

ラドン放射能標準に関する調査研究

古川理央*

(平成 28 年 1 月 4 日受理)

A survey on primary standards of activity of Rn-222

Rio FURUKAWA

Abstract

Rn-222 is a radioactive nuclide in equilibrium with Ra-226 in the U-238 radioactive decay chain. It has been concerned that exposure to alpha particle continuously emitted from decay of Rn-222 causes lung cancer. Therefore the management of activity of Rn-222 is demanded.

NMIJ has a plan to establish a primary standard of Rn-222. This paper summarized the health effect caused by Rn-222, the current situation of regulation about its activity, measurement devices which can be used for standardization, measurement techniques of the primary standards which are adopted by several NMIs, and typical examples of traceability chain.

1. 緒言

一般公衆が自然放射性物質によって日常的に被ばくする線量のうち、大きな割合を占める原因はラドン (^{222}Rn) である。ラドンは半減期 3.8235 日の α 崩壊核種である。ラドンの親核種はラジウム (^{226}Ra) であり、子孫核種は ^{218}Po (RaA), ^{214}Pb (RaB), ^{214}Bi (RaC), ^{214}Po (RaC'), ^{210}Pb (RaD), ^{210}Bi (RaE), 及び ^{210}Po (RaF) が含まれ、安定な ^{206}Pb に至るまで全て放射性である (図 1)¹⁾。ラドンの親核種である ^{226}Ra は ^{238}U の子孫核種の一つであり、花崗岩等の岩石に含まれる。ラドンは気体であり、ラジウムが崩壊した後に岩石内の間隙等から空气中に放出される。ラジウムが地上の多数の岩石に含まれるため、ラドンは地上大気に普遍的に存在する。

ラドンの有害な生体影響として、過剰な吸引により肺がんが引き起こされる事が憂慮されている。1980 年代以降行われた疫学調査により、ラドン吸引による内部被ばくは閾値無く確率的に肺がんを引き起こし、被ばくの増加に比例して発がんのリスクが増大する事が明らかに

なった。この結果を受け、世界各国でラドン被ばくを制限する動きがある。

一方、温泉や地下坑道跡地などの温熱環境での少量の

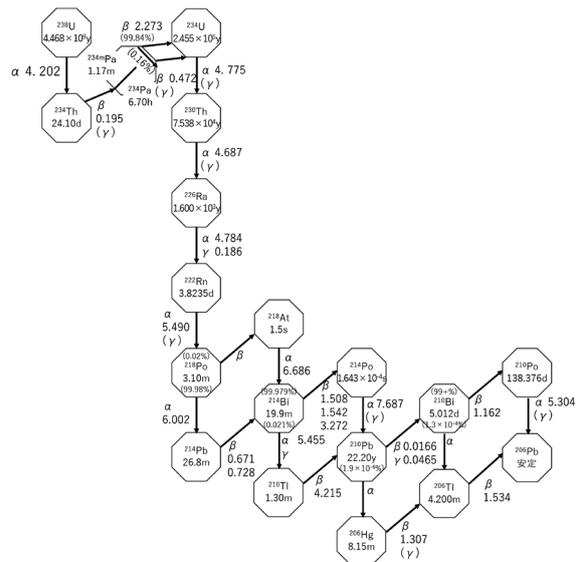


図 1 ラジウム系列¹⁾

注* 数字はエネルギー [MeV] を指す。

*分析計測標準研究部門放射能中性子標準研究グループ

ラドン被ばくにより、病状を緩和する「ラドン療法」が古くから行われてきた。そのためラドンには良好な生体影響があると認識され、一般公衆にとってはラドン温泉としてなじみ深い。ラドン療法はオーストリアのザルツブルク州に位置するバドガシュタイン、日本の岡山県の三朝温泉等の温泉地で行われ、リウマチなどの疼痛関連疾患や、気管支喘息等の活性酸素種に由来する疾患の緩和や治療に活用されている。ラドン療法の扱いには各国で違いがあり、保険が適用される国や、ハーブやマッサージと同じ代替医療の一つとして扱われる国もある²⁾。ラドン療法に関して、効果や機構の解明を目指す研究が進められている。主に小動物のラドン吸入試験によって、諸臓器の抗酸化機能が亢進する事が確認された³⁾。このようにラドンの生体への影響について、統一的な見解は得られていない。

また、ラドンを環境動態の解明に利用する研究が行われている。具体的には、地下水中のラドン濃度から地震を予知しようとする研究⁴⁾、大気塊のトレーサーとしてラドンを測定し、有害物質等の大気輸送のシミュレーションに役立てようとする研究⁵⁾等がある。また、ニュートリノを観測する際のバックグラウンド要因として、スーパーカミオカンデ内のラドン濃度が監視されている⁶⁾。

このようにラドンは様々な目的で測定されている。ラドン測定器の信頼性確保のために装置の校正は不可欠であり、国家標準の立ち上げが要望されてきた。そこで放射能の国家標準を維持している産業技術総合研究所（産総研）計量標準総合センター（National Metrology Institute of Japan: NMIJ）では、ラドンの標準の立ち上げに向けた作業を進めている。

本稿では、ラドンの健康影響と濃度規制、校正対象となりうる測定器並びにその技術、及び国家標準の中心となる絶対測定の方法、標準供給体系の典型例についてまとめた。

2. 放射線防護におけるラドンの重要性

世界保健機関（World Health Organization: WHO）は2005年から住居内のラドン濃度の健康影響、低減策等を調査する国際ラドンプロジェクトをスタートさせ、その成果として2009年に屋内ラドンハンドブック⁷⁾（日本語版⁸⁾）を発行した。それによると、ラドンと肺がんの相関についての調査の歴史は16世紀までさかのぼる。16世紀の欧州で鉱山労働者に呼吸器疾患による死亡が多い事が認識され始め、19世紀に入りその疾患が肺が

んでであると確認された。1900年にドイツのDornがラドンを発見すると、鉱山労働者の肺がんの原因としてラドンが浮上し、1950年代にラドンが肺がんの原因であることが確認された。1980年代以降ラドン濃度と肺がんリスクの相関を調べる疫学調査が実施され、欧州や北米などの鉱山労働者を対象としたコホート調査が行われた。コホート調査とは被ばくした人間のその後の追跡調査を指す。この調査では鉱山労働者が1カ月で被ばくした量をワーキングレベルマンス（Working Level Month: WLM）を用いて間接的に評価した。主要なコホート調査をまとめた米国科学アカデミー研究審議会の電離放射線の生物影響に関する委員会（Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation: BEIR）のレポート⁹⁾によると、ほぼすべての調査でWLMの増加に伴う肺がん罹患率と肺がん死亡率の上昇が確認された。

鉱山労働者の調査結果から、建物内のラドン被ばくが一般集団の肺がんの原因である可能性が示唆され、1990～2000年代にかけて一般住居環境でのラドン濃度と居住者の肺がんリスクを分析するための多くの疫学調査が行われた。それらの調査のうち、ラドン濃度と肺がん発生率の関係を分析した疫学調査では、喫煙などの交絡因子によるバイアスでラドンの影響を正しく評価できないため、交絡因子の影響を調整して分析できる症例対照研究が行われた。しかし、それぞれの研究結果では、母集団の大きさが十分でなく、有意な結果が出ていなかった。そこで複数の症例対照研究の結果を統合したプール解析の研究が欧州、北アメリカ、中国で実施された。それらの研究では、住居のラドンレベルでも濃度の増加と共に肺がん発生率が有意に増加し、肺がん相対リスク（ラドン濃度が 0 Bq m^{-3} でのリスクに対する相対値）とラドン濃度には閾値無しの直線関係があると認められる結果が得られた。WHOがそれらの結果を総合的に分析した結果では、20～30年間の平均ラドン濃度が 100 Bq m^{-3} 上昇するごとに肺がんリスクが20%程度上昇すると推定している⁷⁾。そのためラドン濃度が低くても測定して被ばく線量を管理することが求められるようになると考えられる。

ラドンはガスであるが、ラドンが崩壊した直後の²¹⁸Poは正に帯電したイオンとして存在することが知られており、自然大気中ではほとんどが空気中のエアロゾルに付着し放射性エアロゾルを形成する。エアロゾルは吸引されたのち肺に沈着しやすいため、肺の被ばく線量への寄与はラドンよりもラドン子孫核種の方が大きく、特に半減期の短い²¹⁸Po (3.1 m), ²¹⁴Po (1.643×10^{-4} s)の影響が大きい。肺の被ばく線量を評価するには子孫核

種の各濃度を測定しなければならないが、ラドン濃度の測定は子孫核種に比べて簡便であるため、ラドン濃度を測定し、それから肺線量を推定する方法がとられている。線量算定には、ラドン濃度にラドンと²¹⁸Po、²¹⁴Poの放射平衡の度合いを表す平衡ファクタをかけ、子孫核種の濃度に相当する平衡等価ラドン濃度を用いる。

3. ラドン濃度の国による規制

3.1 海外の現状

国が規制を導入する際には、自国内のラドン濃度の調査結果や国際機関の勧告等を参考にする。放射線防護の基本的な考え方は国際放射線防護委員会（International Commission on Radiological Protection: ICRP）の勧告に基づいている。ICRP2007年勧告（Publ. 103）¹⁰では「参考レベル（Reference level: RL）」という概念が提唱された。RLは「安全か危険かの境界線ではなく、防護の最適化のための道具で、それを超える場合には必ず防護措置をとるための値」とされている。ICRP2007年勧告（Publ. 103）¹⁰はRLを一般住居環境で上限 600 Bq m⁻³、作業環境で 1500 Bq m⁻³に定める事を提言した。その後ICRPラドンに関する2009声明¹¹において、RLに一般住居環境で上限 300 Bq m⁻³、作業環境で 1000 Bq m⁻³を推奨している。

ICRP勧告は基本的な考え方であり、多くの国で法令や指針を策定する際の具体的な基準として参考にされているのが、国際原子力機関（International Atomic Energy Agency: IAEA）が発行する国際基本安全基準（International Basic Safety Standards: BSS）である。BSSの文書体系は安全要件の基礎を述べる「安全原則」、その下に安全を確保するための要件を定める「安全要件」、さらに、安全要件を満たすための措置などを定める「安全指針」により構成されている。各国の現行法令で整合がとられているBSSはICRP1990年勧告（Publ. 60）¹²に基づき1996年に発行された「電離放射線に対する防護および放射線源の安全のための国際基本安全基準 Safety Series No.115」¹³である。2014年に発行され、安全要件に位置づけられる「IAEA安全基準 GSR Part3 放射性物質からの放射線防護と安全確保」¹⁴ではラドン濃度の各国で定めるRLの上限値を一般住居環境で 300 Bq m⁻³、作業環境で 1000 Bq m⁻³に定めている。この内容を盛り込んだ欧州原子力共同体指令書（EU指令）が発行され、EU各国で2018年までの取入れを目指し検討が進められている。

WHOの屋内ラドンハンドブック⁷によると、住居内

のラドン濃度のRLは 100 Bq m⁻³以下に設定するべきであり、100 Bq m⁻³以下に設定するのが困難な場合は、被ばく線量が1年あたり 10 mSvに相当するラドン濃度である 300 Bq m⁻³を超えるべきでないとした。

これらの勧告を参考に、いくつかの国でラドン濃度にRLが設定された。フランス、ドイツ、スイス、アメリカ、イギリス、及び韓国のRLと各国国際機関の勧告値をまとめて表1に示す。ラドン濃度が場所により大きく変動する事や各国の国情などを反映し、合理的な値に設定されているため、国によりRLは異なる。ドイツをはじめ欧州では、ICRP2007年勧告（Publ. 103）¹⁰の値を参考にし、既存家屋では 400 Bq m⁻³、新築家屋では 200 Bq m⁻³、作業環境では 1000 Bq m⁻³に設定している国が多い。韓国とアメリカは 4 pCi L⁻¹に相当する 148 Bq m⁻³に設定している。

3.2 国内の現状

日本では住居・作業環境におけるラドン濃度の規制は導入されていないが、以下に述べるような規制の導入に向けた取り組みがなされている。

文部科学省に設置されていた放射線審議会がICRP2007年勧告（Publ. 103）の取入れを検討し¹⁵、その際にラドンが検討課題として挙がっている。それによるとラドンは3つの区分（①規制下にあるラジウム線源から発生するラドン、②核原料物質鉱山におけるラドン、③住居・作業環境のラドン）に分けて考えられている。放射線障害防止法では、規制下にあるラジウム線源

表1 各国で採用されているラドン濃度の参照レベル [Bq m⁻³]（屋内ラドンの規制に対する日本保健物理学会の提言¹⁶）

	一般住居環境	作業環境
フランス	公共施設で400	-
ドイツ	400(新築で200)	-
スイス	-	1000
米国	148	-
英国	100	-
韓国	148	-
ICRP勧告値	300	1000
IAEA勧告値	300	1000
WHO勧告値	100(<300)	-

注* WHOの勧告値は「100 Bq m⁻³が実行不可能な場合においては 300 Bq m⁻³を超えるべきでない」とされている⁷。

から発生するラドンについて、 $8 \times 10^{-3} \text{ Bq cm}^{-3}$ を超える恐れのある区域は管理区域として扱う事が要求される。②の核原料物質鉱山とは、岡山・鳥取県境に位置する人形峠等のウラン鉱山を指す。鉱山保安法では坑道等の鉱山周辺環境において 300 Bq m^{-3} を超える恐れのある区域は管理区域、その周辺は周辺監視区域と定義されている。上記の3つの区分のうち、③住居・作業環境のラドンだけ規制が導入されておらず、平成15年度の放射線審議会基本部会では、国内調査の展開を待ち今後の検討と位置付けられている。

国内では住居環境でのラドン濃度について、1980年代から2000年代にかけて3回全国調査が行われている。1回目は放射線医学総合研究所¹⁷⁾(以下、放医研)が7000件以上の住居、2回目は日本分析センターが約900件の住居¹⁸⁾、最後に国立保健医療科学院が約3900件の住居を調査した¹⁹⁾。各調査のラドン濃度の算術平均は $20 \sim 25 \text{ Bq m}^{-3}$ 、観測された最大値は約 300 Bq m^{-3} で、分布は対数正規分布をなしていた。特に、最新の国立保健医療科学院の結果によるとラドン濃度の算術平均値は 14.3 Bq m^{-3} であり、 100 Bq m^{-3} を超える住居は全体のおよそ0.1%であった¹⁹⁾。これらの調査結果を日本の住居の平均的な傾向と見ると、外国の平均値よりも低いことがわかる(表2)。表2の各国の値は経済開発協力機構(Organisation for Economic Co-operation and Development: OECD)加盟国の濃度調査の結果を一部抜粋⁷⁾し、日本の値は最新の全国調査の値である¹⁹⁾。

表2 各国の住居環境におけるラドン濃度の調査結果(算術平均値) [Bq m^{-3}]

フランス	89
ドイツ	49
スイス	78
米国	46
英国	20
韓国	53
日本	14.3

作業環境でのラドン濃度について、国内で全国規模の調査が行われたことはない。ラドンが高濃度になりやすい環境としては、表3のような自然放射性物質(NORM)を扱っている工場や、トンネル工事等の地下の閉鎖的な作業現場が考えられる。NORMの中でウランが多く含まれる鉱物にはジルコンやモナザイトなどがあり、それぞれ耐火レンガや入浴剤などに含まれている。

ウランやトリウムを含む鉱物の産業利用については、作業者の被ばく状況を管理する国際基準がBSSによって設定されているが、国内の法規制は未整備である。その代わり法的拘束力のないガイドラインが設定されており²⁰⁾、事業者の自主的な管理に任されている。

4. ラドン測定の実理

4.1 放射線検出の実理

放射能とは原子核の壊変の頻度を表す。壊変に際して α 線や β 線が放出され(あるいは軌道原子が核内に取り込まれ)、それに伴って γ 線やX線が発生する。 γ 線の一部は内部転換電子としてエネルギーを放出する。放射能はこの α 線か β 線を効率100%で計数した値あるいは測定結果から効率100%に外挿した値となる。物体の放射能を求める方法の基本的な流れは放射線の種類や用いる検出器に関わらず共通である。 α 線、 β 線等、放射線の検出には、測定対象から放出された放射線と検出器の構成物質の相互作用によって起こる電流や光などの物理量を検出し、単位時間当たりに検出された数(=計数率)を検出器の効率で除して、放射能を求める。放射線と物質の相互作用は、放射線が荷電粒子であるか、 γ 線やX線であるかで異なる。本稿では主に荷電粒子である α 線及び β 線との相互作用とそれを利用した測定について説明する。

物質中を通過した α 線や β 線などの荷電粒子は、飛跡近傍にある電子を電離もしくは励起させる。これら電子-イオン対は、電子を収集する電極を持つ電離箱や、発生した光子を電気信号に変える光電子増倍管(photomultiplier tube: PMT)によって検知され、電気信号に変換される。これらの電気信号を信号処理回路で計数する。

検出器の構成物質が気体であり、放射線の電離作用を利用する放射線測定器は、気体内での電子増殖の程度に

表3 ラドンの発生源となる物質の例²⁰⁾

鉱物	ジルコン	モナザイト	バストネサイト	チタン鉱石	リン鉱石	石炭
製品例	耐火レンガ	入浴剤	研磨剤	塗料	肥料	火力発電燃料

よって電離箱、比例計数管、GM 計数管に分類されている。充填ガスには、希ガス、窒素ガス、炭化水素ガスなどが使用される。

固体を利用したものには Si の単結晶を用いた半導体検出器、ZnS (Ag) や NaI (Tl) 等のシンチレータを用いたシンチレーション検出器などがある。また、 α 線等の重荷電粒子については、前述の電離及び発光に加え、放射線損傷を利用した飛跡一つ一つの検出ができる。このような測定器を固体飛跡検出器といい、特に α 線については α 線飛跡検出器 (Alpha-track detector: ATD) という。 α 線が誘電体中を通過すると、飛跡に沿って化学結合が切断された損傷分子ができる。そのままでは観測できないが、板を KOH 溶液や NaOH 溶液などに浸して化学処理 (エッチング) すると損傷が拡大され、顕微鏡で観測できる。物質の全表面が侵食されるが、損傷個所がより早く侵食され、円錐状のへこみ (エッチピット) ができる (図 2)。その数を数え、あらかじめ定めた換算係数をかけて放射能濃度を算出する。

4.2 測定に関わるラドンと α 線の性質

ラドンと ^{218}Po , ^{214}Po の濃度の経時変化は Batheman 方程式に従い、十分に時間が経過すると放射平衡に達する。放射平衡に達している状態では、ラドン濃度と子孫核種の放射能濃度が等しい。

物質中を通過する放射線は物質との相互作用によりエネルギーを損失するが、 α 線は単位長さあたりのエネルギー付与が大きいため、高い効率で測定できる。多くのラドン濃度の測定器には α 線を測定する方法が採用されている。

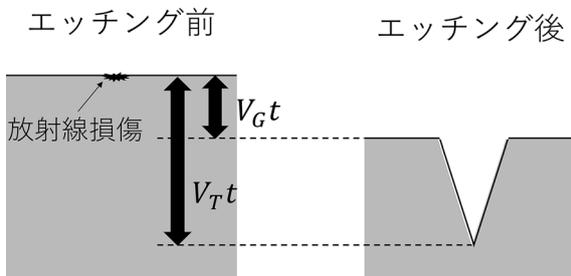


図 2 ATD のエッチング

注* V_G : 平面のエッチング速度, V_T : 損傷個所のエッチング速度, t : エッチング時間 損傷個所のエッチング速度は平面のエッチング速度よりも早い

5. 代表的な測定器

ラドン濃度の測定装置は α 線の検出と共に、ラドンもしくはその短半減期子孫核種を検出器の有感部分に導入する方法に工夫がある。この章では、 α 線の検出方法ごとにラドン濃度の測定装置の例を挙げ、その動作原理について説明する。

・電離箱を採用した測定器

AlphaGUARD™ (SAPHYMO 社製) は空気を電離媒体として利用する通気型電離箱である (図 3)。自然拡散により電離箱にガスを入れる拡散モード、サンプリング配管などを介して測定系内で連続でガスを流す場合にはフローモードで動作する。電離箱の拡散口にフィルター (Glass fiber filter) が据え付けられ、内部にエアロゾルに付着した子孫核種が入るのを防いでいる。フローモードで測定する場合は側面に付けられた専用のガスインレット (Active adapter) からガスを導入する。その場合、電離箱のよりも上流部分にフィルターを設置する必要がある。

AlphaGUARD™ は、電離箱の外壁 (Inlay stainless steel) を陽極とし +750 V, 中心軸部分の電極を陰極 (Cathode) とし 0 V 印加する。ラドンと子孫核種から放出される α 線の電離作用により Active volume 内で発生した空気中の陽イオンを陰極 (Cathode) に収集し、信号を得る。信号はパルスカウントによって計数される。ノイズからパルス信号を判別して、取り出す回路技術が使われている。測定範囲は $20 \sim 10^7 \text{ Bq m}^{-3}$ である。なお、AlphaGUARD™ は複数の測定機関及び校正機関で使用され、それを仲介器とした国際比較が行われた実績がある²¹⁾。

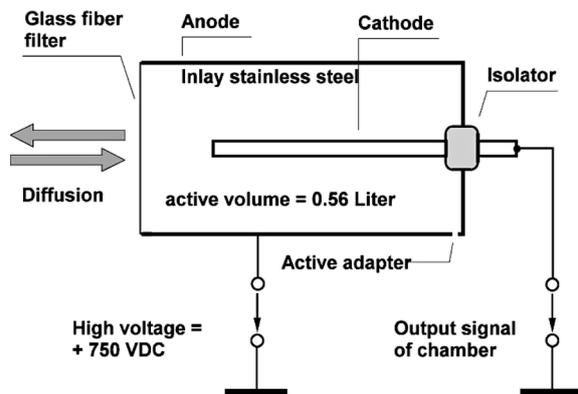


図 3 AlphaGUARD の内部構造 (SAPHYMO GmbH マニュアルより転載)

注* 図は拡散モードを示す。

・シンチレーション検出器を採用した検出器

Model TEL (Pylon 社製) は静電捕集法を採用している (図 4)。ラドンの子孫核種である ^{218}Po は正に帯電する事が知られており、ラドンが崩壊した直後はほとんどが陽イオンとして空气中に浮遊することから、負電極に捕集できる。この捕集方法を静電捕集法という。捕集した子孫核種からの α 線を検出するために、Model TELではチャンバー内 (ELECTROSTATIC CHAMBER) にラドンを導入し、中心部に設置したアルミニウムマイラーを使用した陰極 (CATHODE COLLECTOR (ALUMINIZED MYLAR)) に -1200 V 印加する。捕集された子孫核種からの α 線の検出には ZnS (Ag) シンチレータ (SCINTILLATOR) を使用する。子孫核種の捕集効率は湿度に依存するため、ガスを乾燥させることが推奨されている。静電捕集法を採用した他の装置では、チャンバー内部に除湿剤 (P_2O_5) を設置している。Model TEL の検出限界は 0.93 Bq m^{-3} である。

・固体飛跡検出器を採用した検出器

ATD は静電捕集法の検出器部分として使用されることがあるが、他には ATD をそのまま露出させた状態で

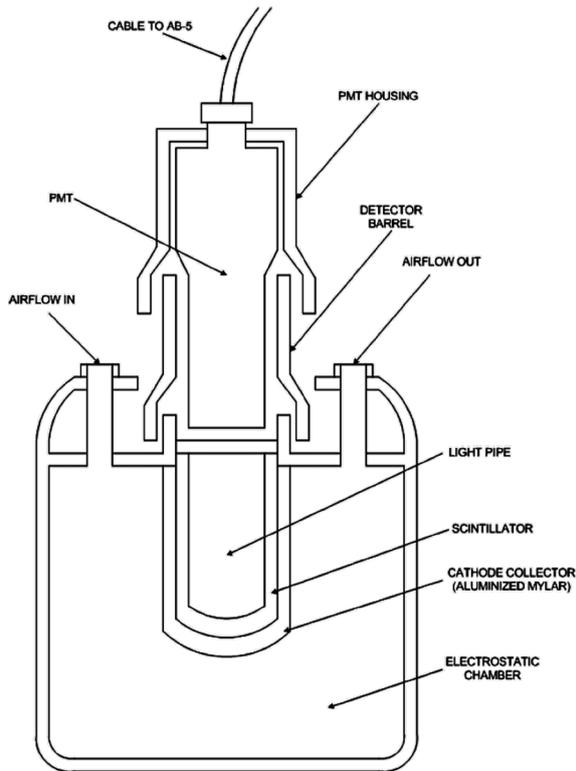


図 4 Model TEL の内部構造 (Pylon Inc マニュアルより転載)

注* チャンバー内部の CATHODE COLLECTOR に子孫核種が捕集される。

測定するベア法、プラスチックのカップ内に ATD を設置し、自然拡散によりカップ内に侵入したラドンを測定するカップ法がある。ATD に使用される板は、CR-39® という製品名で呼ばれるポリアリル・ジグリコール・カーボネイト等がある。

放医研と Radosys 社が共同で開発した Raduet™ (Radosys 社製) (図 5) はカップ法を採用した測定器の一つである。Raduet™ はラドンと放射性同位体のトロン (^{220}Rn) を弁別できることが利点の測定器である。Raduet™ は 2 つの捕集容器からなり、それぞれに CR-39® が設置されている。一つの容器では空気の流出入が容器と蓋の隙間のみで行われるため、ガスが検出器に到達するまでに時間がかかり、半減期が 55.6 s と短いトロンの影響を抑えることができる。もう一つの捕集容器には側面に穴が 6 箇所開けられ、トロンを容器内に取り込みやすい。ラドンはトロンよりも半減期が長いので、検出器に到達するまでにかかる時間に関わらずどちらの容器でも検出される。2 つの捕集容器の CR-39® に記録されたエッチピットの数から、設置期間中のラドン・トロン濃度をそれぞれ評価することができる。Raduet™ は国内の 3 回目の住居内ラドン濃度の全国調査に使用されたほか、公共機関を対象とした韓国の全国調査に使用された実績がある²²⁾。

上記の方法を含め、ラドンの放射能濃度を測定する方法は、ガスの捕集方式の違い及び測定方式の違いによって分類されている。捕集方式による分類では、空気をポンプで吸引するアクティブ型、自然拡散により空気を捕集する方法をパッシブ型という。測定方式による分類では、連続測定と積分測定に分類されている。連続測定とは測定結果をリアルタイムに出力し、短時間での推移や

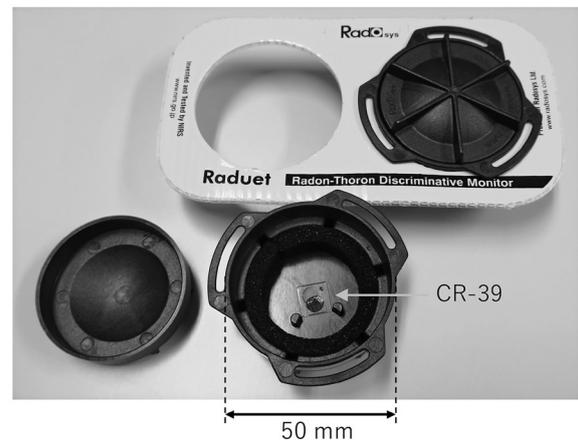


図 5 α 線飛跡検出器の例 (Raduet™)

注* 2 つのカップのうち穴開きの方のふたを取り外した状態

ある時点の濃度をモニタリングする方法である。前述のAlphaGUARD™が含まれる。積分測定とは測定器を長期間（数日～数カ月）放射線に曝露させ、測定用素子に加えられた放射線損傷から放射能濃度を求める（表4）。前述のRaduet™が含まれる。

6. NMIJ が提供する国家標準

測定器から出力された測定結果が信頼できるためには、使用する測定器が校正されている必要がある。日本の放射能の国家標準はNMIJによって維持・供給されている（図6）。本章では、NMIJが提供するラドン以外の国家標準について説明する。

NMIJは4πβ-γ同時測定装置を中心とした放射能絶対測定装置群を保有し、核種や線種に応じた放射能絶対測定装置を用い標準供給を行っている。校正事業者が保有する基準器をNMIJが校正する。校正事業者は基準器を

用いて線源の放射能や表面放出率を校正する。あるいは測定器の応答を校正する。

4πβ-γ同時測定装置はγ線とβ線の両方放出する核種の絶対測定が可能な装置である。線源を内包する形状の比例計数管によりβ線を測定し、NaI(Tl)シンチレータによりγ線を測定する。β線測定系から得られる計数率とγ線測定系から得られる計数率、同時測定系から得られる計数率から線源の放射能を計算で求める事ができる。同時計数法は線源の自己吸収や測定器の検出効率によらず絶対測定が可能なため、放射能標準の最上位の測定システムに位置付けられている。基本的には4πβ-γ同時測定装置により校正された線源を用いて加圧型電離箱及び高純度ゲルマニウム半導体検出器の校正を行う。4πβ-γ同時測定装置による絶対測定は、α線とγ線またはβ線とγ線を同時に放出する核種のみ測定可能、測定可能な濃度範囲が狭い、放射性溶液を滴下し乾燥した線源のみ測定可能である、と適応範囲に限られる。4πβ-γ同時測定装置による校正を経ず単独で絶対測定を行う装置は、面線源の荷電粒子放出率校正に使用するマルチワイヤー式荷電粒子測定装置、¹²⁵Iの放射能の絶対測定を行う井戸型NaI(Tl)シンチレーション検出器、放射性ガスの放射能の絶対測定を行う内部循環式比例計数管、点線源のような小さな線源の荷電粒子放出率校正に使用する表面障壁型荷電粒子測定装置である。他に、液体シンチレーションカウンタによって校正する際には4πβ-γ同時測定装置や加圧型電離箱によって校正された線源を利用する。

表4 ラドン濃度測定装置の分類⁷⁾

	積分測定	連続測定
パッシブ型	α線飛跡検出器 活性炭検出器 エレクトレット電離箱	
アクティブ型	電子式積分測定装置 ・主にシリコン半導体検出器	連続ラドンモニター ・電離箱 ・シンチレーションセル ・シリコン半導体検出器

注* 活性炭検出器…ラドンを活性炭に吸着させ、そのままγ線計数を行うか、シンチレーションカクテルを加えてα線計数を行い、ラドン濃度を評価する。エレクトレット電離箱…電離箱内部にラドンを導入し、ラドンとその子孫核種により生成された陰イオンを収集してラドン濃度を評価する。

・加圧型電離箱

円筒形容器内に窒素ガスなどを封入された電離箱である。井戸の穴にあたる部分に線源を入れ、γ線による電離電流を測定する。γ線放出核種の放射能校正に使用されている。電離箱本来の特性として安定性が高い事が特徴である。

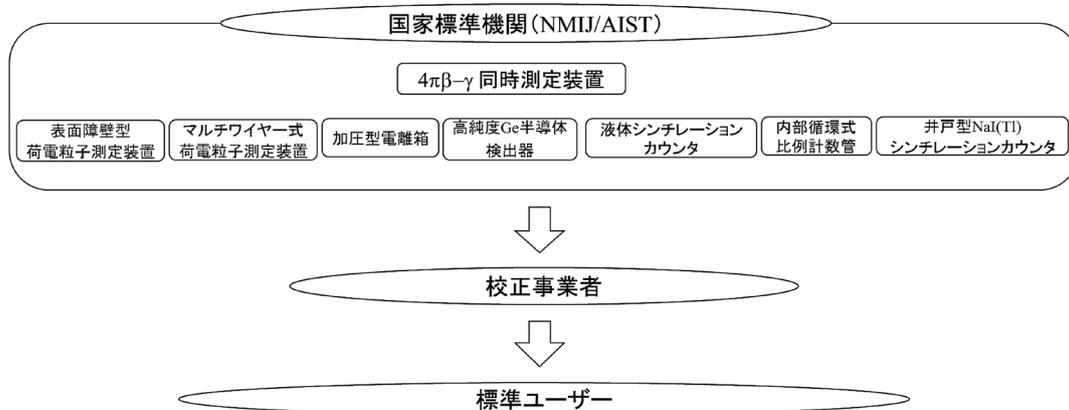


図6 産総研における放射能標準の供給体系

・井戸型シンチレーション検出器

井戸型の NaI (TI) シンチレーション検出器を用い、 γ 線及び X 線による光を測定する。この装置では、主に ^{125}I の放射能絶対測定が行われている。 ^{125}I は崩壊に伴って 27 keV または 31 keV の X 線を放出し、続いて 35.5 keV の γ 線または 27 keV または 31 keV の X 線を放出する。それらのうち片方だけ検出した場合得られる計数率と両方検出した場合に得られる計数率から線源の放射能の計算で求める事ができる。この方法は線源容器や検出器窓による放射線の吸収によらず放射能を測定できる一方、高計数率の測定ができなため校正範囲の上限が 0.2 MBq と低い。

・液体シンチレーションカウンタ

液体シンチレーションカウンタは検出に用いる物質が液体であり、測りたい線源をシンチレーションカクテルに直接溶かす。試料から発せられた蛍光の数を PMT で電気信号として計数し、得られた蛍光の頻度をあらかじめ求めた効率で除して試料の放射能を求める。放射線が検出器の入射窓などにより吸収されることが無く、試料の自己吸収や容器による粒子のエネルギー減衰等が無視できるほど小さい。低エネルギーの X 線や β 線のみを放出するために他の検出器では測定が困難な核種の測定に使用される。

・マルチワイヤー式荷電粒子測定装置

芯線を複数本並べ、測定の有効面積を広くした比例計数管である。面状の放射線源から 2π 方向に放出された荷電粒子の絶対測定が可能である。面線源の表面放出率校正に使用される。

・表面障壁型荷電粒子測定装置

荷電粒子をシリコン結晶に入射させ、面線源の表面放出率を測定する。点線源のような面積が小さい線源の校正に使用される。

・高純度ゲルマニウム半導体検出器

ゲルマニウムの結晶に高電圧を印加し、入射した γ 線による電離電流をパルスカウントする。エネルギー分解能が高いため核種の弁別が容易である。

・内部循環式比例計数管

^{85}Kr 等の β 線を放出する放射性ガスの絶対測定を行う比例計数管である。対象の放射性ガスを検出器内部に導入し計数する。計数管端部の電場の歪みによる検出効率の非均一性を補正するため、長さの違う複数本の比例計数管に対象ガスを流し、それぞれの計数の差から放射能を求める。なお、ラドン子孫核種の金属壁面に付着する性質から、ラドンとの共用は避けている。

7. 測定器ユーザーによる従来の校正方法

国内ではラドン測定器の校正方法について日本工業規格 (JIS) などで定められた方法はないが、ラジウム標準溶液を基準にする「ガス封入型電離箱法」が標準的な校正手法とされ、研究機関を中心にこの方法が採用されている (図 7)²³⁾。

日本原子力研究開発機構 人形峠環境技術センター (以下、原子力機構人形峠と呼ぶ) では、米国国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology: NIST) のラジウム標準溶液を自機関内の標準とし、それで校正した電離箱を基準器としている。具体的には、NIST から提供されたラジウム標準溶液からなるラドン発生部にキャリアガスをバブリングし規定濃度のラドンを抽出し、そのガスに含まれるラドン濃度を測定する事でガス封入型電離箱を校正する。次に、校正したガス封入型電離箱と各ラドン測定装置の比較実験をラドン校正チャンバーで行い、ラドン測定装置の校正を行っている²⁴⁾。本方法は、ラジウムとラドンが放射平衡である事、ラジウムと放射平衡になっているラドンをバ

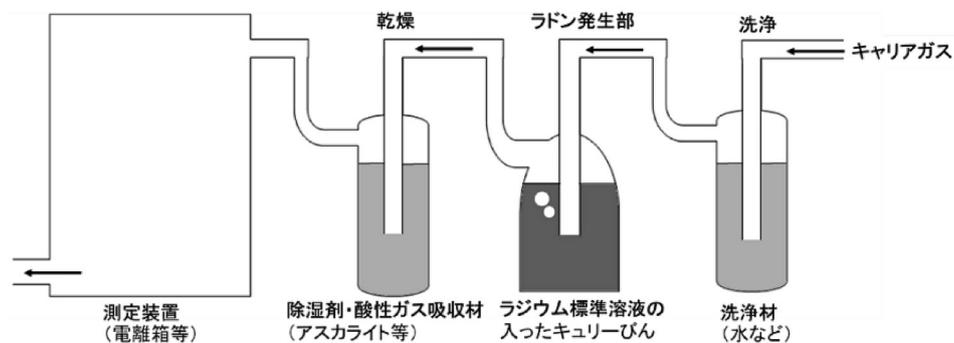


図 7 ラジウム標準溶液を参照する方法

注* キャリアガスには窒素ガス等が用いられる。

ブリッキングにより完全に分離できる事を前提としている。またこの方法は、文部科学省により制定されている放射能測定法シリーズ 19「ラジウム分析法」²⁵⁾で水や土などの環境試料中ラジウム濃度を定量する方法として挙げられている。

ラドン校正・実験施設を有する放医研では、ドイツ連邦放射線防護庁 (Bundesamt für Strahlenschutz: BFS) で校正された測定器を自機関内の基準器としている。具体的には、放医研のラドンチャンバ内に BFS で校正された基準器と他のラドン測定装置を置き、基準器と他のラドン測定装置の比較によりラドン測定器の校正を行う。放医研のラドンチャンバはラドン標準場として測定器の国際比較実験の実績がある²⁶⁾。

8. 諸外国のラドン国家標準の現状

国家標準で行われるラドンの測定方法には、7項で述べた「ガス封入型電離箱法」を含むラジウム標準溶液を参照する方法と、ラドンの絶対測定を行い測定器を基準にする方法に分かれている。歴史的には、「ガス封入型電離箱法」による校正が多く行われていた。

2000年代からフランスのアンリベクレル研究所 (Laboratoire National Henri Becquerel: LNE-LNHB)、ドイツ物理工学研究所 (Physikalisch-Technische Bundesanstalt: PTB) 等の国家計量標準機関 (NMI) でラドンの絶対測定法が開発され、ラジウム標準濃度の参照無しでラドンの濃度を求める事が可能になった。本章では絶対測定法の中から3つ (①定立体角法 (Defined solid angle method)、②液体シンチレーションカウンタを用いた方法、③比例計数管を用いた方法) の測定原理を説明する。表5に参考とするNMIで採用されている方法、及び相対標準不確かさを示す。これらの絶対測定は、従来の α 線の検出原理をベースに、測定器の効率を厳密に決定できるように工夫を施したもの、もしくは有効領域内で効率を100%にできるような工夫を施したものである。

表5 参考とするNMIの絶対測定方法と相対標準不確かさ²⁷⁾⁻³¹⁾

	測定方法・測定装置	相対標準不確かさ[%]
フランス	定立体角法	0.5
ドイツ	定立体角法	~1
スイス	定立体角法	0.28
ルーマニア	液体シンチレーションカウンタ	0.7
韓国	定立体角法	0.14

8.1 定立体角法

定立体角法はラドンをチャンバー内の微少部分に凝縮させ、検出器と測定試料の間の立体角を決定し、 α 線の検出効率を厳密に決定できるように工夫した測定法である。測定試料から検出器の向きに放出された α 線を全て検出し、検出効率で除して放射能を得ることで絶対測定が可能である。

α 線の検出には大面積シリコン半導体検出器が用いられる。Si結晶に電圧をかけ、入射した α 線による電離電子を電極に収集する。定立体角法で用いられるものの例としてPIPS検出器 (Passivated Implanted Planar Silicon, Mirion Technologies (Canberra) 社製) がある。これはSi結晶表面の不感層が薄い、物理的に丈夫、リーク電流が少ないため分解能が高い、などの利点がある。

ラドンを凝固させるには、チャンバー内にラドンを導入した後チャンバー底面の微少部分 (cold finger) をラドンの融点 (202 K) 以下に冷却する。極低温にするため、cold fingerには熱伝導性が優れるニッケル製の小さな円柱状の棒を使用し、この棒をチャンバー下部の冷却装置に熱的に接続する。ニッケル製の棒の頂部をステンレス製の板と溶接し、ラドンが凝固する部分が検出器に対向している (図8)。チャンバーはラドン発生器及び排気設備等の付帯設備に接続されている。被校正器物の校正には放射能を絶対測定したラドンを液体窒素で冷却した容器に凝集・密閉し、ラドン標準ガスとして供給する。容器にはバルブ付きのバイアルやガラス製のアンプルが用いられる。容器を常温の標準チャンバーに取り付け、容器内のガスをチャンバーに充填させて校正を行う。

この方法はLNE-LNHB, PTB, スイス連邦計量機関

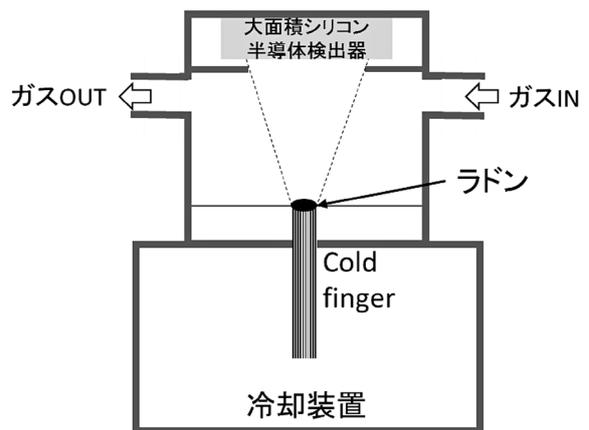


図8 定立体角法測定系概略

注* 冷却装置の上に設置されたチャンバーにラドンを含むガスを導入し、チャンバー内に露出する cold finger にラドンを凝固させ測定する。

(Swiss national metrological institute: IRA-METAS), 韓国標準科学研究所 (Korea Research Institute of Standards and Science: KRISS) 等の NMI で採用されている。相対標準不確かさはそれぞれ 0.5 %²⁷⁾, 1 % 以下²⁸⁾, 0.28 %²⁹⁾, 0.14 %³⁰⁾である。本法は測定試料と検出器の間の幾何条件の決定が重要であるが、各機関とも凝固されたラドンの半径の決定にオートラジオグラフィを使用している。中でも KRISS は高感度の画像分析器を使用しているため、幾何条件の不確かさが他機関と比べて小さい³⁰⁾。

8.2 液体シンチレーションカウンタを用いた方法

ラドンはシンチレーションカクテルや水などの液体によく溶ける事が知られている。シンチレーションカクテルにラドンを直接溶かすため、放出された α 線の幾何学的効率は 100 % であり、かつ試料の自己吸収の影響が無視できるほど小さい。従ってラドンとその子孫核種の検出効率を 100 % に近づけた測定が可能である。

本方法を開発したルーマニアのホリア・フルベイ原子物理工学研究所 (Horia Hulubei National Institute for RD in Physics and Nuclear Engineering: IFIN-HH) では液体窒素を用いて液体シンチレーションカクテルを冷却し、ラドンを低温の液体シンチレーションカクテル内に捕集する方法を採用している。

PMT の後に続く信号処理回路は、一つの放射線パルスが入射すると数 10 μ s 程放射線を検出しない時間 (不感時間) を持つため、高計数率になる場合は不感時間の補正を行う必要がある。ラドンを測定する場合子孫核種の一つである ^{214}Po は半減期が短く、不感時間内に崩壊する可能性が高いため、計数率が低くても不感時間の補正を行う必要がある。この補正を行い、絶対測定を実現する方法が提案されている³¹⁾が、他の測定方法との間で結果の不一致が認められている。また、この絶対測定法の相対標準不確かさは 0.71 % であったと報告されている。

本方式の開発は IFIN-HH と LNE-LNHB が共同で行った。IFIN-HH は本方法で国家標準の立ち上げを目指している³²⁾。

8.3 比例計数管を用いた方法

比例計数管は、放射線の電離作用を利用して測定対象の放射能を求める装置である。ラドンを絶対測定する比例計数管として I. Busch により「多電極比例計数管 (Multi-electrode proportional counter: MEPC)」が開発された³³⁾。

比例計数管でラドンを測定する場合、 α 線を放出する短半減期子孫核種の ^{214}Po , ^{218}Po も測定対象に含まれる。ラドンは気体であるから、計数管内で一つの原子から放出された α 線は全方向に渡って検出可能である。 ^{214}Po , ^{218}Po は正に帯電するイオンであるため、計数管の内壁に付着する。従って計数管の内側に向かって放出された α 線のみ検出可能である。ラドンの検出効率 $\epsilon_{Rn} \approx 1$, ^{214}Po , ^{218}Po の検出効率はそれぞれ $\epsilon_{Po214} = \epsilon_{Po218} \approx 0.5$ と考えることができる。ラドンと ^{214}Po , ^{218}Po の放射平衡が成り立つ場合、次の式が成り立つ。

$$A \times (\epsilon_{Rn} + \epsilon_{Po214} + \epsilon_{Po218}) = Z$$

A: ラドンの放射能濃度 (= $^{214}\text{Po} = ^{218}\text{Po}$ (放射平衡を仮定)) [Bq m^{-3}]

Z: 計数率 [s^{-1}]

原理的には ^{222}Rn , ^{214}Po , ^{218}Po の検出効率の総和は 2 となりその逆数は 0.5 であるが、実際の測定での補正項を考慮すると、シミュレーションの評価により検出効率の逆数は 0.524 で、その標準不確かさは 0.005 であったと述べられている。

通常の比例計数管では陽極線の両端の部分で電場がゆがんでしまい、両端の部分で生成された電離電子は十分にガス増幅されず、中心付近で得られる信号よりも小さな信号として検出される。このように検出器内の α 線の位置が影響しガス増幅率が不均一になる現象を端効果という。MEPC は計数管の両端部分に 6 つのリング状の電極 (リング電極) を配置し計数管の両端まで均一な電場をかけ、計数管内のどこで電離された電子でもガス増幅率を均一にしている (図 9)。リング電極に適切な電圧を印加する事で端効果の影響が小さくなり、① α 線のエネルギー分解能が向上する事、②計数管内の有効体積が計数管の体積と等しくなる事が期待できる。

比例計数管内のガス中で α 線が止まらず、比例計数管の内壁にぶつくと、電離に使われるエネルギーが減少

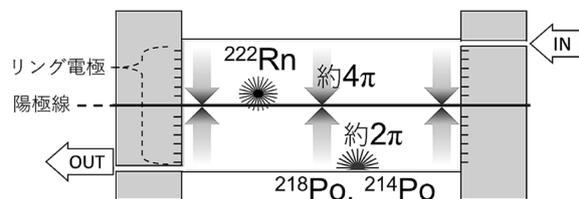


図 9 MEPC の測定原理

注* ガス流入側、流出側の各フランジは樹脂製で、それぞれ 6 本ずつリング電極が埋め込まれている。各リング電極には計数管内部の電場の歪みを補正する電圧が印加され、ガードリングとして機能する。

する。これを壁効果という。この効果により、低い波高領域に信号が検出され、閾値以下の成分は切り捨てられるため、求めたい計数率が真の値よりも小さくなる。実際にMEPCで絶対測定を行うには、この壁効果をシミュレーションで評価し、実測される計数率を補正する必要がある。

PTBのラドン標準ガスを測定した結果、MEPCによる絶対測定の相対標準不確かさは2.5%であり、主要要因となったのは、検出効率の決定に伴う不確かさと計数統計の不確かさであったと述べられている。本法を開発したNMIはPTBであるが、PTBは校正に定立体角法を採用している²⁸⁾。

9. NMIJのラドン標準の方針

この章では、NMIJのラドン標準の方針を述べる。標準器を選択する上で作業の効率や維持費を抑えられる事を重視した。はじめに、校正依頼者への標準供給体制について検討した。諸外国のケースを参考にした標準供給体系から以下の①、②の標準供給体制の典型例を考え、それぞれの校正の作業効率について検討する。

①一次標準で測定したラドン標準ガスを校正依頼者へ送付する³⁴⁾

NMIの一次標準で値付けしたラドン標準ガスを容器に充填し、校正証明書をつけて校正依頼者に送付する。校正作業は校正依頼者自身が実施する。

②校正依頼者が持ち込んだ測定装置を校正する

校正依頼者の基準器をNMIに持ち込む。NMIは持ち込まれた基準器を標準器を用いて校正する。

ラドンは半減期が短く、一次標準で測定してから数日経った後の測定では減衰の影響が大きくなる。②は①と比較し、校正対象の装置と基準器を同じガスライン上に配置できるため、ラドンの減衰が測定に与える影響を抑えられる。さらに、ラドンを容器に捕集する作業が省けるため、ラドンの損失や飛散の可能性が小さいというメリットがある。さらに線源の輸送に関する煩雑な手続きを避けられる点を考慮し、NMIJは②による標準供給を検討している。この供給体系で、アクティブ型の測定装置の校正に加え、パッシブ型の測定器の基準照射も実施できるように検討を進めていく。

次に、前節で紹介したラドンの絶対測定方法の中からNMIJで採用する方法を検討した。最も不確かさが小さい方法は定立体角法だが、以下に述べた理由から、MEPCによる絶対測定が最も合理的と判断し、これを

採用した。

理由1. 保有技術を活かした標準開発が可能

当グループは、これまで放射性希ガスの比例計数管による標準開発に取り組んでおり、それに関連したガスの放射能校正技術を保有している。比例計数管の関連技術等、保有するガスの放射能校正技術はMEPCによる校正に必要な技術に通ずる要素が多く、立ち上げに採用する絶対測定方法としてMEPCが最も適している。

理由2. 運用のコストと労力が抑えられる

定立体角法では測定のたびに冷却装置によってラドンの凝固部分を極低温(77 K以下)にする必要がある。冷却装置は経過年数による劣化が避けられず、買い替える可能性を考慮するとコストが大きい。さらに凝固部分を冷却し安定させるのに数日程度かかり、作業性が悪い。液体シンチレーションカウンタを用いて絶対測定を行うには、ラドンを入れたガラスバイアルを封じ切る作業が必要である。その際にラドンが飛散・損失する可能性があり、作業性が悪い。MEPCによる絶対測定はラドンを冷却する必要やラドンを封じきる必要が無いため、その分のコストと労力が抑えられる。

理由3. 測定の不確かさが十分小さい

不確かさに関しては、MEPCは標準に求められるスペックを十分に備えている。校正対象の測定器として5章で述べた市販のラドン測定器を想定し、標準の目指す不確かさを検討した。パッシブ測定器の代表的な不確かさは10~25%であり、アクティブ測定器はAlphaGUARD™を想定すると、校正の不確かさは3%である。これらの測定器の校正を可能にするため、標準の絶対測定の相対標準不確かさは2%程度を目指す。MEPCは絶対測定の相対標準不確かさが2.5%と計算されており、校正に利用するには十分なスペックである。さらに先行研究では検出効率を決定する際のシミュレーション方法によっては2.5%よりも小さくすることが可能と述べられており³³⁾、今後の検討次第で不確かさをもっと低減できる可能性がある。

10. まとめ

本稿では、ラドン放射能及び放射能濃度の国家標準に関して調査した結果をまとめた。ラドンの健康影響及び濃度規制の現状を調査した。校正対象となりうる測定器及びその技術、諸外国の国家標準の絶対測定の方法についてまとめた。今後は本稿で調べた内容に基づき、ラドン標準を立ち上げる。

11. 謝辞

本稿をまとめるにあたり，公益財団法人原子力安全研究協会 米原英典様，国立研究開発法人放射線医学総合研究所 神田玲子様，栗原治様，ヤニック・ミロソラフ様，弘前大学 床次眞司様，岩岡和輝様，株式会社千代田テクノロ 大口裕之様，小口靖弘様より多くの助言を受けており，ここにお礼申し上げます。また，柚木彰グループリーダー，放射能中性子標準研究グループの皆様にご指導を賜りました。ここに深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 公益社団法人日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳 11 版－ポケット版－. 丸善株式会社 (2010)
- 2) Erickson, B. E: The therapeutic use of radon: a biomedical treatment in Europe; an 'alternative' remedy in the United States, *Dose. Response* 5 (2007) 48-62.
- 3) 西山祐一, 片岡隆浩, 山岡聖典：ラドンの健康影響に関する一考察 ラドン療法の効果と機構に関する最近の研究動向, *日本原子力学会和文論文誌*, 12 (2013) 267-276.
- 4) 東京都総務局災害対策部企画課：ラドン濃度測定に関する調査研究. 東京都防災会議 1-7 (1976)
- 5) 府川明彦, 古川理央, 三浦和彦, 永野勝裕, 児島紘：P412 ラドン・トロン娘核種の測定による富士山頂に輸送されるエアマスの由来の推定 (ポスター・セッション). 社団法人日本気象学会大会講演予講集 103, 389, 社団法人日本気象学会 (2013)
- 6) Ikeda, M., Hokama, T., Tasaka, S., Takeuchi, Y: Adsorption and Desorption of Radon in Argon Gas, and the Development of Low Level Radon Concentration Measurement Method, *Radioisotopes* 59 (2010) 29-36.
- 7) World Health Organization: WHO Handbook on Indoor Radon. A public health perspective (2009)
- 8) 独立行政法人放射線医学総合研究所：WHO 屋内ラドンハンドブック－公衆衛生の観点から－ (2015)
- 9) Biological Effects of Ionizing Radiation VI Report: HEALTH EFFECTS OF EXPOSURE TO RADON (1999)
- 10) ICRP: The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Ann. ICRP* 37 (2-4) (2007)
- 11) ICRP: International Commission on Radiological Protection Statement on Radon. Ref 00/902/09 (2009)
- 12) ICRP: 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. *Ann. ICRP* 21 (1-3) (1991)
- 13) IAEA: International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. *Safety Series* 115. STI/PUB/996 (International Atomic Energy Agency, 1996)
- 14) IAEA: Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards General Safety Requirements Part 3 (International Atomic Energy Agency, 2014)
- 15) 文部科学省 放射線審議会：放射線審議会第 15 回基本部会議事次第 (2003) (<http://www1.odn.ne.jp/hibaku-hantai/clearance/housyasen-singikai/singikai-kihonbukai15th.htm>) (2015.12.22accessed)
- 16) 日本保健物理学会：屋内ラドンの規制に対する日本保健物理学会の提言 (2005)
- 17) 藤元憲三, 小林定喜, 内山正史, 土居雅広, 中村裕二：屋内ラドン濃度全国調査, *保健物理* 32 (1997) 41-51.
- 18) Sanada, T. et al.: Measurement of nationwide indoor Rn concentration in Japan, *J. Environ. Radioact.* 45 (1999) 129-137.
- 19) Suzuki, G. et al.: A nation-wide survey on indoor radon from 2007 to 2010 in Japan. *J. Radiat. Res.* 51 (2010) 683-689.
- 20) 文部科学省：ウラン又はトリウムを含む原材料，製品等の安全確保に関するガイドライン. 23 (2009)
- 21) Röttger, A. et al.: Comparison of calibration facilities for radon activity concentration: Euromet Project 657. *Metrologia* 42 (2005)
- 22) Yongjae, K., Byung-Uck, C., Hong-Mo, P., Chang-Kyu, K., Shinji, T: National radon survey in Korea. *Radiat. Prot. Dosimetry* 146 (2011) 6-10.
- 23) 下道国, 飯田孝夫, 池辺幸正：ラドン測定のための電離箱の較正. *保健物理*. 33 (1998) 25-33.
- 24) 石森有：局地的ラドン発生源の環境影響評価手法に関する研究. 名古屋大学大学院工学研究科 2007 年度博士論文 (2008)
- 25) 文部科学省：放射能測定シリーズ 19 ラジウム分析法. 98 (1991)
- 26) Janik, M., Ishikawa, T., Omori, Y. Kavasi, N: Invited article: radon and thoron intercomparison experiments for integrated monitors at NIRS, Japan. *Rev. Sci. Instrum.* 85 (2014)

- 27) Picolo, J. L: Absolute measurement of radon 222 activity, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. A 369 (1996) 452-457.
- 28) Dersch, R: Primary and secondary measurements of ^{222}Rn , Appl. Radiat. Isot. 60 (2004) 387-390.
- 29) Spring, P., Nedjadi, Y., Bailat, C., Triscone, G. Bochud, F: Absolute activity measurement of radon gas at IRA-METAS, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. 568 (2006) 752-759.
- 30) Kim, B. C. et al.: Development of the primary measurement standard for gaseous radon-222 activity, Appl. Radiat. Isot. 70 (2012) 1934-1939.
- 31) Cassette, P., Sahagia, M., Grigorescu, L., Lépy, M. C., Picolo, J. L: Standardization of ^{222}Rn by LSC and comparison with α - and γ -spectrometry, Appl. Radiat. Isot. 64 (2006) 1465-1470.
- 32) Sahagia, M. et al.: Realization of the metrological traceability chain of Rn-222, Romanian Journal of Physics 58 (2013) 230-242.
- 33) Busch, I., Greupner, H., Keyser, U: Absolute measurement of the activity of ^{222}Rn using a proportional counter, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. A 481 (2002) 330-338.
- 34) Picolo, J. L. et al.: A radon 222 traceability chain from primary standard to field detectors, Appl. Radiat. Isot. 52 (2002) 427-434.