室蘭工大の露場における $^{222}\text{Rn}$ の発散率の変化(1986年9月)

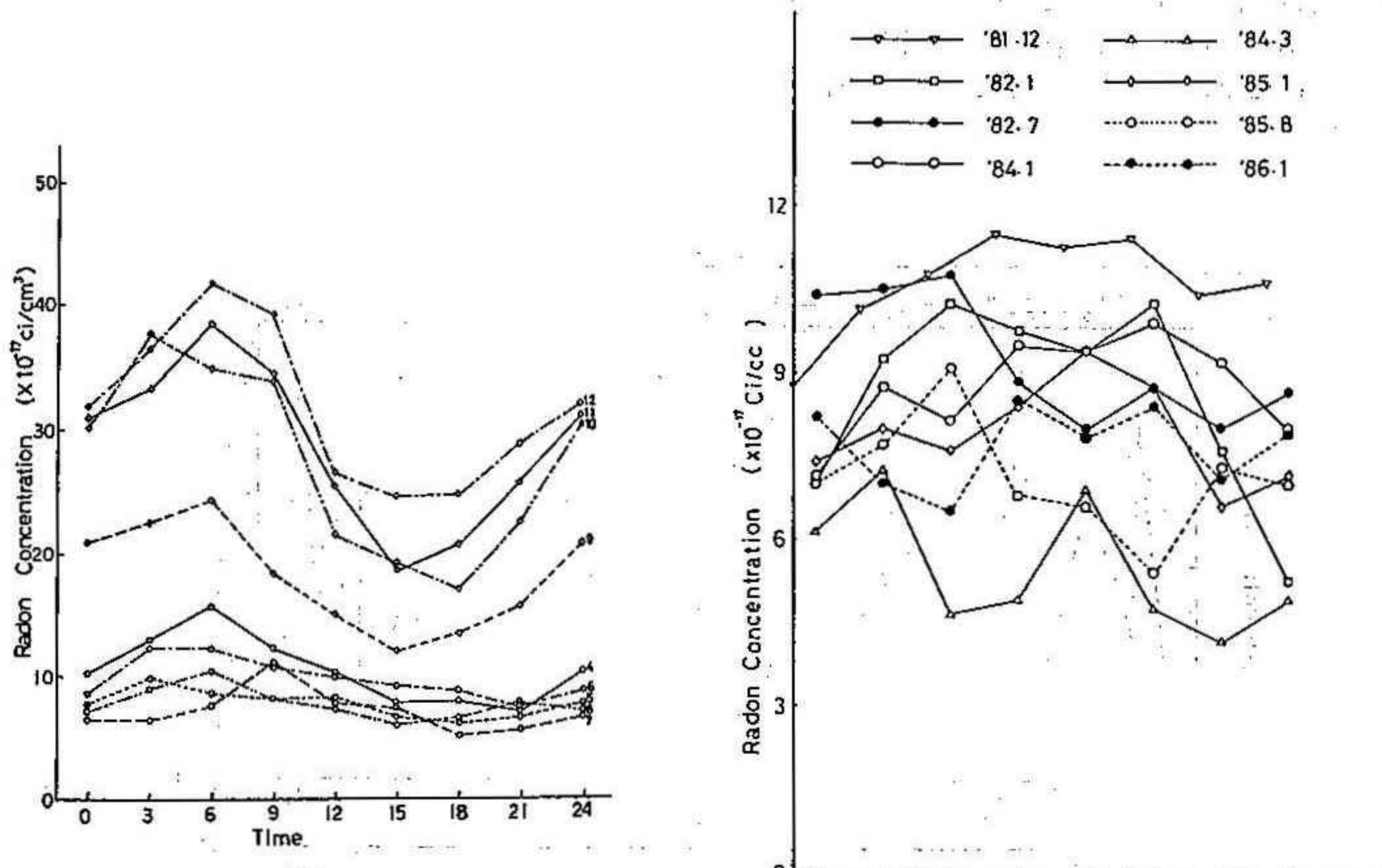


図4 東京の都心部(神楽坂)における $^{222}\text{Rn}$ の日変化と月別変動  
(図中数字は各月を示す)

図5 北海道ニセコにおける $^{222}\text{Rn}$ の日変化と季節変動(夏及び冬)

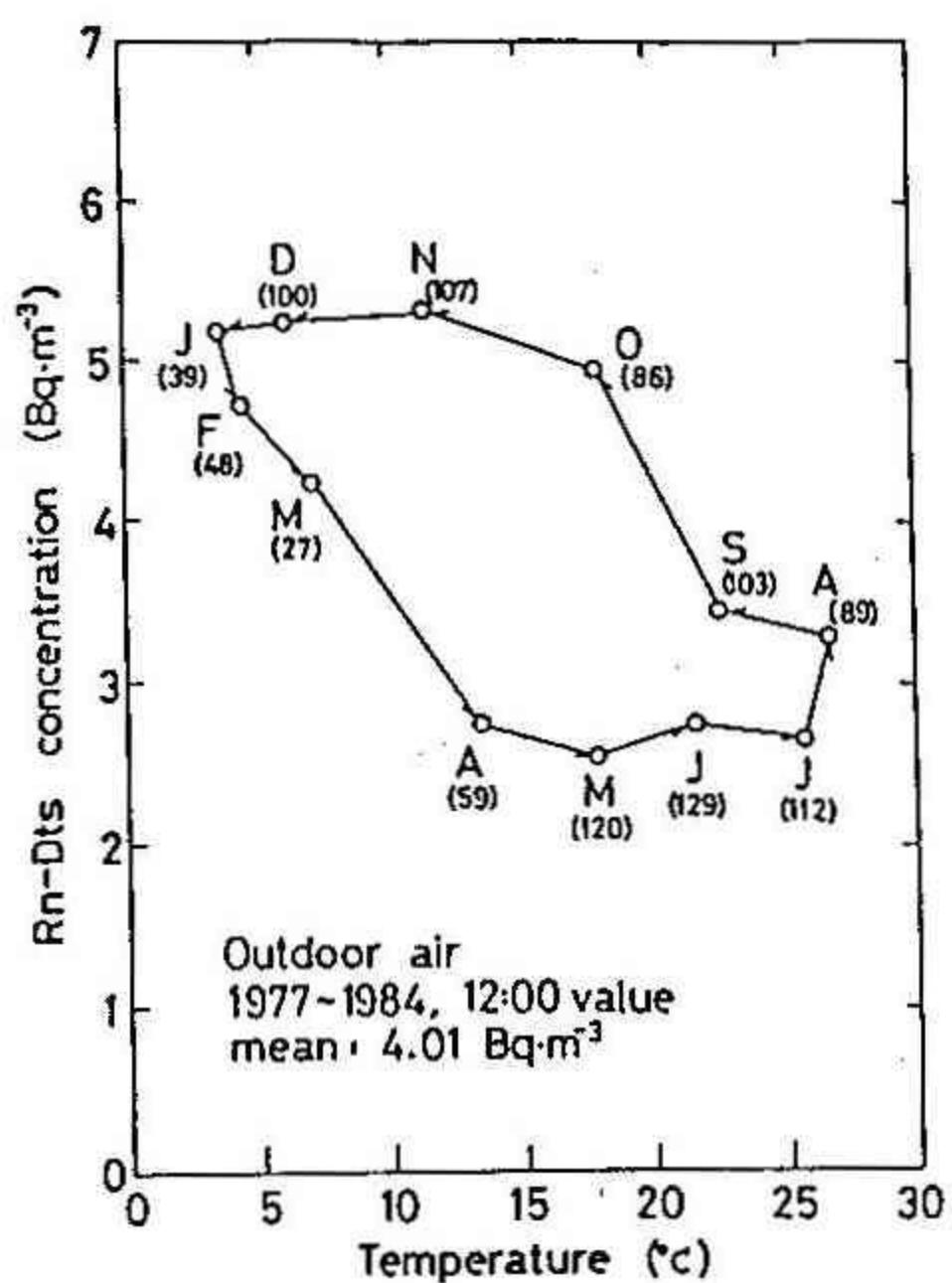


図6 名古屋におけるラドン娘核種の季節変動を示す radioclimograph. (図中の数字は測定数、ラドン娘核種と気温との相関図)

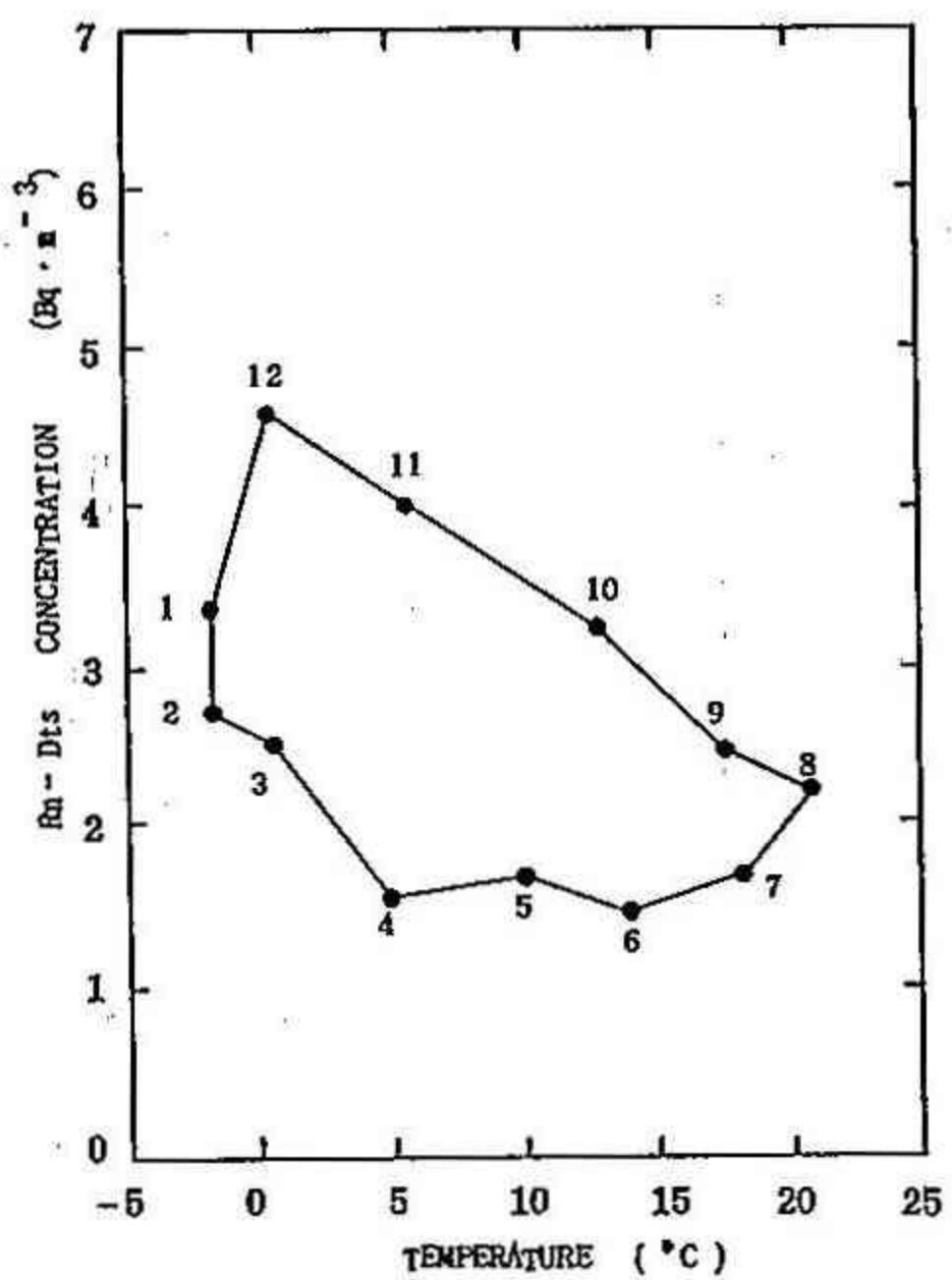


図7 室蘭におけるラドン娘核種の季節変動を示す radioclimograph (図中の数字は各月を示す)

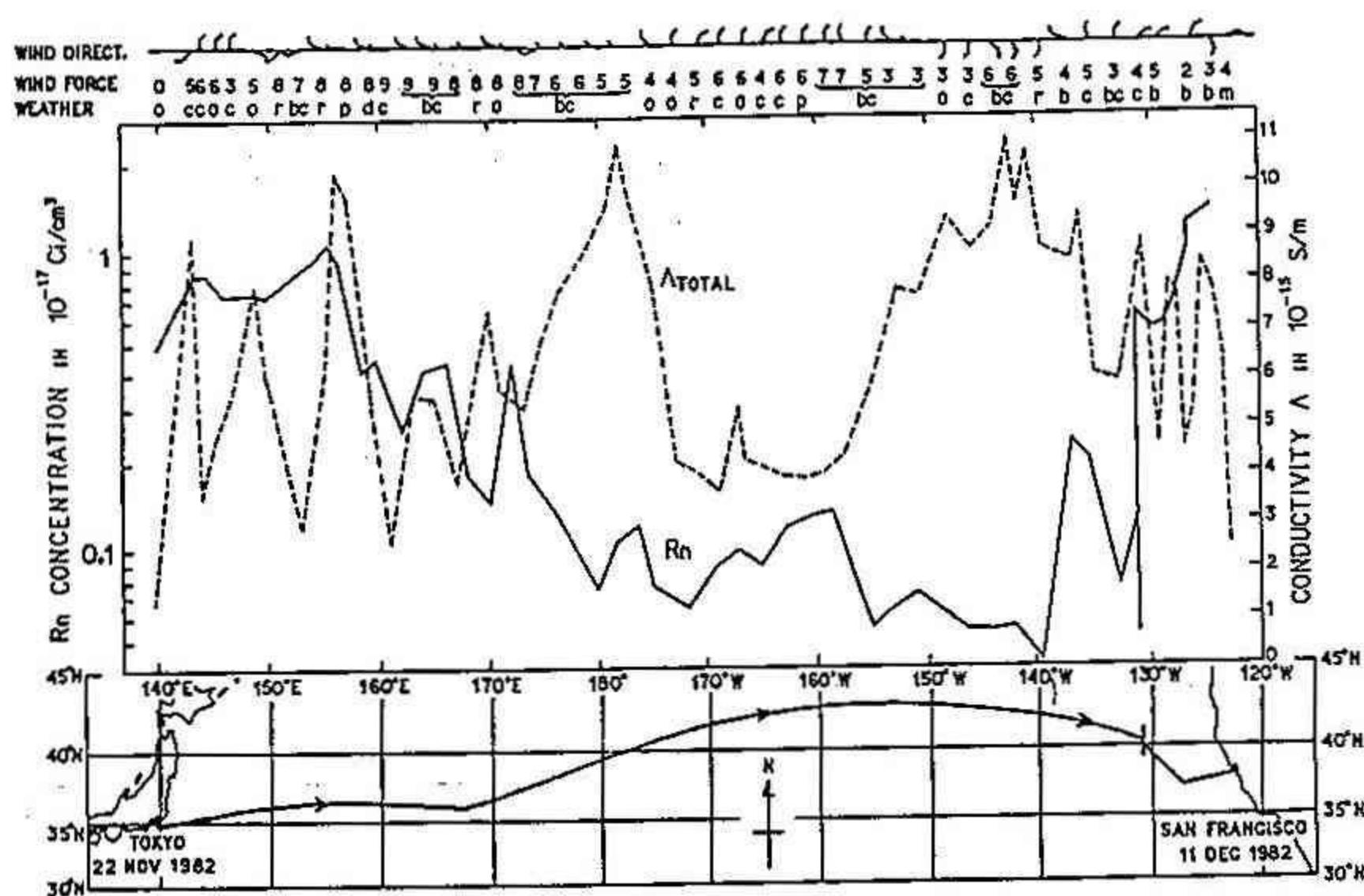


図8 1982年11月末から12月初旬における北太平洋上の $^{222}\text{Rn}$ の濃度変化(船による洋上観測)<sup>7)</sup>

以上が自然大気中での概要であるが、一方、建屋内空气中にも上述と同じ理由で、床下地面、床、壁、天井など建築資材から散逸したラドンが存在することになる。

もちろん屋内空气中でも著しい濃度変化を生じる。しかし、自然大気中と異なるのはその主たる要因の第一が建屋構造に起因する屋内空気の移動によるものであり、第二に人間活動に伴う入室、ドア、窓などの開閉(換気)によるものであることである。強制的な換気をしない限り、屋内空气中にはラドンが蓄積され、その濃度はごく普通の一般建屋で屋外空气中の数倍、密閉度の良い建屋では数10倍、時には100倍に達することもある。

これに関する資料として表一<sup>8)</sup>、図9<sup>9)</sup>を示した。

## 2-2 ラドン娘核種の性質とその挙動

ラドン( $^{222}\text{Rn}$ )は図1の系列に示されているように壊変し、RaA( $^{218}\text{Po}$ )、RaB( $^{214}\text{Pb}$ )、RaC( $^{214}\text{Bi}$ )、RaC'( $^{214}\text{Po}$ )、RaD( $^{210}\text{Pb}$ )………のような、それぞれ重金属元素である放射性核種を生成する。系列図に示されているように、半減期、壊変型および放射線エネルギーは、RaA(3.05分、 $\alpha$ 、5.998 MeV)、RaB(26.8分、 $\beta^-$ 、0.59、0.65 MeV)、RaC(19.

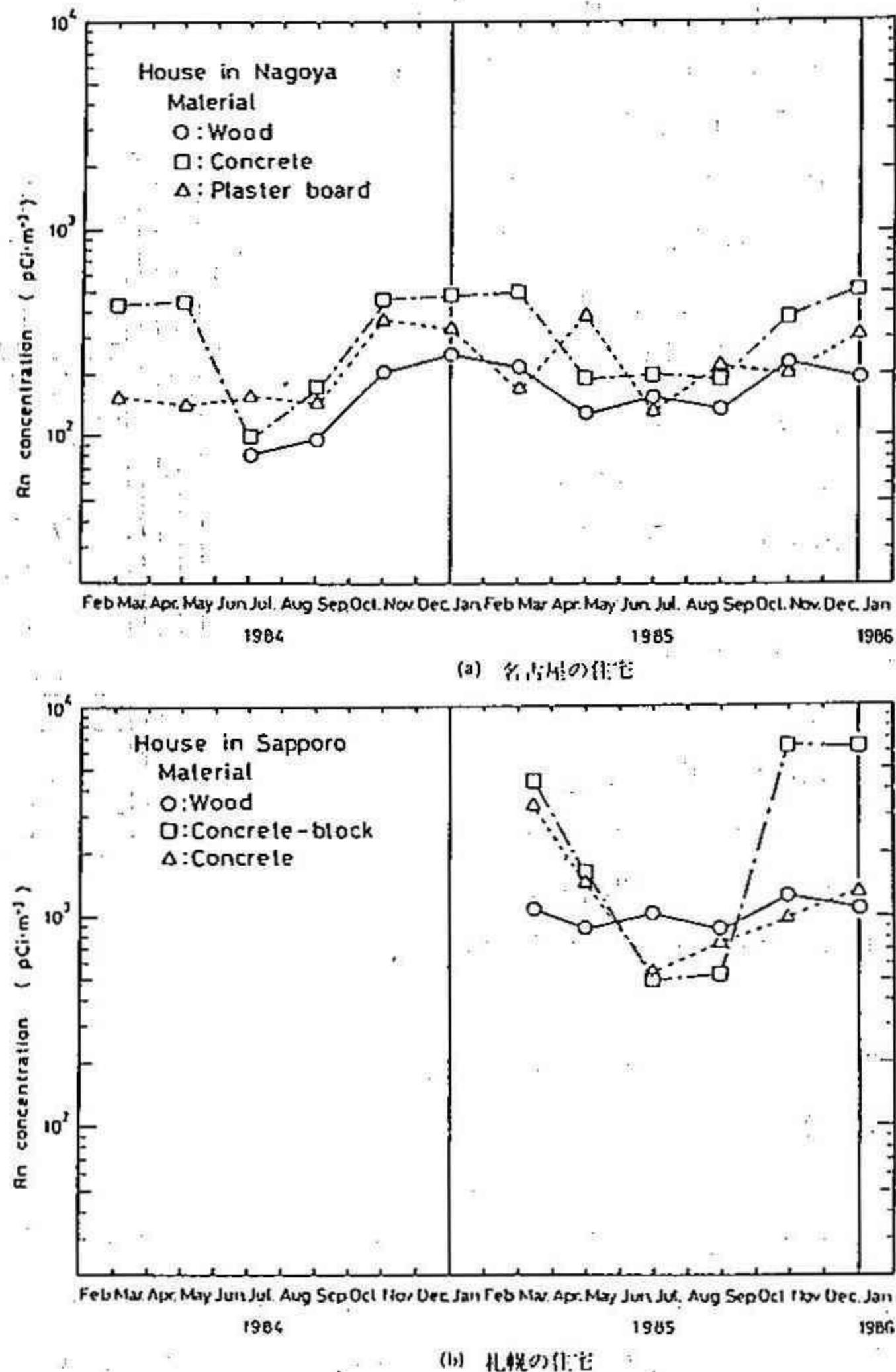


図9 一般家屋内のラドン濃度の例<sup>9)</sup>

表2-屋内ラドン濃度の例 [Bq/m³]<sup>8)</sup>

カナダ	平均的な値	備考(建材など)
ノルウェー	5.2~51 10~96	特に高められていると考えられる地域
西・ドイツ	48 74 37 25 14 12 8.3 20	木材 コンクリート レンガ コンクリート基盤混合建材 砂岩 レンガ 気泡コンクリート 軽量建材
ポーランド (集合住宅)	2.2~28 2.1~9.4 2.4~19 2.3~17 4.4~52	種々のコンクリート 木材 石灰岩 粘土 スラグとセメント
スウェーデン (集合住宅)	170(140) 180(160)	コンクリート(換気装置ON)
(戸建)	56 200 270 410	コンクリート、砂岩、気泡コンクリート 木材、レンガ 木材、気泡コンクリート(地盤) 気泡コンクリート 木材

7分、 $\beta^-$ 、1.65、3.17 MeV)、RaC' ( $1.64 \times 10^{-4}$ 秒、 $\alpha$ 、7.68 MeV)、RaD(22年、 $\beta^-$ 、0.023 MeV)である。これらのうちRaA、RaB、RaC、RaC'を短寿命核種、RaD以下を長寿命核種といっている。又いづれも常温では単体の固体原子であるため、空気中に拡散したラドンから逐次生成された放射性核種はエアロゾルに付着し、放射性エアロゾルを形成する。それ故空気中に浮遊するエアロゾルの一部が放射能をもつことになる。

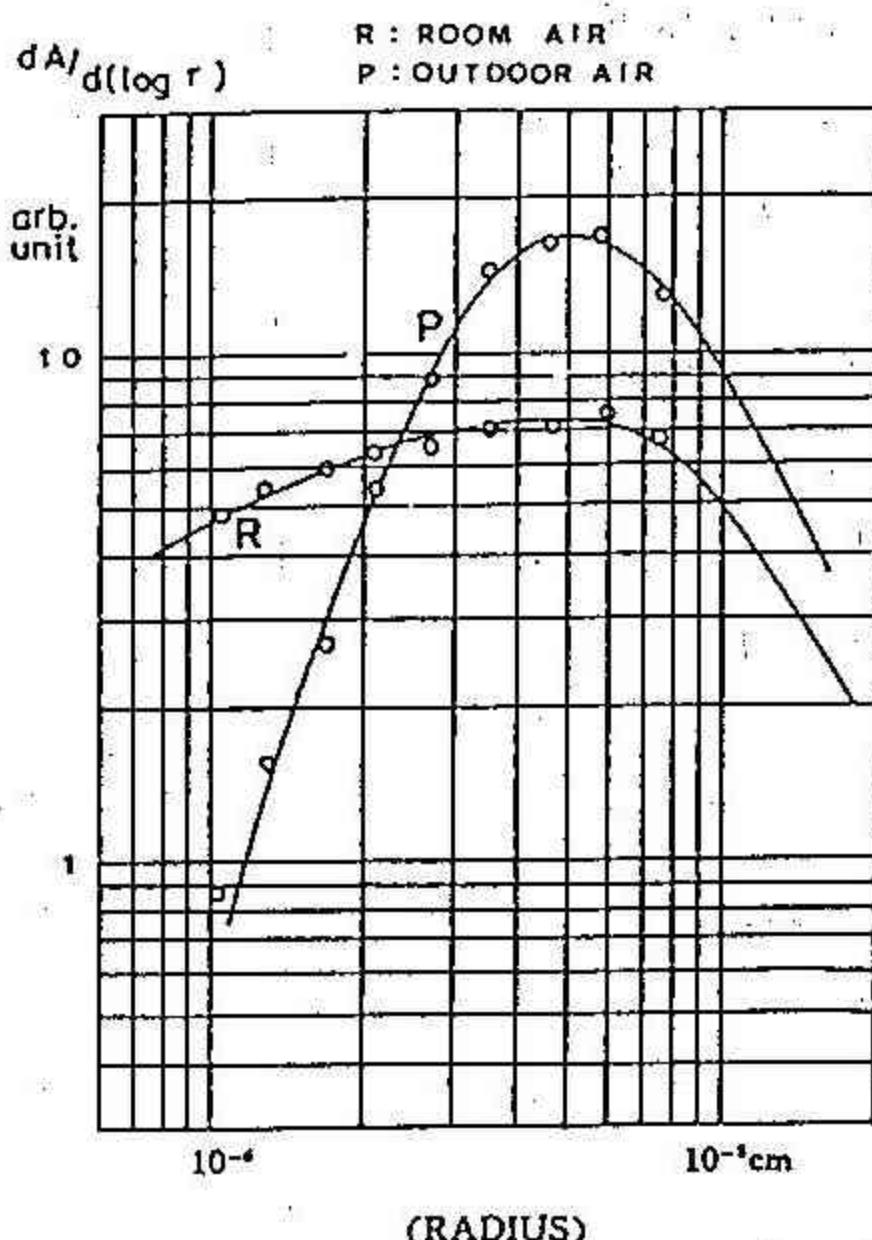
放射性エアロゾルの粒径分布測定例を図10<sup>10)</sup>に示した。

RaAからRaC'の間でもっとも半減期の長い核種はRaBの26.8分であり、約2時間でRnとRaBの間で放射平衡に達する。この放射平衡という現象は、空气中で生成されたラドン娘核種の特性、各娘核種間の関係、親核であるラドンとの関係などを理解するうえで重要な概念である。

放射能の増加、減衰について理解のために、その一例として、空気中の放射性エアロゾルをフィルターで捕集した場合のフィルター上の放射能の変化の概略を紹介する。図11がその例で<sup>3)</sup>、 $5 \times 10^{-14}$  Ci/lのラドンと放射平衡になっている娘核種を含む通常の空気を試料としたものである。図中Aは捕集中で時間の経過とともにフィルター上の放射能は徐々に増加し、この増加傾向は約2時間続くが、以後は捕集される量と壊滅していく量がつり合うようになり一定の値になる。この捕集平衡状態は空気の流量やラドンの濃度に変化がなく、且つエアロゾル濃度に極端な変化がなければ変わらない。捕集を止めるとフィルター上の放射能は曲線Bに示されているように実効半減期約40分で減衰していく。おおまかにいえば、空気中のラドン娘核種をフィルターで集める場合、2時間以上集めてもそれ以後フィルター上の放射能はあまり増加することなく(濃度を知るために2時間以上の時間を費して集めてもあまり意味がない)、捕集を止めてから2時間たつと止めた時点にフィルター上にあった放射能は1/8になってしまふということである。

フィルタ上に集めた放射性エアロゾルの生成、減衰の実測記録例を図-12に示した。

娘核種のうち重要なのはRaAで、フリー成分、帶電、平衡度等の諸特性についての詳述は割愛するが、フリーRaA(エアロゾルに付着していないRaA)およびRaAが付着した放射性エアロゾルは呼吸に伴う保健衛生の面から特に重要である。親核であるラドンと共存している娘核種(フリー成分)およびそれらから形成された放射性エアロゾルを含む空気を吸入すると、希ガスであるラドンは極く一部は体液に溶



The size distributions obtained in outdoor air and in room air.

図10 屋外および屋内空気中で得られた放射性エアロゾルの粒径分布<sup>10)</sup>

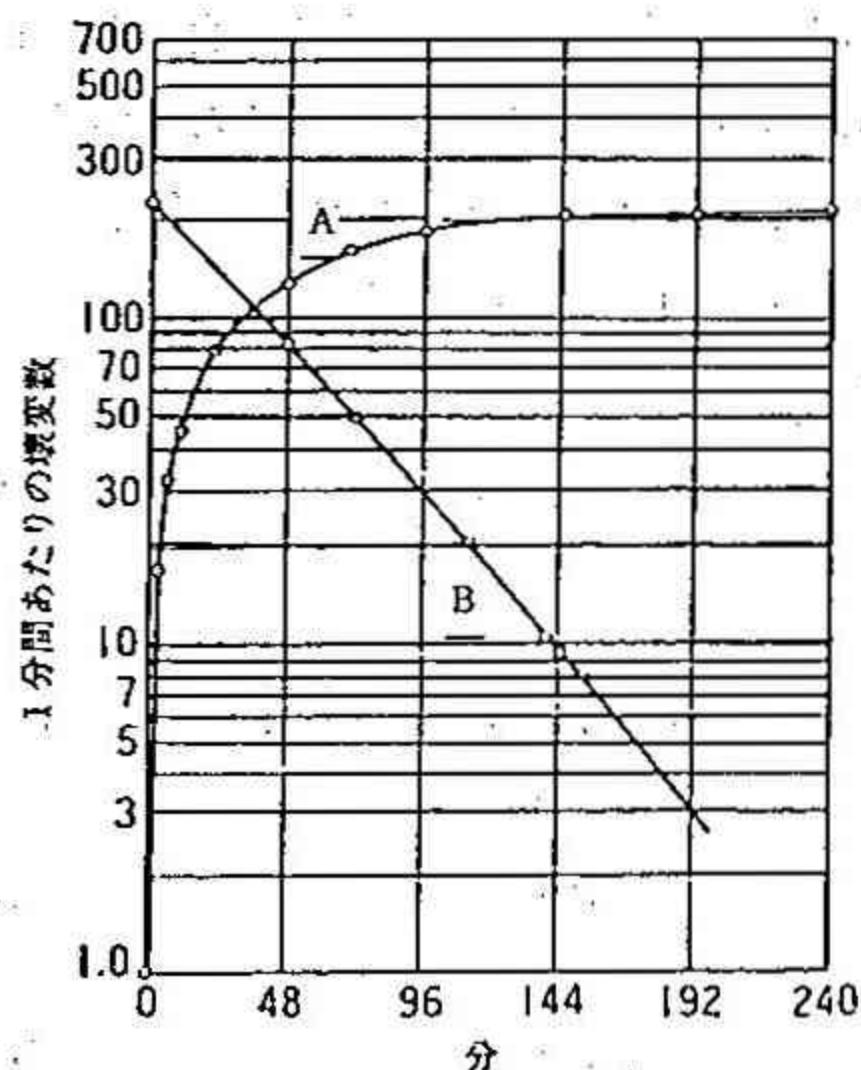
け込むが大部分が吐き出されるのに対し、フリー成分はほとんど全部、放射性エアロゾルの一部は肺胞をはじめ呼吸器官に沈着し、呼吸のたび毎に蓄積されていく。したがって、ラドンそのものよりは、フリー成分、放射性エアロゾルの方が危険度は大きくなる。被曝線量についてみると、ラドン娘核種はラドンの約20倍も多く寄与するとの報告もある。<sup>11)</sup>

先にも述べたように、建屋内空気中のラドン濃度は自然大気中の濃度に比較し数倍、時には二桁以上も高くなり、且つ、娘核種を運搬するエアロゾル濃度は室内環境により種々多様に変化し複雑な挙動を示す。一日のうち大部分を過す室内環境の保全、保健衛生の面からも屋内空气中に出現・蓄積するラドンとその娘核種の挙動に関する情報を得ることはまず第1に肝要なことである。

ここで、この分野でよく用いられる単位について簡単に述べておく。

壊変率：単位時間（秒又は分）当たりの壊変

数をいい dps (disintegration per second)、又は、dpm (di-



A :  $^{210}\text{Pb}$ は含まないがそれまでの娘核種が放射平衡になっているラドンを  $5 \times 10^{-4} \text{ Ci/l}$  含む空気を吸引した汎紙の  $\alpha$  の放射能の増加  
B : 吸引を止めたのちの  $\alpha$  の放射能の減衰

図11 フィルター上に捕集した放射性エアロゾルの放射能変化<sup>3)</sup>

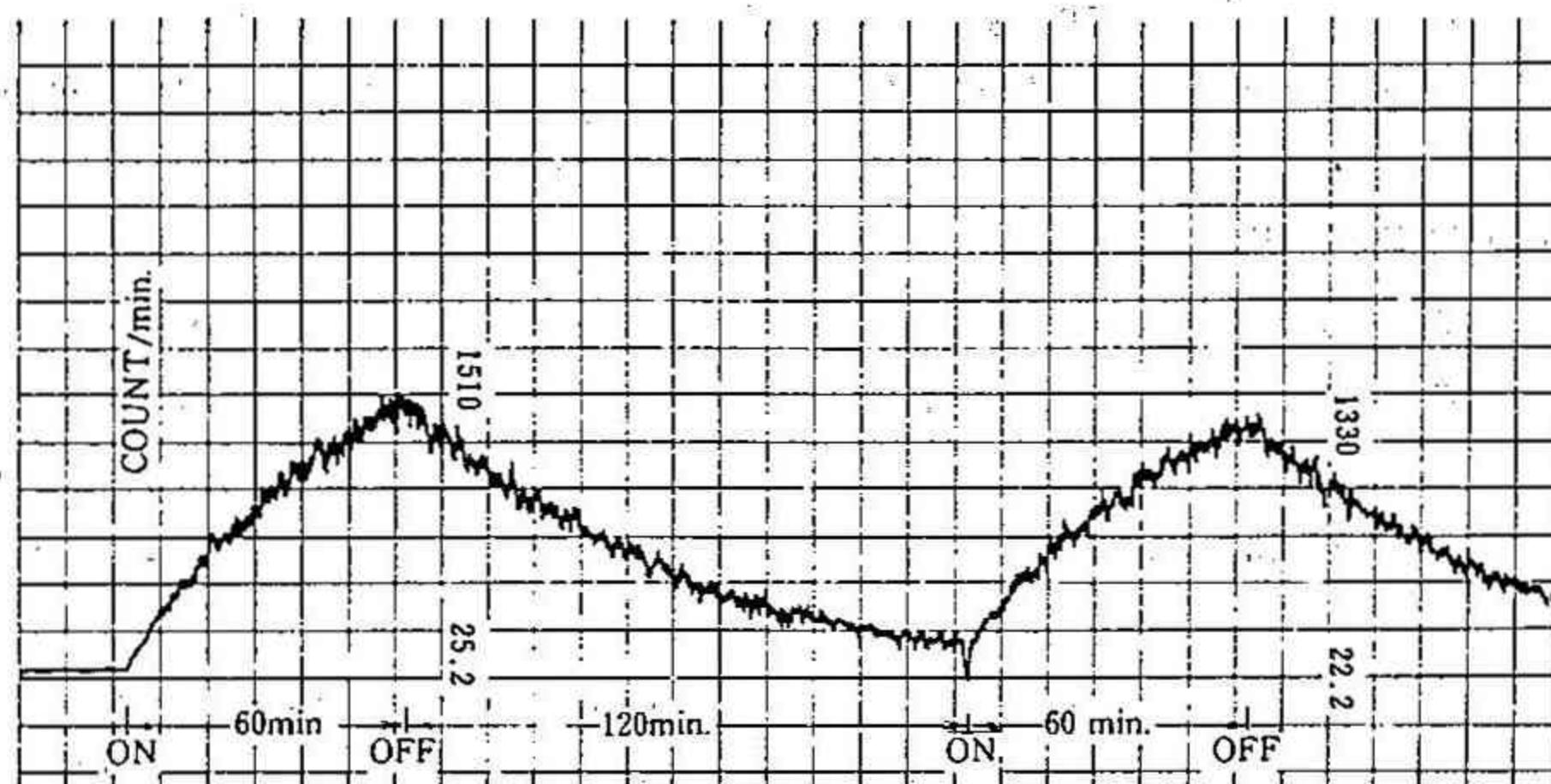


図12 GM管とレートメータによる捕集中および捕集後の生成および壊変曲線

sintegration per minute)、単位体積当たりでは  $\text{dps}/\text{m}^3$ 、又は  $\text{dpm}/\text{m}^3$

放射能：1秒間当たりの壊変数が  $3.7 \times 10^{10}$  個であるような放射性核種の量で、キュリー：Ci、 $1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ dps}$  最近ではベクレル：Bq が用いられており、Ciとの換算は、 $1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$

放射性物質濃度：空気の単位体積当たりに含有される放射性物質の量をいい、 $\text{Ci}/\text{m}^3$ 、 $\text{Bq}/\text{m}^3$

散逸率：単位面積、単位時間当たり発散する放射性物質の量をいい、 $\text{Ci}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}$ 、 $\text{Bq}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}$

半減期：放射性物質の寿命(T)はその物質固有の壊変率(λ)と  $T \cdot \lambda = 1$  なる関係があり、放射性半減期は  $0.693 T$  で表わされる。

なお、単位については、SI 単位系が用いられるようになってきているが、C.G.S. 単位系もまだよく用いられており、文献により混合して用いられているので、特に注意されたい。

### 参考文献

- 1) National Council on Radiation and Measurements (NCRP) Report No. 77, Exposure from the uranium series with emphasis on radon and its daughters. (1984), 7-8, 19-22, 25-43.
- 2) 木村健二郎編：放射線データブック，地図書館，(1958)，72.
- 3) M.アイゼンバット著、阪上正信監訳：環境放射能第2版，(1979)，132-143.
- 4) Sato, Y. et al.: Rn-222 and its Daughters in the Atmosphere over the city of Muroran and Niseko, Res. Letters. on Atmosph. Elect., (1985), 5(2), 73-79.
- 5) 下道国：肺線量評価のための空気中のラドン娘核種の研究、名古屋大学学位論文，(1986)，92-95.
- 6) 望月 定他：室蘭地域の大気中に出現するRn-222 とその娘核一名古屋地域で観測された変動パターンとの比較 - Res. Letters. on Atmosph. Elect., (1986), 6(2), 77-81.
- 7) Mochizuki, S. et al. : Rn-222 and Atmospheric Electric Conductivity in the Atmosphere over the Pacific Ocean of the Northern Hemisphere, Res. Letters on Atmosph. Elect., (1985), 5(2), 81-87.
- 8) United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR) : Ionizing radiation : Source and biological effects, United Nation (1982), 85.
- 邦訳、放射線医学総合研究所：放射線とその人間への影響、テクノプロジェクト，(1984).
- 9) 望月 定, 下道国：屋内ラドンの挙動特性, 空気清浄, (1987), 25(1)-, 26.
- 10) Nakatani, S. : Improved apparatus for obtaining ionic mobility distribution of radioactive aerosols, J. Meteor. Soc. Japan, (1972), 50(3) 151-158.
- 11) Alshuler, B. et al. : Estimation of the lung tissue dose from the inhalation of radon and daughters, Health Phys. (1964), 10, 1137-1161.