

令和 3 年 5 月 1 日現在

機関番号：11101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K10023

研究課題名(和文) ラドンによる肺がんリスク高潜在地域を調査するための可搬型測定器の開発と応用

研究課題名(英文) Development and application of a portable measuring device for investigation of high risk potential areas due to radon inhalation

研究代表者

細田 正洋 (Hosoda, Masahiro)

弘前大学・保健学研究科・講師

研究者番号：30457832

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：タバコに次ぐ肺がんのリスク要因として知られるラドンの発生源である土壌や建材等からの湧出量(散逸率)を評価するための可搬型測定器を開発した。開発した測定器は約4Lの蓄積容器を備え、ZnS(Ag)シンチレータからの発光を6本の光電子増倍管を用いて検出する。室内実験と野外観測によって開発した測定器の性能評価を行った。基準測定器と開発した測定器の比較測定を野外において実施し、開発した測定器で得られる計数率からラドン・トロン散逸率への換算係数を得た。ラドンおよびトロン散逸率の基準値は、ステンレス製蓄積容器と静電捕集型ラドン・トロンモニタを用いて循環法によって評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、国際放射線防護委員会はラドンの吸入被ばくによる線量評価に用いられる線量係数(放射能濃度から実効線量への換算係数)は従来の約2倍程度であることを報告したことから、国際的にラドンに対する健康影響に関する議論が活発になっている。ラドンの発生源は土壌、建材、岩石、水などあらゆるものからである。したがって、その発生源情報(散逸率)を把握することは、ラドンの吸入被ばくによる潜在的リスクを推定するだけでなく、高い濃度レベルの家屋が発見された場合の低減策の検討にも役に立つ。開発した測定器は、取り扱いが簡単で可搬性に富むことから、ラドン・トロンの潜在的リスク評価の調査に応用することが可能である。

研究成果の概要(英文)：Radon is normally generated by alpha-decay from radium in soil, rocks, building materials, and water. Radon inhalation is believed to increase the risk of lung cancer and is second only to tobacco smoking as a risk factor. In this study, a portable type radon and thoron exhalation monitor was developed to know the risk potential due to radon inhalation based on the accumulation method. The monitor developed in this study is equipped with an accumulation chamber of 4 L volume to accumulate radon and thoron gasses from the materials. Alpha-particles from radon, thoron and their decay products are detected by ZnS(Ag) scintillator which is connected to six photomultiplier tubes. In the field survey, we evaluated the conversion factor from counting rates obtained by the developed monitor to the radon and thoron exhalation rates by the comparative measurements with a circulation method which is composed an accumulation chamber and an electrostatic radon and thoron monitor.

研究分野：保健物理学

キーワード：ラドン トロン 散逸率 測定器 ZnS(Ag) 光電子増倍管 性能評価 循環法

1. 研究開始当初の背景

- (1) 肺がんのリスク要因として知られるラドンの発生源は、主として土壌や建材などである。そのリスクポテンシャルを知る方法の一つとして散逸率を評価する手法がある。散逸率とは、ラドン発生源の単位面積・単位時間あたりに放出するラドンの放射能として定義される。散逸率の標準的な測定手法では、地表面から散逸するラドンを蓄積する容器とラドンモニタが併置される。この手法は測定精度が高いものの、測定値が得られるまでに数時間から半日程度の時間を要する。現在、国内外の企業がそれぞれ製品として散逸率測定器を販売している。海外の測定器は、多湿環境下では測定値が低く評価され、その測定値を補正することもできないため高温多湿の屋外調査には使用することができない。また、我が国で開発された測定器は短時間で測定できるが、大型で重いため可搬性に劣るという課題がある。
- (2) 近年、インドネシア・スラウェシ島においてラドン濃度が 1000 Bq/m^3 を超えるこれまでにない高い地域があることが報告された¹⁾。同島の住民の肺がんリスクを低減させるためには、ラドン・トロンの放出源や高濃度化の要因を解明する必要がある。そこで、可搬性に優れ、測定環境に依存せず短時間で散逸率を評価する測定器の開発が望まれている。

2. 研究の目的

大気中のラドンや放射性同位体であるトロンの変動要因として地表面からのラドンやトロンの散逸率があげられる。したがって、ラドンやトロンの高潜在地域の特定のための有用な手法として散逸率の評価がある。本研究では、現在製品として販売されている散逸率測定器の抱える問題を解決し、可搬性に優れ、いかなる測定環境にも対応可能な短時間で評価できるラドン・トロン散逸率測定器の開発を行う。さらに、開発した測定器の野外観測での適用について検討する。

3. 研究の方法

(1) ラドン・トロン散逸率の測定器開発の概要

ラドンやトロンからは α 線が放出されるが、その検出には α 線に対して高感度の銀活性化硫化亜鉛(ZnS(Ag))シンチレータを用いる。シンチレータとは、放射線のエネルギーを吸収することで発光する物質である。シンチレータからの発光は光電子増倍管で検出し、電気信号に変換される。本研究では、シンチレータと光電子増倍管をライドガイドを介して接続せず、光学グリスを使って ZnS(Ag)シンチレータを6つの光電子増倍管に直接塗布した。6つの光電子増倍管で得られた電気信号は外部に接続される計数装置に導かれる。計数装置にはそれぞれの信号を合算するプログラムが内蔵されており、ラドン・トロンによる計数値を記録する。地表面から放出するラドン、トロン及びそれらが放射性壊変することで生成される子孫核種からの α 線の飛程は約8cmである。そこで、地中と大気との境界のラドン・トロン及び子孫核種からの α 線が直接シンチレータに到達しないように、蓄積容器の深さは10cmとした。

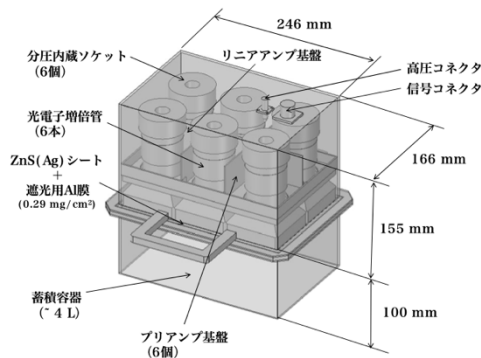


図1 ラドン・トロン散逸率測定器の概要 (設計段階での完成予想図)

(2) 開発した測定器の性能評価

① 印加電圧と計数効率の評価

線源を検出器から一定距離(密着)にセットするための治具を作成した。本測定器では、6つの光電子増倍管を使用しているため、シンチレータを6つの領域に分割した。それぞれの領域に ^{241}Am 線源(測定時の表面放出率: $490.5 \pm 5.8 \text{ s}^{-1}$)を設置し、測定開始電圧から1200Vまで100V間隔で1分間計測をそれぞれ5回繰り返した。得られた結果より、計数値の印加電圧特性曲線を作成した。計数値が一定領域のほぼ中央の印加電圧を使用電圧とした。

機器効率は、使用電圧で得られた計数率(cps)を線源の表面放出率で除すことで求められる。さらに、計数効率は機器効率と線源効率の積で評価される。ここで、線源効率は表面放出率を放射能($976 \pm 19 \text{ s}^{-1}$)で除すことで求められる。

② 温度変化に対する計数率の評価

恒温槽内に開発した測定器を設置し、 ^{241}Am 線源を用いて、設定温度を5°C、10°C、20°C、30°Cおよび40°Cとして各温度条件において1分間隔で計数値をそれぞれの条件で30回の連続測定した。恒温槽内の温度はデータロガー機能付き温度センサ(TR-73u、株式会社ティアンドディ)を用いて1分間隔で連続測定した。

③ 計数率からラドンおよびトロン散逸率への換算係数の評価

本研究では、開発した測定器で得られる計数率から散逸率への換算係数を評価する。トロンの半減期は約1分でありラドン（約3.8日）と比べて短いことから、その散逸率の評価はラドンと比べて難しい。そこで、トロン散逸率の基準となる測定手法について検討した。トロン散逸率の基準値の測定には、蓄積容器で地表面を覆い連続的に容器内の空気を循環させながら測定する循環法を用いた。蓄積容器内のトロン濃度の測定には、静電捕集型ラドン・トロンモニタ（RAD7、DURRIDGE Company Inc.）を用いた。野外調査を実施する前に、室内実験によって捕集流量がトロン散逸率の測定値に与える影響について検討した。トロン散逸率は8 cm程度の土壌厚で十分に飽和することが明らかになっているため、花崗岩風化土壌を8 cmの厚さになるように容器内に敷き詰めた。蓄積容器（3.7 L）を土壌表面に設置し、捕集流量を0.2 L/minから2.0 L/minまで0.2 L/min間隔で変化させ、蓄積容器内のトロン濃度を計測した。ある時間 t におけるトロンの原子数 N の変化は（1）式で示すことができる。

$$\frac{dN}{dt} = \frac{ES}{\lambda} - \lambda N - \frac{v}{V}N + k\frac{v}{V}N \quad (1)$$

ここで、 λ はトロンの壊変定数（ s^{-1} ）、 V は蓄積容器の体積（ m^3 ）、 S は蓄積容器下の面積（ m^2 ）、 v は捕集流量（ m^3/s ）、 k は蓄積容器内のトロンが実験系を循環する間の減衰を考慮した定数、 V' は実験系のチューブの全体積（ m^3 ）である。（1）式より（2）式が得られる。

$$E = \frac{C\{\lambda V + (1-k)v\}}{S\{1 - e^{-(\lambda + (1-k)\frac{v}{V})t}\}} \quad (2)$$



図2 野外調査の様子

また、微差圧計（ZN-DPX21-S、OMRON）を用いて、各流量設定で測定した際の蓄積容器内外の差圧を計測した。次に、基盤地質図をもとに沖縄県内の17ヶ所において、ステンレス製蓄積容器（体積：15.7 L、蓄積面積：0.105 m^2 ）とRAD7を用いてラドンおよびトロン散逸率を循環法で測定（測定時間は1ヶ所あたり3時間とした）するとともに、蓄積容器の周辺3ヶ所に開発した測定器を設置して、30秒間隔で30分間の計数値を測定した（図2）。

4. 研究成果

(1) 印加電圧と計数効率の評価結果

図3に計数値の印加電圧特性曲線を示す。図3に示すように、いずれの領域でも800 V以上の印加電圧で計数値が飽和（プラトー領域）した。したがって、印加電圧の変動を考慮して、使用電圧をプラトー領域のほぼ中央に相当する1000 Vに決定した。本実験で得られた1000 Vにおける計数値は16,452 countsから16,767 countsであり、それぞれの計数値に対する相対不確かさは0.2%~0.4%であった。各領域で得られた1分あたりの計数値から1秒あたりの計数値に換算し、使用した ^{241}Am 線源の表面放出率から機器効率を評価した。その結果、機器効率は55.9%~57.0%と評価され、平均値は $56.3 \pm 0.6\%$ ($k=2$)であった。本実験で用いた ^{241}Am 線源の線源効率が 0.50 ± 0.01 であったため、計数効率は $28.3 \pm 0.8\%$ ($k=2$)と評価された。相対拡張不確かさは2.7%であり、6つの領域の計数効率は安定しており α 線の入射位置による感度の違いは小さいことがわかった。

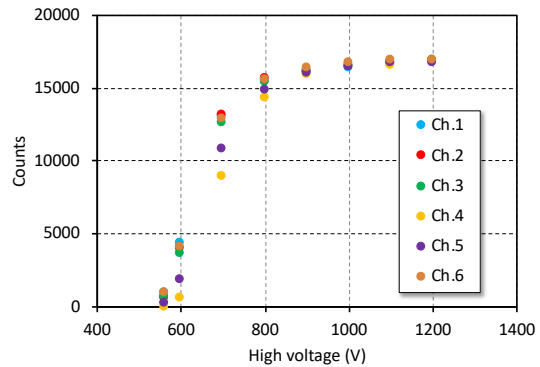


図3 計数値の印加電圧特性曲線

(2) 温度変化に対する計数率の評価結果

図4に絶対温度と計数値との関係を示す。この図では、20°C（平均温度：20.1°C（293.3 K））で得られた計数値を基準とした相対値で示している。実測温度は、 $5.4 \pm 0.0^\circ\text{C}$ （278.6 K）、 $10.5 \pm 0.0^\circ\text{C}$ （283.7 K）、 $20.1 \pm 0.0^\circ\text{C}$ （293.3 K）、 $30.0 \pm 0.1^\circ\text{C}$ （303.2 K）、 $40.5 \pm 0.1^\circ\text{C}$ （313.7 K）であった。それぞれの実験条件で

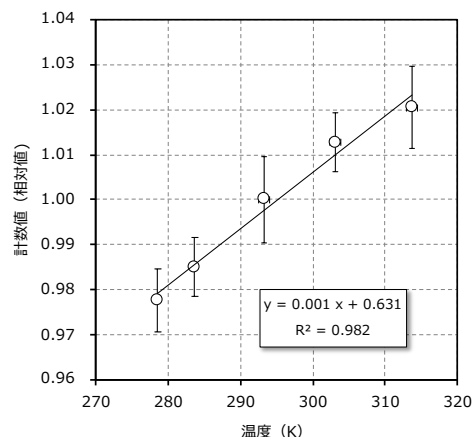


図4 絶対温度と計数値との関係

得られた計数值 (30 回の平均値) は $16,438 \pm 117$ counts (278.6 K) から $17,157 \pm 153$ counts (313.7 K) であり、相対標準偏差は 0.7% ~ 0.9% であった。図 4 に示すように、実験の温度範囲と計数值との間には強い正相関 ($R^2 = 0.982$) が認められ、得られた回帰式を用いて野外観測時の気温から 20°C における計数值への補正が可能である。図 4 に示す回帰式の逆数が補正係数となる。

(3) 捕集流量がトロン散逸率の測定値に与える影響

トロン散逸率と捕集流量の関係を図 5 に示す。トロン散逸率は、捕集流量の増加にともない 1.4 L/min までは増加傾向を示した。これは、捕集流量の増加により、蓄積容器内の気圧が外と比べて減少することで、吸い出し効果²⁾によってトロンの散逸が促進したためであると考えられる。捕集流量の増加にともない差圧は増加傾向を示した (図 6)。本実験で用いた土壌の厚さが 8 cm であった。その結果、実環境とは異なり 8 cm 以深にトロンの発生源がないため、それ以深の土壌からトロンが強制的に吸い出されることはない。よって、トロン散逸率が飽和した可能性がある。さらに、捕集流量の増加にともない蓄積容器内の気圧が減少し、トロン濃度の低い蓄積容器外の室内空気が蓄積容器内に流入する可能性もある。その結果、蓄積容器内のトロン濃度が希釈され、見かけ上飽和したようにみえる。いずれにしても、0.2 L/min から 1.4 L/min までの範囲においては、トロン散逸率と捕集流量とは直線関係にあったため、直線回帰を得た。回帰式の切片より、本実験に用いた土壌試料のトロン散逸率は 1.4 ± 0.2 Bq/m² s と評価された。

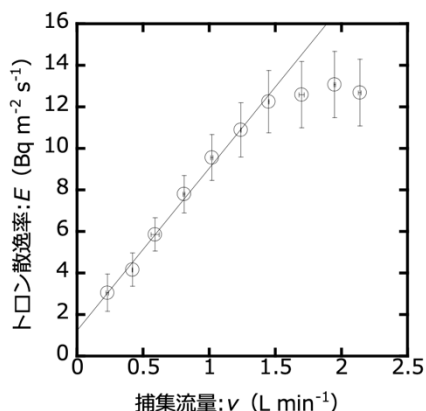


図 5 トロン散逸率と捕集流量との関係

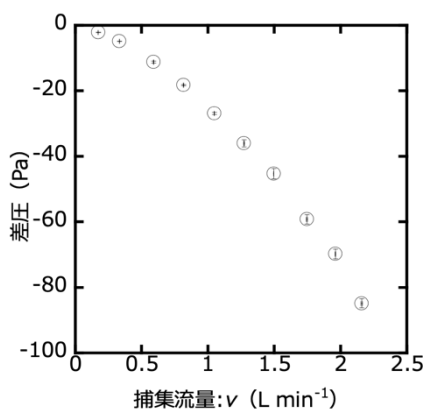


図 6 差圧と捕集流量との関係

(4) 野外観測によるラドンおよびトロン散逸率への換算係数の評価

理論的には³⁾、地表面から散逸するトロンおよびその壊変生成核種による計数值は 7 ~ 8 分程度で飽和する (図 7 の黄緑の曲線)。一方、ラドンとその壊変生成核種による計数值はそれ以降も増加する (図 7 の水色の曲線)。よって、ラドンとトロンによる計数率の時間変化は図 7 の赤線で示すようになる。したがって、開発した測定器では既報³⁾にしたがひ、10 分後に得られた計数率からバックグラウンド計数率を差し引いた計数率を、トロンによる計数値 (N_{Tn}) とした。さらに、30 分後の計数率から N_{Tn} を差し引いた値を、ラドンによる計数率 (N_{Rn}) とした。

文献 4) にしたがひ、ラドン散逸率を評価した。図 2 に示すように、RAD7 を用いて 3 時間の測定で得られたラドン濃度の経時変化の一例を図 8 に示す。この場合、得られたラドン濃度の経過時間に対する傾斜は 284 Bq/m³ h である。一方、平衡時 (約 30 日後) のラドン濃度は 36,414 Bq/m³ と評価できる。これらの結果より、実効壊変定数は $2.17 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ($= 284 \text{ Bq/m}^3 \text{ h} / 36,414 \text{ Bq/m}^3 / 3,600 \text{ s/h}$) と計算される。得られたある時間 t におけるラドン濃度 C_t 、実効壊変定数 λ_{eff} 、蓄積容器下の面積 S と蓄積体積 V を用いると、この例でのラドン散逸率 E は (3) 式より $11.4 \text{ mBq/m}^2 \text{ s}$ と評価される。

$$E = \frac{C_t \cdot \lambda_{\text{eff}} \cdot V}{S(1 - e^{-\lambda_{\text{eff}} t})} \quad (3)$$

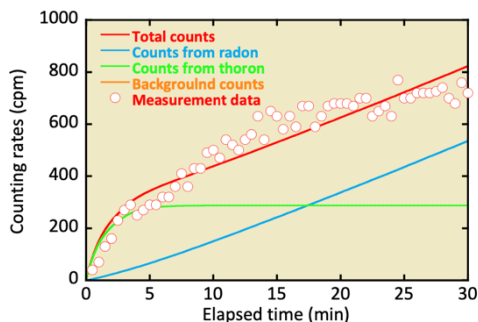


図 7 各成分による計数率の時間変化 (理論計算値と実測値の比較)

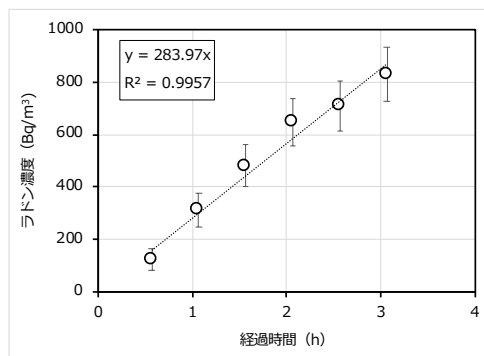


図 8 ラドン濃度の経時変化の例

トロン散逸率の評価には、30分間隔で3時間の測定で得られたトロン濃度の平均値を用いた。沖縄県内17ヶ所におけるRAD7による測定で評価されたラドン散逸率 ($\text{mBq/m}^2\text{s}$) と開発した測定器で得られた N_{Rn} (cpm) との関係より、ラドン散逸率への換算係数は 1.66 ± 0.34 ($\text{mBq/m}^2\text{s}/\text{cpm}$) と評価された。同様に、RAD7による測定で評価されたトロン散逸率 ($\text{mBq/m}^2\text{s}$) と開発した測定器で得られた N_{Tn} (cpm) との関係より、トロン散逸率への換算係数は 42.3 ± 4.6 ($\text{mBq/m}^2\text{s}/\text{cpm}$) と評価された。

本研究によって可搬性に富むラドン・トロン散逸率測定器を開発することができた。さらに、測定器で得られる計数率からそれぞれの散逸率への換算係数を評価することができた。研究開始当初の目的は、近年発見された高自然放射線地域であるインドネシア・スラウェシ島のラドン濃度の高濃度の要因解明のために現地において散逸率測定を実施し、そのマッピングを行う計画であった。しかしながら、新型コロナウイルスの拡散により渡航を断念せざるを得なかった。したがって、新型コロナウイルスの状況を見るとともに、そのデータ取得に関しては今後の課題としたい。

参考文献

- 1) Syaeful, H., Sukadana, I.G., Sumaryato, A., 2014. Radiometric mapping for naturally occurring radioactive materials (NORM) assessment in Mamuju, West Sulawesi. *Atom Indonesia* 40, 33–39.
- 2) Hosoda, M., Ishikawa, T., Sorimachi, A., Tokonami, S., Uchida, S., 2011. Development and application of a continuous measurement system for radon exhalation rate. *Rev. Sci. Instrum.* 82, 015101.
- 3) Saegusa, J., Yamasaki, K., Tsujimoto, T., Yamauchi, T., Shimo, M., 1996. Development of an apparatus for measuring ground exhalation rates of ^{222}Rn and ^{220}Rn . *Environ. Int.* 22, S483–S490.
- 4) Tuccimei, P., Moroni, M., Norcia, D., 2006. Simultaneous determination of ^{222}Rn and ^{220}Rn exhalation rates from building materials used in Central Italy with accumulation chambers and a continuous solid state alpha detector: influence of particle size, humidity and precursors concentration. *Appl. Radiat. Isot.* 64, 254–263.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Modibo Oumar Bobbo, Tamakuma Yuki, Suzuki Takahito, Yamada Ryohei, Zhuo Weihai, Kranrod Chutima, Iwaoka Kazuki, Akata Naofumi, Hosoda Masahiro, Tokonami Shinji	4. 巻 18
2. 論文標題 Long-Term Measurements of Radon and Thoron Exhalation Rates from the Ground Using the Vertical Distributions of Their Activity Concentrations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Environmental Research and Public Health	6. 最初と最後の頁 1489 ~ 1489
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ijerph18041489	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 M. Hosoda, E. D. Nugraha, N. Akata, R. Yamada, Y. Tamakuma, M. Sasaki, K. Kelleher, S. Yoshinaga, T. Suzuki, P. Chanis, M. Furukawa, M. Yamaguchi, K. Iwaoka, T. Sanada, T. Miura, Kusdiana, D. Iskandar, E. Pujadi, I. Kashiwakura, S. Tokonami	4. 巻 750
2. 論文標題 A unique high natural background radiation area ? Dose assessment and perspectives	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science of The Total Environment	6. 最初と最後の頁 142346 ~ 142346
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.scitotenv.2020.142346	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Hosoda Masahiro, Tokonami Shinji, Suzuki Takahito, Janik Miroslaw	4. 巻 138
2. 論文標題 Machine learning as a tool for analysing the impact of environmental parameters on the radon exhalation rate from soil	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Radiation Measurements	6. 最初と最後の頁 106402 ~ 106402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.radmeas.2020.106402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 細田正洋	4. 巻 54
2. 論文標題 ラドンに対する新しい線量換算係数の影響に関する技術会合の参加報告	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 保健物理	6. 最初と最後の頁 226-230
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 7件）

1. 発表者名 細田正洋, Eka Djatnika Nugraha, Miki Arian Saputra, 赤田尚史, 山田棕平, 佐々木道也, 玉熊佑紀, 鈴木崇仁, 岩岡和輝, 古川雅英, 真田哲也, 山口平, 吉永信治, Abarrul Ikram, 柏倉幾郎, 床次真司
2. 発表標題 インドネシア・マムジュにおけるラドンの高濃度化の要因調査
3. 学会等名 日本保健物理学会第52回研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Hosoda, Haruyuki Ogino
2. 発表標題 Exposure and control due to indoor radon in dwellings and workplaces in Japan
3. 学会等名 Technical Meeting on the Implications of the New Dose Conversion Factors for Radon, (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Hosoda
2. 発表標題 Environmental monitoring and dose estimation at Mamuju
3. 学会等名 Expert Mission on Mamuju Projects” Joint Research (MoU) BATAN & Hirosaki University (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Hosoda
2. 発表標題 National effective dose from natural radiation sources in Japan
3. 学会等名 Bilateral Seminar/Workshop on Radiation Research and Its Related Issues (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	古川 雅英 (Furukawa Masahide) (40238671)	琉球大学・理学部・教授 (18001)	
連携研究者	真田 哲也 (Sanada Tetsuya) (00544272)	北海道科学大学・保健医療学部・教授 (30108)	
連携研究者	床次 眞司 (Tokonami Shinji) (80247254)	弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授 (11101)	
連携研究者	赤田 尚史 (Akata Naofumi) (10715478)	弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授 (11101)	
連携研究者	岩岡 和輝 (Iwaoka Kazuki) (70466051)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・その他部局等・研究員 (82502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------