

令和 3 年 10 月 19 日現在

機関番号：11101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K15368

研究課題名(和文)放射性微粒子は呼吸により体内に取り込まれて人体にどのように影響するか？

研究課題名(英文)How radioactive aerosol taken into human body by inhalation does affect human?

研究代表者

床次 眞司(Tokonami, Shinji)

弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授

研究者番号：80247254

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：大気中に浮遊する天然放射性核種のラドン(Rn-222)は喫煙に次ぐ肺がんのリスク因子であることは国際的に認識されている。実際には、吸入摂取による被ばく線量の大部分はラドンが壊変して生成される子孫核種によるとされている。これらは体内(温度37℃、湿度100%)に取り込まれるとその性状が変化するため、線量評価をする際に影響を及ぼすと考えられている。しかし、これらの環境を再現して放射性エアロゾルを曝露することができる実験場は世界でもほとんどない。そこで本研究では、大気中に浮遊する放射性微粒子が体内環境において物理的にどのような変化を起こすのが定量的に検証するための実験場を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性微粒子の吸入による被ばく線量はその粒子径により沈着部位が異なるため、線量評価の際には大気中の粒子径分布を考慮する必要がある。しかし、粒子径を制御できる放射性微粒子の曝露環境が世界中でもほとんどないことから、放射性微粒子の呼吸気道への沈着を実測により評価された例は少ない。粒子径、温度及び湿度を制御可能な放射性粒子の曝露場を構築することにより、放射性微粒子の呼吸気道内への沈着の実態解明に繋がること期待される。また、放射性微粒子の較正場としても有用であり、福島第一原子力発電所の廃炉に伴う作業者の内部被ばく管理で重要となる測定器の較正及び性能評価にも利用可能である。

研究成果の概要(英文)：It is well-known that radon (Rn-222) is a secondary risk factor of lung cancer after smoking. Most of the lung dose by inhalation is due to radon progenies rather than radon itself. When radon progeny is inhaled into human body such as lung (temperature: 37℃, relative humidity: 100%), the characteristics of it will be changing. This fact may affect the internal dose assessment. However, there is no radioactive-aerosol exposure chamber reproducing the respiratory tract environment in the world. In this study, the exposure chamber using radioactive aerosols was developed for evaluation of the physical change of radioactive aerosols in the respiratory tract environment.

研究分野：原子核工学

キーワード：ラドン トロン 放射性微粒子 吸入摂取 内部被ばく 健康影響

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

放射性微粒子の吸入による被ばく線量は粒子の大きさにより呼吸気道内での沈着部位が異なるため、その粒子径に大きく依存することは知られている。また、呼吸気道内は極めて湿度が高く、このような高湿度環境では微粒子は湿度効果により粒子径が大きくなることが報告されている。吸入摂取による被ばくの線量換算係数の評価には線量モデルの数値計算による評価の値が用いられている。しかし、実際に微粒子の粒子径、温度及び湿度などの環境パラメータを制御できる実験場は世界でもほとんどないため、実測により呼吸気道への微粒子の沈着について評価した例はない。

### 2. 研究の目的

上記の通り、粒子径を制御できる放射性微粒子の曝露環境が世界にほとんどないことから、放射性微粒子の呼吸気道への沈着状況を実測により評価した例はない。また、福島第一原子力発電所事故以降、内部被ばく線量を評価するための放射性微粒子の測定器が求められている。その際、その測定器の特性を評価するための実験場も必要となってくるため、本研究では放射性粒子の曝露場を構築した。

### 3. 研究の方法

#### 放射性微粒子の曝露場の構築

放射性微粒子の曝露実験場は大きく分けて放射性ガス生成部門、微粒子生成部門、混合部門、曝露部門及びモニタリング部門の5つの部門から構成される (Fig. 1)

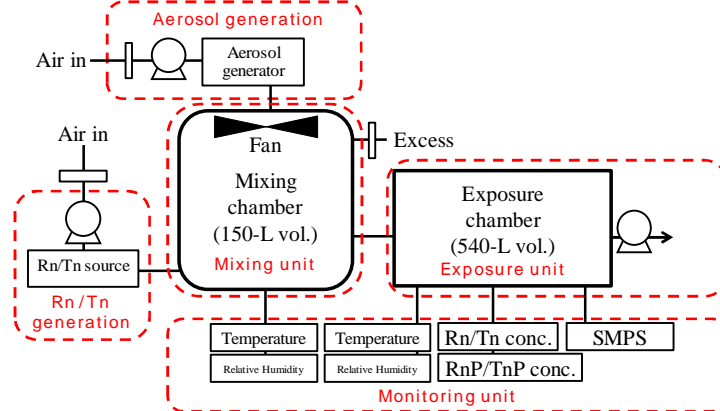


Fig.1 放射性微粒子曝露場の構成図

放射性ガス生成部門では放射性微粒子を生成するための放射線源としてランタンマンテルを用いて、放射性希ガスであるトリオンを生成する。トリオンは比較的半減期が短く、アルファ壊変により放射性固体粒子である子孫核種へと壊変する。微粒子生成部門では微粒子発生器及び塩化ナトリウム水溶液を用いて塩化ナトリウムの微粒子を発生させる。混合部門では混合槽上部に設置したファンにより発生させたトリオンから壊変して生成される子孫核種及び微粒子を混合し、放射性微粒子を生成する。その後、曝露部門へ放射性微粒子を送り込み、測定器の曝露を行う。実験場の運用中はモニタリング部門で混合部門及び曝露部門の温度、相対湿度、気圧、放射性ガス濃度、放射性微粒子濃度、微粒子の個数濃度及び微粒子の粒子径分布を測定する。

#### 放射性ガス濃度の制御

放射性微粒子の生成に用いる放射性核種の放射能濃度は、親核種であるトリオンの放射能濃度 (トリオン濃度) に依存するため、トリオン濃度の制御を行った。放射性ガス生成部門を通過する空気の相対湿度を制御することにより、放射性ガスの放出量の制御を行った。Fig.2 に本曝露場で用いた加湿装置の概略図を示す。放射性ガス生成部門から混合部門へ送り込む全体の流量を  $10 \text{ L min}^{-1}$  とし、乾燥材を用いて一度送り込む空気を乾燥させる。その後加湿装置を用いて加湿空気  $X \text{ L min}^{-1}$  及び加湿装置を通さない乾燥空気  $Y \text{ L min}^{-1}$  に分岐させて合流させることにより、トリオン発生源へ送り込む空気の相対湿度を制御する。

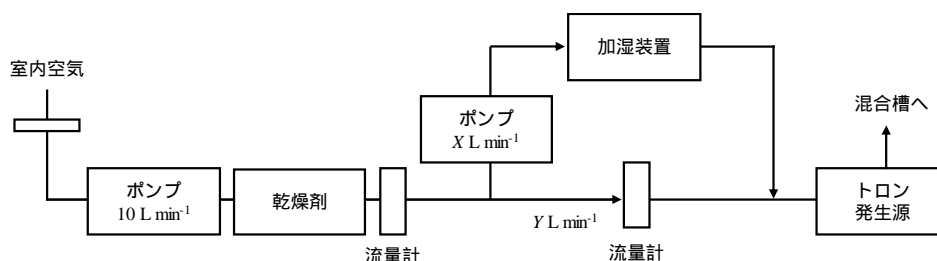


Fig.2 加湿装置の概略図

### 微粒子の個数濃度の制御

放射性微粒子濃度はその生成に用いる微粒子の個数濃度に依存するため、微粒子生成器 (Model3079, TSI, USA) から放出する空気の流量を制御することで微粒子の放出量を制御した。

### 微粒子の粒子径の制御

微粒子の粒子径により、環境中での微粒子の挙動が異なることはよく知られているため、微粒子の粒子径を制御した。微粒子発生器 (Model9302, TSI, USA) で用いる塩化ナトリウム水溶液の濃度を 1000–50000 ppm まで変化させることにより発生させる微粒子の粒子径を制御した。

### 放射性微粒子曝露の安定性試験

実際にトロン及び微粒子を混合させて曝露槽に送り込み、放射性微粒子曝露の安定性試験を行った。フィルタ (GF/F, Whatman, UK) を用いて曝露槽内の放射性微粒子を捕集し、プレナー型シリコン半導体検出器を用いて放射能濃度を測定した。また、電子走査式粒径分布測定器 (SMPS) を用いて、微粒子濃度及び粒子径分布を測定した。

## 4. 研究成果

### 放射性ガス濃度の制御

乾燥空気と湿潤空気の混合割合をそれぞれの経路における流量を調整した結果、相対湿度は 11%から 61%までの環境にすることを可能とした (Table 1)。また、Fig.3 に各相対湿度におけるトロン濃度を示す。加湿空気と乾燥空気の混合比を変化させることで相対湿度を制御でき、これにより発生するトロン濃度も制御可能であった。さらに、トロン濃度を 40 時間の曝露であれば 7%以下の変動に抑えられた。

Table 1 各流路の流量と相対湿度

X (L min <sup>-1</sup> )	Y (L min <sup>-1</sup> )	相対湿度 (%)
0	10	11 ± 1
4	6	39 ± 1
6	4	61 ± 1

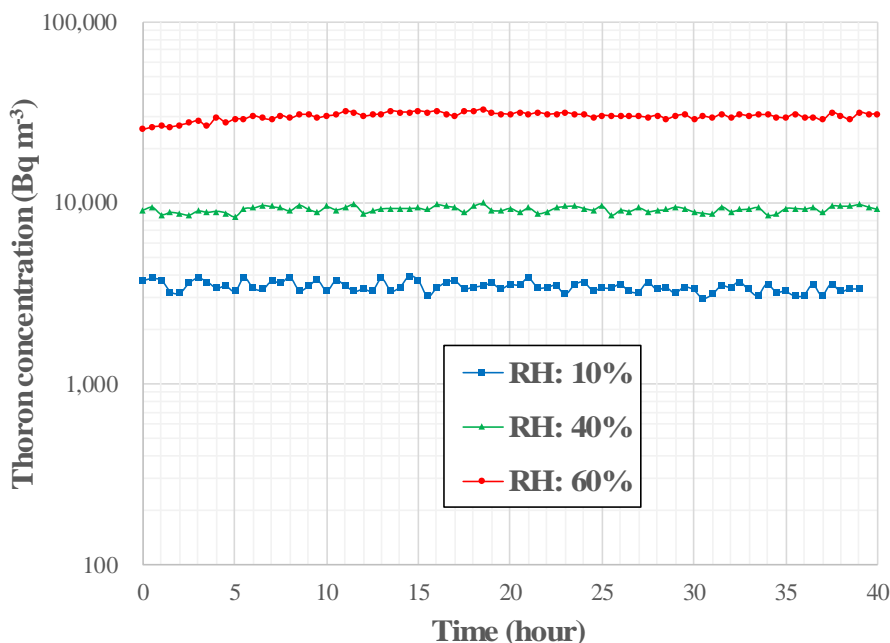


Fig. 3 各相対湿度におけるトロン濃度

### 微粒子の個数濃度の制御

微粒子発生器の流量と発生する微粒子の個数濃度の関係を Fig.4 に示す。微粒子発生器の流量を 1.2 L min<sup>-1</sup> から 2.0 L min<sup>-1</sup> に増加させることで、微粒子の個数濃度は 8.8 × 10<sup>8</sup> m<sup>-3</sup> から 2.3 × 10<sup>11</sup> m<sup>-3</sup> まで増加した。

### 微粒子の粒子径の制御

微粒子の発生に用いた塩化ナトリウム水溶液の濃度と発生する微粒子の粒子径の関係を Fig.5 に示す。塩化ナトリウム水溶液の濃度を 1000 ppm から 50000 ppm まで増加した

ことで、微粒子の粒子径は 59 から 112 nm まで増加し、それらの関係は直線関係にあった。この結果を用いれば、溶液の濃度を变化させることで任意の粒子径をもった微粒子を発生させる可能性を示唆した。

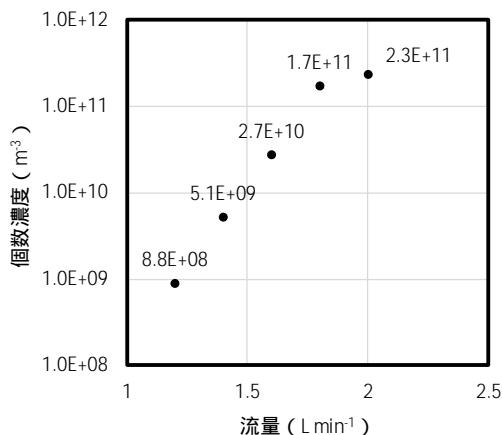


Fig.4 微粒子発生器の流量と微粒子個数濃度の関係

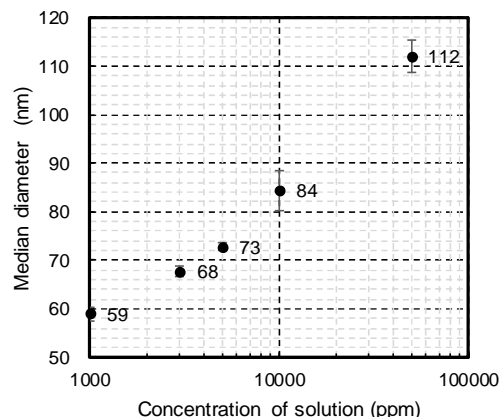


Fig.5 塩化ナトリウム水溶液の濃度と発生する微粒子の粒子径の関係

#### 放射性微粒子生成の性能試験

微粒子の個数濃度及び放射性微粒子濃度の経時変化を Fig.6 に示す。放射性微粒子濃度の測定のためのグラブサンプリングに伴い、一時的に微粒子の個数濃度が減少するが約 1 時間で回復した。よって、個数濃度はグラブサンプリングの影響を受けることなく安定した状態を保つことができる。今回の実験結果では、放射性微粒子濃度は少なくとも 12 時間は安定していた。

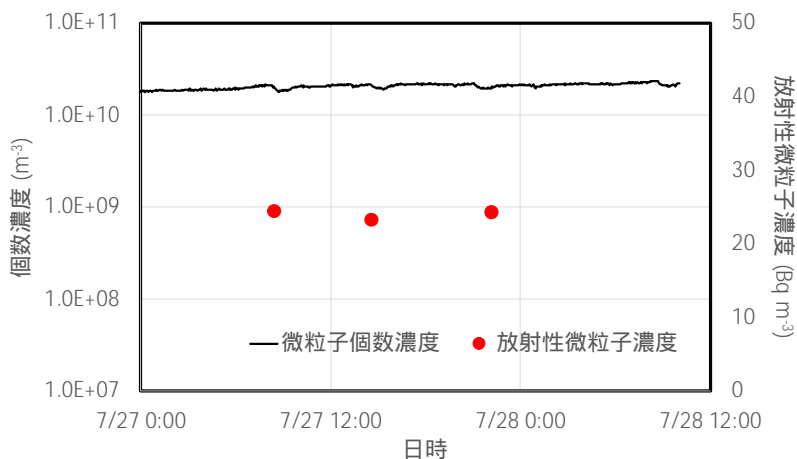


Fig.6 微粒子の個数濃度及び放射性微粒子濃度の経時変化

今後は、本研究において開発した放射性微粒子の曝露場で、任意の放射性微粒子濃度を安定して供給できるか検討する必要がある。また、本研究で報告した微粒子は粒子径の広がり大きい多分散粒子であったが、将来的には電子分級器を用いて粒子径の広がり小さい単分散粒子を用いた放射性微粒子の曝露場を目指す。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 17 件)

1. Ryohei Yamada, Taiki Odagiri, Kazuki Iwaoka, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami. Study of Chemical Etching Conditions for Alpha-particle Detection and Visualization Using Solid State Nuclear Track Detectors. Radiation Environment and Medicine. 8, 21-25 (2019). (査読有)
2. Hosoda Masahiro, Iwaoka Kazuki, Tokonami Shinji, Tamakuma Yuki, Shiroma Yoshitaka, Fukuhara Takahiro, Imajyo Yusuke, Taniguchi Jun, Akata Naofumi, Osanai Minoru, Tsujiguchi Takakiyo, Yamaguchi Masaru, Kashiwakura Ikuo. Comparative Study of Performance using Five Different Gamma-ray Spectrometers for Thyroid Monitoring

- under Nuclear Emergency Situations. Health Physics. 116, 81-87 (2019). (査読有)
3. Fukushi Yasuyo, Nakamura Ayumi, Itaki Chieko, Tokonami Shinji, Yamada Masatoshi, Mariya Yasushi. Mental and physical stress of the Fukushima disaster evacuees as estimated by the measurement of urinary 8-hydroxy-2'-deoxyguanosine. Experimental and Therapeutic Medicine. 16, 231-235 (2018). (査読有)
  4. AKATA Naofumi, KAKIUCHI Hideki, TANAKA Masahiro, SHIMA Nagayoshi, SHIROMA Yoshitaka, TOKONAMI Shinji, HOSODA Masahiro, ISHIKAWA Yoshio, FURUKAWA Masahide, SANADA Tetsuya. Development of rapid sampling system of atmospheric water vapor for tritium measurement. Plasma and Fusion Research. 13, 3405064-3405064, doi.org/10.1585/pfr.13.3405064 (2018). (査読有)
  5. Autsavapromporn Narongchai, Klunklin Pitchayaponne, Threeratana Chalot, Tuntiwechapikul Wirote, Hosoda Masahiro, Tokonami Shinji. Short Telomere Length as a Biomarker Risk of Lung Cancer Development Induced by High Radon Levels: A Pilot Study. International Journal of Environmental Research and Public Health. 15, 2152-2152, doi.org/10.3390/ijerph15102152 (2018). (査読有)
  6. Kazuki Iwaoka, Lorna Jean H. Palad, Eliza B. Enriquez, Fe M. dela Cruz, Christopher O. Mendoza, Juanario U. Olivares, Ryan Joseph Aniago, Christian L. dela Sada, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami. Preliminary Development of Thoron Exposure System in the Philippines. Science Diliman. 30, 87-95 (2018). (査読有)
  7. Takoukam Soh S.D., Saidou, Hosoda M., Ndjana Nkoulou II J.E., Akata N., Bouba O., Tokonami S. Natural radioactivity measurements and external dose estimation by car-borne survey in Douala city, Cameroon. Radioprotection. 53, 255-263, doi.org/10.1051/radiopro/2018032 (2018). (査読有)
  8. Tokonami Shinji. Some thought on new radon conversion factors for radon progeny inhalation. Japanese Journal of Health Physics. 53, 282-293 (2018). (査読有)
  9. 床次眞司、細田正洋. 自然界の放射線-国内外の自然放射線レベルと高線量域の放射線量-. 公衆衛生. 82, 809-815, doi.org/10.11477/mf.1401209003 (2018). (査読有)
  10. Kazuki Iwaoka, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami. Installation of System at Hirosaki University, Japan, for Estimating Radionuclide Atmospheric Dispersion Levels. Radiation Environment and Medicine. 6, 104-107 (2017). (査読有)

他7件

[学会発表](計29件)

1. Shinji Tokonami. Our history of radon research and commitment to new radon dosimetry. Seminar: Sharing experiences on radon measurements: research, methods and devices (INAIL). 2019年, イタリアローマ市。(招待講演)
2. Narongchai Autsavapromporn, Nahathai Dukaew, Pitchayaponne Klunklin, Ariyaphong Wongnoppavich, Sittiruk Roytrakul, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami. Identification of novel biomarkers for early detection of lung cancer from high radiation areas: A preliminary study on proteomic analysis. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
3. Kenta Higuchi, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami, Mayumi Tsuji, Suminori Akiba. Associations between ambient radon concentration and Mt. Sakurajima' eruptions. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
4. Takahito Suzuki, Masahiro Hosoda, Naofumi Akata, Weihai Zhuo, Kazuki Iwaoka, Kanako Yamanouchi, Yuki Tamakuma, Yoshitaka Shiroma, Masahide Furukawa, Shinji Tokonami. Development of a passive radon and thoron exhalation rate monitor for long-term and large-scale survey. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
5. Saidou, Shinji Tokonami, Masahiro Hosoda, Ndjana Nkoulou Joseph Emmanuel, Naofumi Akata, Tchente Siaka Yvette Flore. Natural radiation exposure to the public in mining and ore bearing regions of Cameroon. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
6. Zora S. Zunic, Ljudmila Benedik, Sarata Kumar Sahoo, Rawiwan Kritsanuwat, Nenad Veselinovic, Zdenka Stojanovska, Shinji Tokonami. Distribution of uranium in urine, hair and nails in residents of Niska Banja Town, A high natural background radiation area of Serbia. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
7. Chutima Kranrod, Supitcha Chanyotha, Phongpheat Pengvanich, Rawiwan Kritsanuwat, Thamaborn Ploykrathok, Phongyut Sriploy, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami. Car-borne survey of natural background gamma dose rate in eastern, western and

- southern Thailand. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
8. Kazuki Iwaoka, Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami, Eliza B. Enriquez, Lorna Jean H. Palad. Calculation tool for respiratory target deposition depending on aerosols particle distribution. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
  9. S. K. Sahoo, S. Tokonami, T. Ishikawa, A. Sorimachi, Y. Omori, M. Hosoda, R. C. Ramola. Naturally occurring radionuclides and selected rare earth elements in air particulates of an Indian high radiation background area. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.
  10. Michiya Sasaki, Ryohei Yamada, Naofumi Akata, Shinji Tokonami, Masahiro Hosoda, Kazuki Iwaoka, Chanis Pornnumpa, Hiromi Kudo, Kumar Sahoo, Dadong Iskandar, Eko Pujadi. Dose variation measurement at the high background radiation area in Indonesia. 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas (ICHLERA2018). 2018年9月24日-27日, 青森県弘前市.

他 19 件

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称： 放射性微粒子製造システムおよび放射性微粒子製造方法

発明者： 床次眞司

権利者： 弘前大学

種類： 特許

番号： PCT/JP2018/9285

出願年： 2018 年

国内外の別： 国外

取得状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。