解	説

夜光時計工業における RI 利用と放射線管理

村 山 義 彦^{*1}

(1981年7月2日受理)

Application of Radioisotope for Radio-luminous Watch and Clock
Industry in JapanYoshihiko MURAYAMA^{*1}

KEY WORDS: radio-luminous paint, radio-luminous watch and clock, promethium, tritium

I は じ め に

1979 年, 日本はついに, 世界一の時計生産国になった。日本時計協会のまとめた時計に関する生産輸出統計 (第 1 表) によると, 1980 年のわが国の時計生産量は, ウォッチ 8,800 万個, クロック 5,900 万個, 合計 14,700 万個であり, その中の約 65% の 10,300 万個を輸出しており, 前年に引続き時計王国日本の姿を改めて浮き彫りにしている。

時計の生産量は, 第 1 表にみられるとおり, 特にこの数年, 年ごとに大きな伸びを示しているが, その中の夜光時計はというと, 1980 年の生産量は, ウォッチ 1,300 万個, クロック 1,100 万個と推定され, 前年比 40% の伸びをみせている。

夜光時計は, それに用いられた発光塗料に放射性物質が含まれていることから, わが国では放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律 (以後障害防止法と略す) の適用を受け, その生産段階では非密封 RI 使用事業所として法の規制に従って生産されている。現在, 夜光時計の生産にかかわる許可事業所数は, 発光塗料製造事業所 3, 発光塗料塗装加工事業所 9, 時計組立事業所 35 があり, 完全な分業体制のもとで生産が行わ

れている。

国産の夜光時計に利用されている RI は, いろいろの制約から, 現在は ^{147}Pm に限定されている。そして, その使用量は第 2 表に示すとおりである。このように, 生産された Pm 発光塗料は国内ではすべてが夜光時計に利用され, 輸出したものもそのほとんどが海外の夜光時計の生産に用いられているのが現状である。それにしても, わが国で利用され, しかも消費されている RI の中で, 医学利用を除けば, この夜光時計で利用される ^{147}Pm が一番多い¹⁾ とみられる。ここでは, その利用の実状と, 利用に当たっての放射線管理の実態について述べることにする。

II 夜 光 時 計

1. 夜光時計と RI

発光塗料が発明され, それが時計に用いられて, 夜光時計が造り出されてからすでに約 70 年の歴史がある。

発光塗料に不可欠な放射性物質としては, 人工の RI が得られるようになるまでは, 天然の RI に頼るほかなく, もっぱら ^{226}Ra が利用されていた。戦後, 人工 RI の利用研究が盛んになり, 発光塗料の分野でも, 高価で危険性の高い ^{226}Ra に代る RI が要望され, 多くの研究^{2~4)} がなされた。1967 年, 国際原子力機関は, 夜光時計の安全基準⁵⁾ を作成して世界に勧告した。そして, その中で夜光時計に利用する推奨すべき放射性核種は ^3H と ^{147}Pm であるとした。これを受けて ISO は, 1975

^{*1} 根本特殊化学株式会社技術開発センター; 東京都杉並区上荻 1-15-1 (〒167)
Nemoto & Co. Ltd.; 1-15-1, Kamiogi, Suginami-ku, Tokyo.

第1表 時計の生産輸出統計 (単位: 千個)

	生 産				輸 出			
	1978	1979	1980	1981 (見とおし)	1978	1979	1980	1981 (見とおし)
ウォッチ	49,192	59,667	87,889	110,000	30,709	43,250	68,319	86,500
クロック	39,575	43,464	58,964	70,000	20,790	22,065	34,402	45,000
合 計	88,767	103,131	146,853	180,000	51,499	65,315	102,721	131,500

(日本時計協会統計資料より)

第2表 発光塗料における ^{147}Pm 利用統計
(単位: Ci)

用途	1976	1977	1978	1979	1980
ウォッチ	1,551	1,767	1,736	1,270	1,574
クロック	548	621	1,042	709	1,125
輸 出	38	344	1,019	784	1,089
合 計	2,152	2,742	3,798	2,763	3,788

(日本夜光工業会統計資料より)

年に時計用放射性発光塗料国際規格 ISO 3157 を制定した。世界のおもな国々はこの基準を採用してその安全使用を期しているが、わが国では、この国際基準を受け入れることが、放射線審議会でも拒否されたため、夜光時計も障害防止法による密封された RI として取扱われることから、第3表にみられるような矛盾した規制が行なわれている。

時計1個当たり 100 μCi の ^3H の使用では、輝度が低過ぎて夜光時計として実用にならないことにより、また、 ^{226}Ra はその危険性ゆえにメーカーの自主規制により、使用されていない。1967 年に ^{226}Ra から ^{147}Pm に代って以来、国産の夜光時計は ^{147}Pm を用いた発光塗料使用のものに限定されている。

夜光時計の放射能は ^{147}Pm 100 μCi を上限として管理されているが、実際に市販されている代表的な国産のウォッチ、クロックの各 14 個について、その放射能を測定した結果は第4表に示すとおりであった。また、 ^3H 夜光時計に関しては、KREJCI らが 2,000 個の時計を調査して、第5表の値を示している。Ra 夜光時計については、以前わが国で造られたものには、ウォッチ 0.3~5 μCi 、クロック 0.1~0.5 μCi の ^{226}Ra を含んでいた。

参考までに夜光時計に使用される各種発光塗料の比放射能を示すと第6表のとおりとなる。同じ発光輝度を得るための放射能は核種により大きな差があるが、これは

放射線の種類やエネルギーに起因するものである。核種による発光輝度と放射能との関係を第7表に示した。

発光寿命は含まれる RI の物理的半減期とは必ずしも一致せず、第8表のとおりとなる。Pm 発光塗料はほぼ ^{147}Pm の半減期に沿うが、 ^3H 発光塗料は ^3H が経時的に塗料から分解離脱することにより、また、Ra 発光塗料は高エネルギーの α 線により発光体が破壊され発光能を失うために、発光寿命は短くなる。

Pm 夜光時計において、 ^{147}Pm は不溶性の酸化プロメチウムとして、粒径 10~20 μm の硫化亜鉛・銅蛍光体表面に固着されており、この発光粉末に合成樹脂結合剤が混合され、塗料として時計の文字板や針に塗装されている。Pm 発光塗膜からの ^{147}Pm の水中への溶出率⁶⁾は、20°C、24 時間の浸漬で、常温乾燥型の場合 0.02%、紫外線硬化型の場合 0.005% である。また、Pm 夜光時計が火災などで燃焼した場合に空气中に逸散する ^{147}Pm の量は 0.005% 以下⁷⁾ である。

2. 夜光時計からの放射線量

Pm 夜光時計の場合、 ^{147}Pm からの β 線は時計の外装のガラスやケースで完全にしゃへいされるので、夜光時計からの放射線としては、 β 線のしゃへいにより生ずる制動 X 線の放射線量のみが問題となる。ウォッチ、クロックとも、各 14 個の代表的な国産の夜光時計について、そのガラス面と裏面の表面線量を、エネルギー特性のよいフッ化リチウム系 TLD (NTL-500) を用いて実測した結果では、ウォッチのガラス面 17.9 mR/月、裏面 0.83 mR/月、クロックのガラス面 5.5 mR/月、裏面 0.79 mR/月の平均線量が得られた。この値をもとに推定した夜光時計使用者の生殖腺線量⁸⁾は、ウォッチでは 1.58×10^{-3} mrem/月、0.019 mrem/年、着用時間を 12 時間/日とすると 0.01 mrem/年、8 時間/日とすれば 0.006 mrem/年となる。また、クロックでは、0.014 mrem/年となり、使用時間を睡眠時間の 8 時間/日とすると、約 0.005 mrem/年となる。

第3表 夜光時計の許容放射能基準

時計の種類	核種	ISO		アメリカ	日 本
		平 均	最 大		
ウ オ ッ チ	^3H	5 mCi	7.5 mCi	25 mCi	100 μCi
	^{147}Pm	100 μCi	150 μCi	100 μCi	100 μCi
	^{226}Ra	0.1 μCi	0.15 μCi	規制なし	100 μCi
ク ロ ッ ク	^3H	7.5 mCi	10 mCi	25 mCi	100 μCi
	^{147}Pm	150 μCi	200 μCi	200 μCi	100 μCi
	^{226}Ra	0.15 μCi	0.2 μCi	規制なし	100 μCi
特 殊 時 計 (ダイバーウォッチなど)	^3H		25 mCi		
	^{147}Pm		500 μCi		
	^{226}Ra		1.5 μCi		

第4表 国産の Pm 夜光時計の放射能

時計の種類	放射能 (μCi)		
	最小	最大	平均
ウ オ ッ チ	24	79	50.8
ク ロ ッ ク	11	50	39.5

第7表 発光輝度と放射能

塗面輝度 (ncd/mm ²)	放 射 能 ($\mu\text{Ci/mm}^2$)			
	^3H	^{14}C	^{147}Pm	^{226}Ra
30	220	39	6	0.03
15	105	19	3	0.01
5	35	6	1	0.003

第5表 ^3H 夜光時計の放射能

時計の 種 類	放 射 能 (mCi)			
	0.2~0.3	0.3~1.5	1.5~3	>3
ウォッチ	62%	26%	10%	2%
クロック	8%	80%	10%	2%
特殊時計	—	—	—	100%

第8表 発光塗料の発光寿命

種 類	輝度半減期 (年)	
	低 輝 度 (~ 5 ncd/mm ²)	高 輝 度 (20~30 ncd/mm ²)
^3H 発光塗料	5~7	3~5
Pm 発光塗料	2.5	2.5
Ra 発光塗料	5~10	0.5~1

第6表 夜光時計用各種発光塗料の比放射能 (塗厚 50 mg/cm²)

時計の種類	塗面輝度	比 放 射 能		
		^3H	^{147}Pm	^{226}Ra
ウ オ ッ チ	30 mcd/m ²	200 $\mu\text{Ci/mm}^2$	6 $\mu\text{Ci/mm}^2$	0.03 $\mu\text{Ci/mm}^2$
ク ロ ッ ク	2.5 mcd/m ²	1,500 $\mu\text{Ci/cm}^2$	50 $\mu\text{Ci/cm}^2$	0.175 $\mu\text{Ci/cm}^2$

^3H 夜光時計の場合は、 ^3H からの β 線、および、その制動 X 線はともに時計の外装によりしゃへいされるので、外部被ばくはまったく無視できる。しかし、内部被ばくは無視できない状態にある。これは ^3H が ^3H 発光

塗料に用いられる場合、 ^3H ラベルポリマーとして発光体表面に固着させて用いられるが、経時的に放射線分解して、夜光塗面から ^3H を含むガス状の有機分子やトリチウム水が離脱し、時計の外部に洩れてくるため、 ^3H

夜光時計着用者や取扱者は、この ^3H を呼吸や皮ふを通して摂取して、内部被ばくを生ずることになるからである。この ^3H の洩れは、およそ $0.13\sim 0.23\ \mu\text{Ci}/\text{mCi}$ 日 ($4.5\sim 8.5\%$ /年) であることが求められている^{9,10)}。輸入されて市販されている ^3H 夜光時計についてその ^3H 漏洩量を測定した結果は、 $30\sim 200\ \text{nCi}/\text{日}$ ¹¹⁾ であった。

海外の研究者により夜光時計使用者の放射線被ばくが評価されているので、そのいくつかを紹介すると次のとおりである。

① FITZMONS らによると¹²⁾、 ^3H 夜光時計の装着者は、その時計から洩れる ^3H を摂取することにより、 $0.2\sim 1.8\ \text{mrem}/\text{年}$ (平均 $0.6\ \text{mrem}/\text{年}$) の被ばくがある。

② MOGGISSI らによると¹²⁾、 $50\ \mu\text{Ci}$ の ^{147}Pm を含む夜光時計の装着者は、生殖腺線量として $0.25\ \text{mrem}/\text{年}$ の被ばくがある。

③ NRC News Releases によると¹³⁾、夜光時計の販売、使用、修理、廃棄を含めて、取扱者の放射線被ばくは、通常の状態では、 ^3H 夜光時計の場合、最大 $0.9\ \text{mrem}/\text{年}$ 、 Pm 夜光時計の場合、最大 $0.3\ \text{mrem}/\text{年}$ である。

④ ROBINSON によると¹²⁾、 $4.5\ \mu\text{Ci}$ の ^{226}Ra を含む夜光時計の装着者は、 $310\ \text{mrem}/\text{年}$ の外部被ばくを受ける。

III 夜光時計工場の放射線管理

1. 放射線作業の現状

夜光時計工業において、障害防止法でいう放射線作業従事者となる者は、 Pm 発光塗料の製造作業にかかわる者、時計の文字板や針に発光塗料を塗装する作業にかかわる者、およびその文字板や針を組込んで時計を組立てる作業にかかわる者、また夜光時計の修理にかかわる者などである。

Pm 発光塗料の製造作業は三つの工程に分けられる。まず最初がプロメチウムの溶解作業である。アメリカのオークリッジ研究所より輸入する ^{147}Pm は、A型輸送物として運搬されるので、一個の容器に $80\ \text{Ci}$ 未満の酸化プロメチウムが納められているが、これをグローブボックスの中で硝酸に溶解して硝酸プロメチウム水溶液とする。ついで発光粉末の製造工程に移り、プロメチウム水溶液を、表面をアルカリ処理した硫化亜鉛・銅蛍光体粉末に加えて反応させ、不溶性の水酸化プロメチウムとして蛍光体表面に固着させ、これを加熱して安定な酸化プロメチウムに変えてから、表面に撥水処理などを施して発光粉末を造る。この発光粉末の品質をチェックした

後、合成樹脂結合剤の一定量を加えて練り塗料とする最終工程となる。これらの作業は一連のグローブボックス中で連続して行なわれ、専門知識を有する男子作業者が作業に当たっている。事業所によっては、発光粉末を購入して、塗料化の作業のみを行なっている所もある。作業に従事する時間は、 $2\sim 4$ 時間/日で、週に $1\sim 2$ 回作業する程度である。

発光塗料の塗装加工作業において、塗装に用いる毛筆の穂先を揃えるため、なめなめ作業したために放射線障害を生じたというアメリカのダイヤルペインターの話はよく知られている。日本では、1955 年頃までは、毛筆を用いたそのような作業がなされていたが、幸い障害例は報告されていない。それ以後は、ペンシル状の筒に発光塗料を詰め、圧搾空気により先端のノズルから塗料を押し出して塗装する方式に切り替わり、筆を舐めることはなくなった。現在では自動塗装機やスクリーン印刷機が用いられるようになったが、まだ半数以上はハンドワークが行なわれている。細かな作業の性質上、作業者はほとんどすべて女子である。そして、熟練を要することから専業で、就業年数も長い場合が多い。夜光文字板や針は乾燥後箱詰めされ、時計組立工場に運ばれる。

夜光時計の組立作業は、時計の機械体に夜光文字板を取りつけ、ついで夜光針を組込み、最後にガラスを取りつけて完了となる。これらの作業は分業して行なわれているので、文字板の取り付け作業者と針取り付け作業者とは、それぞれそれぞれ専門に作業をしている。ガラスがはめ込まれて完成した状態では、密封された $100\ \mu\text{Ci}$ 以下の RI として、法的には突如として RI でなくなるわけであるが、時計メーカーの段階では、一応 RI を含んだものとしての取扱いがなされている。組立作業室には、実際に RI を取扱う作業者のほかに、時計の組立や検査に従事する作業者が多く働いているが、作業室全体を RI 使用室として管理している関係上、その中で働く者は常時管理区域立入者として放射線作業者和同じ管理がなされている。

最近時計が電子化されたため、小売店での修理が難しくなってきたこと、あるいは、目覚時計などはほとんどが修理せず新品に買替える傾向が強くなってきており、従来のように小売店で分解修理することが少なくなった。これに応じて各メーカー共専門の修理センターを設けて修理を行っており、RI 使用事業所として許可を受け、管理されている。修理工場での作業は、夜光文字板や針の取はずし、組込み、または、その交換などの作業が行なわれているが、発光塗料の塗替えなどの作業はまったく行なっていない。

2. Pm 発光塗料からの放射線

^{147}Pm は最大エネルギー 224 keV, 平均エネルギー 70 keV の β 線放射核種として知られている。その β 線の最大飛程は約 50 mg/cm² であるので、発光塗面では大部分が自己吸収され、塗厚 0.2 mm の場合放射される β 線はわずか 13% に過ぎなくなる。

β 線が物質に吸収されると二次的に制動 X 線を放出するが、Pm 発光塗料の場合その制動 X 線のエネルギー分布は第 1 図に示す通りで、しゃへいする材料によって少し異なるが、その実効エネルギーはおよそ 40 keV である^{14~16)}。

^{147}Pm は β 線のほかに、ごくわずかながら γ 線を放射する。その放出割合は β 線 1 崩壊当たり約 3×10^{-5} であり、そのエネルギーは 121.1 keV であると報告されている^{17,18)}。しかしその線量率は空气中で制動 X 線のその約 1/300 でしかないので¹⁹⁾、無視してよいと考えられる。

Pm 発光塗料の塗面から 10 cm の距離における β 線による放射線量を計算により求めると第 2 図のようになる。塗厚により差の生ずるのは β 線の自己吸収の差によるためである。

制動 X 線による放射線量は、越島ら²⁰⁾により測定され、Pm 発光塗料の塗面からの照射線量率 (Rhm 値) は、計算値では 1.8 mR/h.Ci.m, TLD を用いた実測により、1.1 mR/h.Ci.m の値が求められている。また、300 g の発光塗料からの制動 X 線の Rhm 値は、自己吸収の効果で更に小さくなり、0.1~0.01 mR/h.Ci.m となる²¹⁾。酸化プロメチウムを鉄のしゃへい材に入れたときの制動 X 線の Rhm 値は 2 mR/h.Ci.m であるという報告もある²²⁾。

Pm 発光塗料からの放射線のしゃへいについては、おもにその制動 X 線を考慮すればよいが、その実効エネルギーが 40 keV ということから、そのしゃへいは比較的容易であるといえる。

3. 外部被ばく

Pm 発光塗料からの外部被ばくの対象となる放射線は、前述したように、 β 線と制動 X 線とである。 β 線については、その飛程の関係から局部被ばくで、それも皮膚のみの被ばくと考えてよい。人体の不感表皮の厚さ近辺の厚さにおける β 線の吸収の状態を、TLD を用い実測した結果を第 3 図に示す。ICRP では不感表皮の厚さを 7 mg/cm² としているが、この厚さでは約 70% が吸収されることになる。手の掌部では不感表皮の厚さは約 50 mg/cm² 程度あるので²²⁾、 β 線はほとんど吸収され、被ばくはゼロとみなされる。

第 1 図 Pm 発光塗料からの β 線を各種材料でしゃへいしたときの制動 X 線のエネルギー分布

Source: Pm luminous, Cover material: Acryl 1 mm (1); PVC 1 mm (2); Glass 0.6 mm (3); Iron 0.3 mm (4).

第 2 図 Pm 発光塗料の塗面から 10 cm の距離における β 線による放射線量 (計算値)

制動 X 線の被ばくは全身の被ばくとして考えるべきである。いずれの作業も、現在そのモニタリングのために、40 keV 程度の低エネルギー領域でエネルギー特性がよく、しかも生体組織等価性のよいフッ化リチウム TLD (NTL-50) を胸部、または、腹部に装着して被ばく管理を行っている。実測の結果から各作業者の 3 カ月間の外部被ばく線量は第 9 表のとおり評価される。

4. 内部被ばく

内部被ばくを生ずる放射性物質の体内への取り込み方には、

- ① 経口：口—消化器—血液
- ② 吸入：呼吸—肺—血液
- ③ 経皮：皮膚 (傷口) —血液

第3図 Pm 発光塗料からの放射線の吸収 (NTL-50-D による実測値)

第9表 夜光時計工場の外部被ばく線量

作業区分	放射線量 (mrem/3 カ月)
発光塗料製造作業者	20~40
発光塗料塗装加工作業者	15~35
夜光時計組立作業者	2.5~15

の3とおりがある。 ^3H は皮ふから容易に体内に侵入するが、 ^{147}Pm は傷口など以外の正常な皮ふからは体内に入らないので、通常は考えなくてよい。したがって、 ^{147}Pm は経口と吸入とによって体内に取り込まれるわけであるが、 ^{147}Pm の場合、経口と吸入とその経路の違いで、取り込んだ ^{147}Pm の関連臓器への到達率が大きく異なるのである。ICRP Publication 2 によると、経口の場合、関連臓器到達率は 0.0001 であるのに対し、吸入の場合は 0.25 である。したがって、 ^{147}Pm の内部被ばくを考慮する場合、経口摂取よりも、吸入摂取をより重視すべきである。

Pm 発光塗料の取扱いにおいて体内摂取の考えられる場面は、経口的には、取扱中に発光塗料が剥がれて、その切片を直接のみ込む場合と、指先などの表面汚染から二次的に取り込む場合がある。また、吸入は、汚染した空気を呼吸により取り込むことである。

Pm 発光塗料の文字板などへの固着性については、刃物などで故意に剥すのでなければ、通常の使用状態では勿論、ほとんど起り得ないような厳しい条件下でも、剥

離することなく、十分な固着性を有するので²³⁾、取扱中に剥れた切片を摂取することは考えられない。表面汚染からの二次的摂取はあり得ることであるが、その量的な問題と、経口摂取による関連臓器への到達率が 0.0001 ということから、この場合は無視してよいと考えられる。したがって、内部被ばくのおもな原因となるのは、Pm 発光塗料の塗膜が何らかの手段で擦られて、直接空気汚染となるか、いったん、表面汚染となり、それが二次的に空気汚染となって、呼吸により体内に取り込むことによるものと考えてよい。

Pm 発光塗料の塗面を擦ることにより、当然表面汚染を生ずるが、その状態は擦る材料によって異なり、第10表、第11表に示すようになる。素手の指などは汚染を生じやすい。また、夜光文字板の表面を刷毛で払う操作による空気中への ^{147}Pm の移行率は、 $2 \times 10^{-10}/\text{回}$ ²⁴⁾ である。最近では、紫外線硬化型の発光塗料が開発され、これを用いると、その表面摩擦による表面汚染の程度は、従来のものの 1/30 以下⁶⁾ となるなど改善されつつあるが、Pm 発光塗料塗面に触れば、多少なりとも表面汚染を生ずることは免れないから、その取扱いにおいては、塗面に触れないよう注意をすることはもちろん、作業には手袋、指サックなどを着用して行なっている。

Pm 発光塗料の製造作業は、完全に密封されたグローブボックスの中で行なわれるので、作業室の空気汚染を生じさせる程度はかなり小さいが、塗装作業や組立作業は、その作業の性質上、一般的にはオープンエアー中で行なわれることが多いから、空気汚染や表面汚染を生じやすい。

1974 年に、Pm 発光塗料塗装加工工場、および、夜光時計組立工場について、ウォッチとクロックとに分けて空気中汚染濃度を実測した結果は、第12表と第13表に示したとおりであった。これらの表からわかるように、塗装工場の空気汚染濃度は $10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 、組立工場のそれは $10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ のレベルであった。また、それらの作業による ^{147}Pm の空気中移行率は、それぞれ、 10^{-5} 、および、 10^{-6} 程度であった。 ^{147}Pm の最大許容空気中濃度は $5 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ であるので、いずれの作業室も許容濃度に対し二桁ないし三桁低い値であった。最近では設備や管理状況などが改善され、空気中汚染濃度は更に一桁近く低くなってきている。

作業室の空気汚染の経時的変化を調査したところ、第4図と第5図に示すような結果が得られた。第4図では、作業開始とともに急激に空気汚染濃度が上昇し、昼頃最高となり、それから次第に減少し、作業終了後は急激に減少するという変化の状態を示している。一方第5

第 10 表 各種材料に 100 g/cm² の荷重を加えて文字板の全夜光文字を一週り擦ったときの汚染の状態

	材 料			
	濾 紙	布 (ガーゼ)	パラフィン紙	ポリエチレンシート
汚染 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)	3.2×10^{-3}	1.3×10^{-3}	1.1×10^{-3}	3.0×10^{-4}
汚染率 (%)	1.5×10^{-2}	6.4×10^{-3}	5.4×10^{-3}	1.4×10^{-4}

第 11 表 夜光時計の夜光塗面を指先で擦ったときの指先の汚染の状態

	軽く擦る	強く擦る	力一杯擦る
汚染 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)	2×10^{-4}	3×10^{-3}	6×10^{-3}
汚染率 (%)	3×10^{-3}	5×10^{-2}	1×10^{-1}

図は、作業室の換気をまったく停止しているときの経時変化を示しているもので、作業開始により急激に上昇した後は、作業終了まで緩やかな上昇が続くが、これは換気による低減効果がないためである。

これらの結果から判断して、 ^{147}Pm の空気汚染は、 ^{147}Pm が空気中のダストに付着または吸着した形で存在し、しかもその大部分が一晩の中に沈降しているところから、 $0.3 \mu\text{m}$ 以上の大きさの沈降性ダストであると推定される。したがって、作業開始によって急激に濃度が

上昇するのは、床などに沈降していたダストが、作業者の動きにより、再び空气中に舞上ることによるものであると考えられる。

組立作業室の空気汚染の経時変化も、まったく上記と同じ傾向を示している。これらのことから、作業室の換気のための排気の取入口は床面に近い所がよく、また、作業終了後も暫く換気を継続することが、汚染を低減させることに効果があるといえる。また、汚染ダストの粒径からも通常のフィルターで比較的効率よく汚染を除去できることがわかる。

作業室の空気汚染の状態から、各作業者の内部被ばく線量を障害防止法の内部被ばくの計算により求めて評価すると、第 14 表のとおりとなる。また、ICRP の Task Group による Lung Dynamic Model²⁵⁾ によって、汚染空氣の連続取り込みによる肺の負荷量を求めると、 $10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の汚染空氣の摂取では、3 年ぐらいでは

第 12 表 夜光塗装作業場の空気汚染濃度と空気移行率

種別	工場	空気汚染濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	^{147}Pm 取扱量 ($\mu\text{Ci}/\text{day}$)	排気量 (cm^3/day)	排気中 ^{147}Pm 量 ($\mu\text{Ci}/\text{day}$)	空気移行率
ウ	A	9.1×10^{-10}	4.6×10^6	4.8×10^{10}	43.6	9.5×10^{-6}
オ	B	6.0×10^{-10}	2.5×10^6	4.6×10^{10}	27.6	1.1×10^{-5}
ッ	C	2.6×10^{-10}	2.0×10^6	6.3×10^{10}	16.4	8.2×10^{-6}
ク	D	2.0×10^{-10}	1.4×10^6	5.2×10^{10}	10.4	7.4×10^{-6}
ロ	E	1.4×10^{-10}	2.0×10^6	7.5×10^{10}	10.6	5.3×10^{-6}

第 13 表 夜光時計組立作業場の空気汚染濃度と空気移行率

種別	工場	空気汚染濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	^{147}Pm 取扱量 ($\mu\text{Ci}/\text{day}$)	排気量 (cm^3/day)	排気中 ^{147}Pm 量 ($\mu\text{Ci}/\text{day}$)	空気移行率
ウ	F	1.1×10^{-11}	8.0×10^5	1.5×10^{10}	1.6×10^{-1}	2.0×10^{-7}
オ	G	1.0×10^{-11}	3.2×10^5	6.3×10^{10}	6.3×10^{-1}	2.0×10^{-6}
ッ	H	1.8×10^{-11}	2.0×10^5	1.8×10^{10}	3.2×10^{-1}	1.6×10^{-6}
ク	I	3.9×10^{-11}	6.0×10^4	6.6×10^9	2.6×10^{-1}	4.3×10^{-6}
ロ	J	4.3×10^{-11}	7.0×10^4	1.4×10^{10}	6.0×10^{-1}	8.6×10^{-6}
ッ	K	1.9×10^{-11}	3.0×10^5	2.5×10^{10}	4.7×10^{-1}	1.6×10^{-6}

第 4 図 ウォッチ夜光塗装作業室の空気汚染濃度の経時変化

第 5 図 夜光塗装作業室の空気汚染濃度の経時変化 (換気停止の場合)

○, ウォッチ; ●, クロック

第 14 表 夜光時計工場の空気汚染による内部被ばく評価

作 業 区 分	放射線量 (mrem/3 カ月)
発光塗料製造作業者	0.5~5
発光塗料塗装加工作業者	2~10
夜光時計組立作業者	0.1~0.5

ば飽和し、摂取による蓄積と排泄とが平衡状態となる。そのときの負荷量は約 0.12 μCi である。 ^{147}Pm が ICRP Publication 30 による Y クラスに該当するとすると、約 5 年で蓄積と排泄とが平衡に達し、その時の負荷量は約 0.18 μCi となる。したがって肺の被ばく線量は、約 150~200 mrem/年と計算される。

5. 汚染管理

夜光時計工場の放射線管理の中でも、汚染管理は大変重要であり、常に徹底して行なっていなければならない仕事の一つである。前にも述べたように、作業者の内部被ばくを低減させる一番の手段は、作業環境の表面汚染を低減させることである。少しでも表面汚染を少なくするよう作業方法や管理方法を工夫することが必要であり、生じた汚染は早期に除去する努力もまた必要である。 ^{147}Pm の表面汚染の除去について、いろいろの材質の汚染の除染率を求めた結果を第 15 表に示した。このように除染剤としては、稀塩酸、クエン酸ソーダ、クエン酸ソーダと中性洗剤の混合剤などが有効である。

空気汚染は、作業が定常的であるので、取扱量が大幅に変らない限り、汚染濃度にあまり変動はない。作業室からの排気はそのまま排気しても、法的規制値をかなり下まわる状態であるが、どの事業所もグラスフィルター、または、グラスフィルターと高性能フィルターとの

第 15 表 ^{147}Pm (不溶性) による汚染の除染率 (%)

除 染 剤	汚 染 材 質					
	ステンレス スチール	ガラ ス	ポリエ チレン	ゴム	木綿	鹿皮
水	43	52	74	28	30	23
10% 塩酸	94	88	89	95	97	98
10% クエン酸	79	85	82	88	96	74
10% クエン酸ソーダ	79	79	92	90	96	93
2.5% ラウリルスルホン酸ソーダ	—	—	—	74	55	57
2.5% アルキルベンゼンスルホン酸ソーダ	—	—	—	66	44	43
5% クエン酸ソーダ+10% ラウリルスルホン酸ソーダ	—	—	—	85	85	87
10% クエン酸ソーダ+2.5% ラウリルスルホン酸ソーダ	—	—	—	92	95	94

組合せにより浄化してから環境に放出している。

夜光時計工場で RI を使用する過程では、水はまったく使用されないで、RI 汚染廃水は生じないが、作業者の手洗、洗濯、作業室の清掃などにより、表面汚染が洗われて排水中に入るものがある。したがって、その汚染濃度も低く、法規制値の $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度を超えることはないが、貯留槽にいったん溜めて濃度を確認した上で排水されている。

現在の法規制では、規準濃度以下であれば、いくら大量に放出してもよいとされているが、ALARA の精神からは、できる限り汚染を除去して放出することが望ましく、その方法が検討されている。排水中からの ^{147}Pm の除去は、実用性、経済性の両面から凝集沈殿法が最適であり、凝集剤としては、硫化アルミニウムアンモニウム、塩基性ポリ塩化アルミニウムなどが効果的で、99% 以上の除染率が得られることが確認されている²⁶⁾。

6. 廃棄物管理

夜光時計工業でいま一番悩んでいることは、廃棄物の問題である。これは単に夜光時計工業ばかりでなく、日本全体が苦悩している問題でもあるので、仕方のないことであるかも知れないが。

工場から出る RI 汚染廃棄物はすべて保管しておき、日本アイソトープ協会に引渡すことになっているが、いろいろの事情から ^{147}Pm 汚染物の集荷が大幅に滞っており、どの事業所の保管場所も満杯のありさまで、今のところいかに減容するか工夫するしか手がない現状である。

特に問題の大きいのは夜光塗装工場から生ずる有機溶剤廃液である。これはアイソトープ協会でもまったく集荷しないので溜まる一方で、火災予防上も大きな問題となっている。これを解決するために数年前からその処理に関して研究が進められてきたが、技術的面で目途がつき、現在パイロットプラントにより最終的詰めが行なわれている。この処理は、廃液中の ^{147}Pm をアルコールを含む酸性水により有機廃液を洗浄して、 ^{147}Pm を水層に抽出する技術と、水層に移った ^{147}Pm を効率よく回収し再利用する技術の開発²⁷⁾により可能となった。

容積のかさむ可燃性廃棄物を焼却処理し、その灰から ^{147}Pm を再生再利用する技術の開発も進められている²⁸⁾。核種を ^{147}Pm に限定した場合、焼却処理はそれほど難しくなく、安全に実施できる見とおしができており、近いうちに許可を得てパイロットプラントを操業させたいと考えられている。

7. 教育訓練

どの事業所においても放射線管理をうまく進めるため

の重要なことの一つに作業員の教育訓練がある。夜光時計工場で放射線作業に従事する者は女子が多く、ほとんどがはじめは放射線に関する知識を有していない。このことはむしろ教育により最初から放射線に対する正しい理解をもたせるのに有利である。また放射線作業自体は、まったく単純なしかも反覆作業であるから、訓練もやりやすく、早く効果があがるようである。もともと時計は精密製品という観念が強く、作業環境のゴミ、汚れ、ほこりなどを嫌い、常に清潔に保つ習慣が身につけていることも、汚染管理教育には役立っている。

IV む す び

世界の夜光時計は ^3H 夜光時計と Pm 夜光時計の二種があるが、その生産は、西洋が ^3H 夜光時計、東洋が Pm 夜光時計と大まかに分けることができる。

西洋では、 ^3H が ^{147}Pm よりも放射線的に安全であり、しかも寿命も長いので夜光時計に適するという見解のもとに、 ^3H が夜光時計に用いられているが、これは明らかに誤っている。その誤りは ^3H 発光塗料から ^3H が洩れてくることを無視していることによるものといえる。実際に ^3H 夜光時計の着用者の尿からは ^3H が検出されており¹⁰⁾、前述したように、その使用者は Pm 夜光時計使用者よりもかなり上まわる放射線被ばくのあることから、 ^3H 夜光時計の方が Pm 夜光時計よりも放射線安全性が劣るといえる。

生産時には安全性の差は更に大きいといえる。 ^3H の表面汚染は ^{147}Pm のように GM サーベイメーターで簡単にチェックできないから、その汚染管理ははなはだ面倒なことになり、徹底し難くなる。また排気の汚染除去には大きな処理施設が必要であるし、まして排水から ^3H を除去することは不可能である。 ^3H 取扱作業者の外部被ばくは無視できても、呼吸や経皮で体内に入った ^3H は 100% 体内に残ると考えられるので、連続摂取ということもあり内部被ばくはかなりの量になることは確かである。実験的に ^3H 発光塗料を Pm 発光塗料とまったく同一の条件で夜光塗装したときの作業室の空気汚染濃度は、 ^3H の最大許容濃度に近いものであって、そうした状態で作業を一年間続けると、ほぼ 5 rem の内部被ばくを生ずると推定された。

日本の夜光時計が ^3H 発光塗料を利用したとすると、年間に 10 万 Ci を超える大量の ^3H を取扱うことになり、その管理に莫大な費用をかけたとしても、 ^{147}Pm を用いる場合にくらべて作業者がより安全であるということとはできない。幸か不幸か、日本には障害防止法の規制があり、 ^3H 夜光時計の生産ができなかったことは、日本

の夜光時計工業にとってよかったといえることができる。使用者ばかりでなく生産者のことも考え合わせ、また、Pm 発光塗料の寿命が時計の耐用年数によく合っていることから、IAEA では夜光時計に推奨すべき核種は、 ^3H と ^{147}Pm であるとしているが、真に推奨すべきは ^{147}Pm のみであると断言できる。

数年前、アメリカで夜光時計用の ^3H 光源を製造していた工場が、近隣の環境を ^3H で汚染させ、会社がなかなか改善しないために、州兵に占拠され閉鎖された事件があった。またその後いくつかの夜光塗装工場も操業をやめてしまったということである。しかし、日本では厳しい法規制と、放射能に対するアレルギー的国民感情ゆえに、必要以上に徹底した管理が要求され、それを実行してきたことと、管理しやすい ^{147}Pm を夜光時計に用いたことが幸いして、これからも問題なく、安全に生産が続けられることであろう。

この世から時間がなくならない限り、時計がなくなることはないであろう。そして、この世に夜がある限り夜光時計もまたその存在を続けるであろう。いつか未来に、RI を利用しない夜光時計が出現するかも知れないが、少くも今世紀中には現在とあまり変わったものにはならないのではあるまいか。開発途上国の文化水準が向上するにつれて、時計の需要は益々増大するものと推測され、夜光時計も生産量を伸ばすと予想される。日本は時計王国の使命として、より安全な、より価値ある夜光時計を生産して需要に応えなければならない。

いわば原子力発電の廃棄物として生じた ^{147}Pm を、もう一度世の役に立たせるために、永年培ってきた放射線安全管理技術を駆使して、夜光時計として生れ変らせ、人類の文化生活の一助として働かせることは、一つの大きな意義あることではないだろうか。

参 考 文 献

- 1) 日本アイソトープ協会; 放射線利用統計 (1980).
- 2) C.W. WALLHAUSEN; Proc. Inter. Conf., Geneva, p. 307 (1956).
- 3) 仁木栄次; 日本化学会第 9 回年会要旨集, p. 316 (1956).
- 4) 阿藤康郎; 名古屋工業技術試験所報告, 8(7), 61 (1960).
- 5) IAEA; Safety series No. 23 (1967).
- 6) 村山義彦; 第 15 回理工学における同位元素利用研究発表会要旨集, p. 142 (1978).
- 7) 村山義彦; 第 17 回理工学における同位元素利用研究発表会要旨集, p. 142 (1980).
- 8) 日本放射線影響協会; 国民線量推定のための基礎調査 (IV), p. 90 (1980).
- 9) M. IKEDA; Tokyo Metropolitan Isotope Center Annual Report No. 4, 91 (1965).
- 10) W. SCHELL; Int. J. Appl. Radiat. Isot., 22, 653 (1971).
- 11) 日本時計検査協会; 試験研究報告, p. 83 (1974).
- 12) NCRP Report, No. 56, p. 19 (1977).
- 13) NRC News Release, 5(5) (1979).
- 14) 村山義彦; 保健物理, 2, 166 (1967).
- 15) W. DANCE; NASA CR-1194, p. 284 (1968).
- 16) J. EZOP; ORNL 11C 5.4
- 17) H. JOLIOT; J. Phys. Radiat., 17, 497 (1956).
- 18) D. MCCONNON; Int. J. Appl. Radiat. Isot., 22, 253 (1971).
- 19) AEC; Radioisotope Shielding Design Manual (1963).
- 20) 越島得三郎; 日本保健物理学会第 14 回研究発表会要旨集, p. 3 (1979).
- 21) 村山義彦; 日本保健物理学会第 13 回研究発表会要旨集, p. 64 (1978).
- 22) 小西恵美子; 日本保健物理学会第 8 回研究発表会要旨集, p. 7 (1973).
- 23) 村山義彦; 日本時計学会誌, 70, 66 (1974).
- 24) 村山義彦; 日本保健物理学会第 10 回研究発表会要旨集, p. 17 (1975).
- 25) Task Group on Lung Dynamics; Health Phys., 12, 173 (1966).
- 26) 村山義彦; 日本保健物理学会第 11 回研究発表会要旨集, p. 13 (1976).
- 27) 村山義彦; 日本保健物理学会第 14 回研究発表会要旨集, p. 18 (1979).
- 28) 村山義彦; 第 16 回理工学における同位元素利用研究発表会要旨集, p. 34 (1979).