

一般論文

アクチバブルトレーサーの利用による隔離施設から 発生する空気汚染の評価に関する実験的検討

渡辺 征紀*¹, 鈴木間左支*¹, 岡林 弘之*¹
大野 茂*¹, 本郷 昭三*¹

(1972 年 7 月 11 日受理)

An Experimental Study on the Rate of Aerosol Release from Containments by Using an Activable Tracer

Seiki WATANABE, *¹ Masashi SUZUKI, *¹ Hiroyuki OKABAYASHI, *¹
Shigeru OHNO*¹ and Shozo HONGO*¹

The paper describes some results on the simulated experiment by using an activable tracer to evaluate the protective effect of a fume hood and a glove box where highly hazardous materials should be handled.

It is shown that the amount of aerosol to be inhaled by a worker during a standard operation time (10 min) will be in the order of 10^{-5} of the amount handled in case of aerosol generation and 10^{-9} for usual chemical procedure. This suggests, that for an example, the amount of plutonium to be handled in the hood should be limited below $10 \mu\text{Ci}$ for usual procedure, in order to maintain one twentieth of the MPC level in the working area. Several types of simulated accidents during aerosol generation were tested using a glove box with leak rate of 0.1 volume percent per 2 hours. Any measurable air contamination was not observed near the working area, except for a few types of accident such as a cut finger and a pin hole of the glove.

I 緒 言

有害な物質の取扱いに必要な隔離施設の代表であるフードおよびグローブボックスから、汚染空気が漏洩する場合があるが、これにより生ずる人体の内部汚染に対する防護、および安全性の評価の観点から模擬実験を行ない、検討を加えた。とくに毒性の強いプルトニウムのような物質を取扱う場合には、使用する量、作業内容、もしくは事故の形態などによって、これら隔離施設の安全性は大きく変化する。そこで本実験は、つぎの2項目に

ついて行なった。

1) 放射化学実験その他放射性物質の取扱いにおいて、もっとも一般的に使用されているオークリッジ形式のヒュームフードについて、簡単な化学操作を実施した場合のフード外への有害物質の漏洩の程度を求め、フードを使用する場合の安全性に関する指標を求めた。

2) グローブボックス事故に伴うグローブボックスからの汚染の漏洩について、模擬事故を起こし、事故形態別にエアロゾルの漏洩の程度を実験的に求めた。

実験的に空気汚染を発生させる場合、発生源となる物質の選択が必要である。きわめて有害な物質は、非常に微量な汚染が問題となるので、これを実験的に模擬するために、放射化分析の利用により検出感度が良く、好条

*¹ 放射線医学総合研究所; 千葉市穴川 4-9-1 (〒280)
National Institute of Radiological Science; 9-1, Anagawa 4-chome, Chiba-shi, Chiba-ken.

件の場合は $10^{-11}g$ 程度まで検出定量が可能であり, しかもエアロゾルとして発生が容易なユーロピウム (Eu) を採用した。

II 実験および結果

1. フード

(1) 気流および面速測定

実験に用いたフードを Fig. 1 に示す。フードの気流特性を知るため, 前面扉, 上下の調整ダンパーを変化させた場合の面速, および気流の測定を実施した。面速測定は, フード前面扉個所の断面 30 点の空間について, 熱線式風速計で測定した。この結果, 調整ダンパーおよび前面扉が全開の場合には, 開口面全面が 0.5~0.6 m/sec, また前面扉が半開の場合には 1m/sec のそれぞれ等面速で換気されていることが判明した。フード内での気流については, スモークテスト法により測定した。この結果を Fig. 2 に示す。

(2) フードの作業に伴う空気汚染

a) フード内で連続的にエアロゾルを発生させた場合: エアロゾルの粒度特性が既知の改良型 Dautrebande 発生器を使用し, 粒子径 0.6 ミクロン (MMD) のエアロゾルを連続的にフード内で発生させ, フード内の空気中濃度*2 とフード外のフード前面の空気中濃度*3 の比 C_1 を求めた。

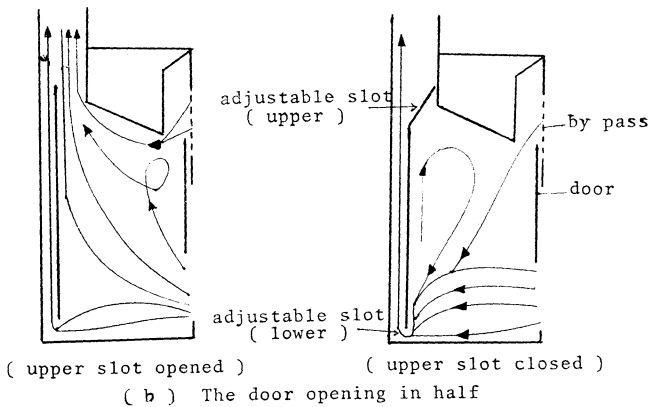
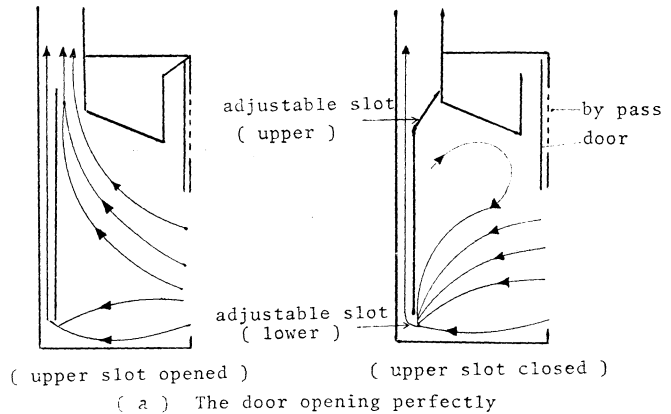


Fig. 2 Patterns of air flow inside the fume hood.

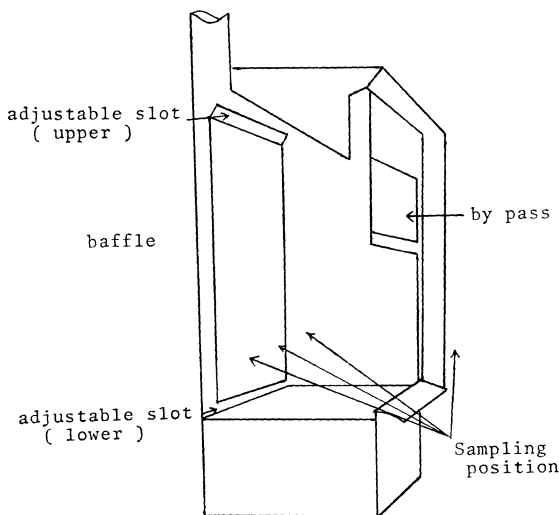


Fig. 1 Sectional view of fume hood.

$$C_1 = \frac{\text{フード内の空気中濃度}^{*2} (g/l)}{\text{フード外の空気中濃度}^{*3} (g/l)}$$

サンプリング時間中に, エアロゾル発生器から発生したエアロゾルの全量 (発生器の特性¹⁾ から, 単位時間内に発生した量を推定) を $Q(g/min)$ とし, フード外へ漏洩するエアロゾル濃度 (毎分 1.5l の吸引速度でサンプリングする) を $A(g/l)$ とする。またこのフードの作業者の呼吸率を 15(l/min) とすると, 作業者が吸入するエアロゾルの全量は 15A(g/min) となる。そこで, 作業者が吸入するエアロゾルの量 (15A) の, 単位時間中に

*2 フード内の中心および中心から 30cm の左右の点の合計 3 点に, 固定の低流量率サンプラーを設置し, 同時吸引してエアロゾルの濃度を測定し, その平均値をフード内の空気中濃度とした。

*3 フードを使用している作業者に装着したパーソナルサンプラー, およびフード外のフード扉面の両端に固定した 2 台の固定サンプラーの合計 3 点で同時に吸引し, その平均値をフード外の空気中濃度とした。

Table 1 Release of aerosols from the fume hood in case of generation of aerosols.

Adjustable slots (upper and lower)	Door	C ₁	C ₂
Both slot open	open fully	700~ 3500	2.8×10 ⁻⁶
	open in half	3000~11000	2.3×10 ⁻⁶
Lower slot open	open fully	8000~20000	1.5×10 ⁻⁶
	open in half	8000~15000	1.1×10 ⁻⁶
Upper slot open	open fully	600~ 2300	5.6×10 ⁻⁶
	open in half	2000~ 3600	1.5×10 ⁻⁶

$$C_1 = \frac{\text{Air contamination level inside the hood (g/l)}}{\text{Air contamination level outside the hood (g/l)}}$$

$$C_2 = \frac{\text{Amount of aerosol inhaled by worker during operation (g)}}{\text{Amount of aerosol generated in the hood (g)}}$$

フード内に発生したエアロゾルの全量 (Q) に対する比 C₂ を求めた。

$$C_2 = \frac{15A}{Q}$$

この結果を **Table 1** に示す。

b) 蒸発乾固操作を実施した場合：蒸発乾固操作の代表的な例として、つぎの操作を行なった。8 規定硝酸 100ml をビーカーに取り、これに酸化ユーロピウム粉末 1g を添加して溶解し、この溶液を砂浴上で突沸が生じ

ないように蒸発乾固した。この操作に伴う空気汚染の程度を、前項と同じ方法で測定した。10 分間にわたり、この操作を行なった場合 (作業者の吸入空気量 150l) の作業者に吸入されるエアロゾルの全量の、使用量全量に対する比 P₁ を求めた。この結果を **Table 2** に示す。

c) 粉末処理過程での空気汚染レベル：フード内での微量粉末処理の一例として、珪藻乳鉢を使用して酸化ユーロピウム 1g を粉碎し、他の容器へ移し変える操作を行なった場合の空気汚染レベルを (b) 項と同じ方法

Table 2 Release of sprashing particles from the hood in case of evaporation to dryness.

Ajustable slots(upper and lower)	Door	P ₁
Both slot open	open fully	5.0×10 ⁻¹⁰
	open in half	7.7×10 ⁻¹⁰
Lower slot open	open fully	5.0×10 ⁻¹⁰
	open in half	9.0×10 ⁻¹⁰
Upper slot open	open in half	1.5×10 ⁻¹⁰

$$P_1 = \frac{\text{Amount of aerosol inhaled by worker during operation* (g)}}{\text{Amount of the material handled in the hood (g)}}$$

*10 min.

Table 3 Release of aerosols from the fume hood in case of grinding of the material.

Ajustable slots (upper and lower)	Door	P ₂
Both slot open	open fully	1.7×10 ⁻¹⁰
	open in half	5.9×10 ⁻¹⁰
Lower slot open	open fully	7.7×10 ⁻¹⁰
	open in half	7.7×10 ⁻¹⁰
Upper slot open	open fully	3.0×10 ⁻¹⁰

$$P_2 = \frac{\text{Amount of aerosol inhaled by the worker during operation* (g)}}{\text{Amounts of materials handled in the hood (g)}}$$

*10 min.

Table 4 Air contamination levels outside of glove box in simulated incidents.

Type of incident	Sampling time (min)	Pressure of glove box (mmAq.)	Air contamination level (%)			Protection indicator P_6
			P_3	P_4	P_5	
Over pressurization	15	35±5	<0.01	<0.01	<0.01	1.9×10^{-10}
Open the door of air lock	15	-20±5	<0.01	<0.01	<0.01	1.9×10^{-10}
Pin hole of glove	15	-20±5	<0.01	0.05~0.1	<0.01	1.9×10^{-10}
Crack of glove	15	-10±5	<0.01	0.01~0.1	<0.01	1.9×10^{-10}
Cut of glove finger	1, 5	-5±5	0.37	0.74	<0.01	6.3×10^{-10}
Exchange of glove	10	-20±5	<0.01	0.01~0.1	<0.01	1.9×10^{-10}
Detectable limit			0.01	0.01	0.01	1.9×10^{-10}

$$P_{3,4,5} = \frac{\text{Aerosol concentration of laboratory air sampled in the vicinity of accident}}{\text{Aerosol concentration of air sampled in the glove box}} \times 100$$

P_3 : personal sampler, P_4 : portable sampler, P_5 : fixed sampler.

$$P_6 = \frac{\text{Amount of aerosol inhaled by the worker in the vicinity of accident (g)}}{\text{Amount of aerosol generated in the glove box (g)}}$$

で測定した。使用した酸化ユーロピウム 1g の、上記粉末処理操作を作業者が 10 分間実施した場合 (吸入空気量 150l) に吸入されるエアロゾルに対する比 P_2 を、フードの使用条件の相違別に求めた。この結果を **Table 3** に示す。

2. グローブボックス使用時の事故に伴う空気汚染レベル

気密性の高いグローブボックス²⁾について、実験を行った。グローブボックス使用時において、ボックス外へ空気汚染を誘発する可能性があると考えられる事故を模擬的に発生させ、グローブボックス外への空気汚染の広がりを実験的に求めた。

グローブボックス内の内圧は規定負圧 (-15mmAq.) に保持しつつ換気し、グローブボックス内にエアロゾルを発生させ、グローブの破損事故および陽圧事故などが起きた場合のグローブボックス外へのエアロゾルのもれる割合を相対的に求めた。この結果を **Table 4** に示す。エアロゾルのサンプリングは、エアロゾルが漏洩する可能性が高い破損個所の近くで実施した。破損個所の近くで、作業者がグローブ操作をしている状態で、作業者にパーソナルサンプラーを装着して吸引した場合 (P_3)、可搬型サンプラーにて破損個所に近接した空間 (P_4)、およびグローブボックスが存在する実験室内の空気汚染評価をおこなうため設置されている個所 (P_5) のおのおの同時サンプリングし、グローブボックス内外の空气中エアロゾル濃度の相対的割合として求めた。またグローブボックス外の作業者が、単位時間に吸入するエアロゾルの全量の、単位時間にグローブボックス内で発生したエアロゾルの全量に対する比 (P_6) を前項 (a) と同様

に求めた。**Table 4** の cut of glove finger の事故は、グローブの中指を缺で切落した場合で、グローブの指の引裂事故に当たると考える。

3. エアロゾル濃度の測定

空气中のエアロゾル濃度の測定は、ミリポア AA 濾紙上に捕集したエアロゾルを中性子放射化 ($4.4 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$, 10 時間照射) し、 $^{152\text{m}}\text{Eu}$ を γ スペクトロメトリにより定量した。この方法による測定限界は、ユーロピウムとして 10^{-10} g であった。

III 考 察

毒性の強い物質を、標準的な化学フードおよびグローブボックスを用いて取扱う場合、取扱者に対してフードおよびグローブボックスのもつ安全性の評価は、つぎの 3 つの方法のいずれかにより行なわれる模擬実験により得られると考えられる。

(a) 危険物質自体を用いる。この場合には、取扱い実験者については、厳重な人体防護 (呼吸保護具, 完全な防護衣などを用いて) が必要である。

(b) 人体に比較的有害性の少ない放射性トレーサーを用い、目標危険物質と近い比放射能と取扱量をもつような担体を加えて行なう。

(c) 目標危険物質の有害限界量 (たとえば最大許容身体負荷量など) に相当する量まで分析可能な安全な物質で、危険物質に類似した物理化学的取扱いができる物質を選び、危険物質の取扱量に近い程度の量を使用して実験を行なう。

(a) の方法は、最も真実に近い評価が行なえるが、危険が伴う。(b) の方法も、人体への危険を完全に否

定できない。したがって、筆者らは(c)の方法を用い、模擬物質として放射化分析により、きわめて検出感度の高いユーロピウムを用いて実験を行ない、フードおよびグローブボックスの操作時あるいは事故時の空気汚染の発生について、主として取扱量と作業者の吸入量の割合について測定を行なった。

上記のような実験により得られた結果から、安全性の評価を行なう場合、現実に危険物質が取扱われる場合の使用量、その操作内容、危険物質と模擬物質との物理化学的特性の差異などにより、若干の注意や細かい差異を認めなければならない。しかし、フードやグローブボックスからユーロピウムエアロゾルが漏洩して、取扱者の作業区域におこす空気汚染の程度を知ることにより、毒性の強い物質を取扱う場合のこれら隔離施設の安全性に対する、ある程度の定量的目安が得られると考えられる。

その理由は、ユーロピウムの検出感度は好条件の放射化分析を用いれば、 10^{-14} g 程度まで可能であり、これは ^{239}Pu の空気 1m^3 当りの最大許容量と同じである。また、われわれの行なった条件においても、その最大許容身体負荷量(約 $0.6\mu\text{g}$)⁹⁾に対して、十分に検出可能である。しかもユーロピウムは、このような微量では人体に全く無害であると考えられる。また危険物質が、サブミクロン領域のエアロゾルとして空气中に浮遊した場合、物質の見かけ上の比重は、真比重に対して数十分の1から数分の1の範囲で変化する⁴⁾ことから、これらの物質とユーロピウムのような模擬物質の真比重の差は、エアロゾルの挙動において、あまり重要な要素となり得ないと考えられる。さらに、この実験で使用したユーロピウムの使用量は $10^1\sim 10^{-3}$ gであり、一般に個々の隔離施設で使用されているプルトニウムなどの有害物質の量と比較して、大きな差異はないと考える。最後に、ある物質の使用量とその空気汚染の発生量との間には、その取扱い、操作の差異により大きい差異が生じることは明らかであるが、ここで用いた模擬物質であるユーロピウムと、想定される危険物質(たとえば ^{239}Pu)とは、その化学的特性の類似性からみて、同じ取扱いや操作が行なわれた場合には、同じような挙動を示すと考えて差支えないと思われる。

以上の理由から、本実験をプルトニウムのようなきわめて毒性の強い物質を、フードやグローブボックスなどの隔離施設において取扱う場合に、その安全性の程度を知るための模擬実験と考えてよいであろう。この観点から、本実験で得られた結果について若干の考察を加える。

I. フード

連続してエアロゾルが発生する作業を実施した場合には、Table 1の C_1 の値に示されているように、調整ダンパーの下側だけを開にして作業した方が、漏洩が小さいことが分かる。 C_2 値は、フード外部へ漏洩したエアロゾルを作業者が単位時間当り吸入($15\text{l}/\text{min}$)するエアロゾルの全量の、フード内で単位時間中に発生したエアロゾルの全量に対する比を示す。

このように、フード内で連続的にエアロゾルの発生を伴う操作を実施した場合には、作業者が単位時間当りに吸入すると仮定されるエアロゾル量の、単位時間当りのエアロゾルの発生量に対して 10^{-5} 程度となる。熱源を使用しない作業の場合には、調整ダンパーの下側のみを全開にして使用することが、フード外への空気汚染を少なくするが、これはフードの使用条件によって、作業に伴う気流の乱れなどによるフード外への逆流の可能性が小さくなることに起因していると考えられる。

II(2)-b)およびc)で述べた蒸発乾固および粉碎操作を行なった場合、フード外作業者のその物質の吸入量は、Table 1および2に示したように、取扱量の 10^{-9} 程度であった。プルトニウムについて上記の操作を行なう場合にも、すでに述べたように、この値が適用できるものとする。標準的なフード作業を実施した場合、フード外の空气中の濃度と取扱量の関係は、フード外空气中濃度($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)=取扱量(μCi) $\times 10^{-9} \times 1/[\text{作業者が10分間の標準作業を実施した場合の空気呼吸量}(\text{ml})]$ となる。

^{239}Pu の場合には、1日8時間作業に対する最大許容濃度は $1.5 \times 10^{-12} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。また作業者の空気呼吸量は、この場合1分間当り、 15l 、10分間作業として $1.5 \times 10^5 \text{ml}$ である。したがって、操作中のフード外空气中の ^{239}Pu 濃度が、最大許容濃度を越えないところの取扱量を、これらの値を用いて求めると $225 \mu\text{Ci}$ となる。

一方、取扱物質のフード外への漏洩は作業の内容、すなわち操作の方法あるいは作業者の動作などにより、かなり大きい差異があると考えられる。この漏洩の差異については、本実験で得られた値に対し、20倍程度の安全率をとれば十分であると考えられる。したがって、このように考えると、フード内で通常の湿式あるいは乾式処理を行なう場合には、その取扱うことのできる量は ^{239}Pu について約 $10 \mu\text{Ci}$ となる。

2. グローブボックス

グローブボックスの使用に伴って、事故もしくはその保持に伴う作業により、グローブボックス外へエアロゾ

ルが漏洩する可能性がある。Table 4 に示した結果は、グローブボックス内で空気汚染を伴う事故が発生した場合について、グローブボックス外へ空気汚染が漏洩する2, 3の場合を想定した模擬実験により得られたものである。使用したグローブボックスは、漏洩率が2時間当たり0.1容量パーセント以内の気密性のもので、水柱35mmの陽圧事故の場合は、グローブボックス外への汚染の漏洩は検出限界以下であった。グローブの指を切断するようなまれな場合を除いては、グローブボックス外への汚染の漏洩はきわめて小さいことが、この結果から推定できる。またグローブボックスは、常時負圧で換気されているにもかかわらず、グローブの微小の破損により、わずかではあるがボックス外へ空気汚染が認められたのは、グローブ操作に伴うボックスの内圧の変化から、局所的な圧力の不平衡により、破損箇所からの逆流あるいは拡散によるものと考えられる。

実験に使用したユーロビウムの放射化については、武

蔵工業大学原子力研究所に全面的にご協力いただいた。とくに、ご協力いただいた同研究所の井上武一郎教授、久保田宣久氏に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 鈴木間左支, 渡辺征紀, 本郷昭三, 大畑 勉; Dautrebande Jet Generator による Submicron Aerosol の発生に関する基礎的研究, 材料, **17**(177), 564 (1968).
- 2) 渡辺征紀, 鈴木間左支; プルトニウムエアロゾル吸入実験装置の試作, 日本原子力学会誌, **11**, 562 (1969).
- 3) 中井敏夫ほか編; “無機化学全書”, XVII-2Pu, p.311 (1967), 丸善.
- 4) L. SILVERMAN, C.E. BILLINGS and M.W. FIRST; “Particle size analysis in industrial hygiene,” p.9 (1971), Academic Press.

日本保健物理協議会「入会手続の案内」

本会に正会員および準会員として入会を希望される方は、所定の申込書に次の事項を記入のうえ事務局あてお送りください。入会は、役員会の承認をへて決定されます。

- (a) 氏名 (ローマ字読み方付), 生年月日
- (b) 勤務先とその所在地, 職名および現住所
(英文およびローマ字読み方付)
- (c) 最終卒業学校, 学科名とその年次
- (d) 加入している学会 (外国を含む)
- (e) 専攻分野 (順位をつける)
- (f) 正会員, 準会員の別 (定款参照)
- (g) 連絡先

入会申込書および定款は事務局にありますからお申出ください。

会 費	
正会員費	年額 1,500円
準会員費	年額 1,000円

日本保健物理協議会事務局

〒113 東京都文京区弥生 2-4-16
 学会センタービル
 日本学会事務センター内
 電話 東京 (03) 815-1903
 振替貯金口座 東京24488番