

テーマ（１）

放射線被ばくの線量評価等に関する研究

- 1－1 短半減期核種の寄与と合理的な線量係数を考慮した内部被ばく線量評価の高精度化に関する研究
高橋 知之（京都大学 複合原子力科学研究所原子力基礎工学研究部門 准教授）
- 1－2 住家内汚染の包括的研究及びこれによる内部被ばく線量評価
吉田 浩子（東北大学大学院薬学研究科 ラジオアイソトープ研究教育センター 准教授）
- 1－3 乳歯を用いた福島県在住小児の被曝線量評価
佐々木 啓一（東北大学大学院 歯学研究科 教授）
- 1－4 浪江町民のための被ばく線量調査
床次 眞司（弘前大学 被ばく医療総合研究所 教授）
- 1－5 農地残留核種に基づく事故初期の放射性ヨウ素水準の推定
藤原 英司（農業・食品産業技術総合研究機構 上級研究員）
- 1－6 大規模放射線災害に対応できる複数の生物学的指標を組み合わせた線量推定システムの技術基盤構築
盛武 敬（産業医科大学 産業生態科学研究所放射線健康医学教室 准教授）
- 1－7 効果的な個人被ばく線量管理に資する線量の測定と評価に関する実践的研究
内藤 航（国立研究開発法人産業技術総合研究所 安全科学研究部門）

1-1 短半減期核種の寄与と合理的な線量係数を考慮した

内部被ばく線量評価の高精度化に関する研究

高橋 知之（京都大学複合原子力科学研究所 准教授）

研究要旨

放射線の健康への影響を評価する上で重要なパラメータは被ばく線量である。本研究は、東京電力福島第一原子力発電所の事故に伴う一般公衆の内部被ばく線量に関して、これまで考慮されていなかった 2 つの重要な観点、すなわち①「事故後初期の短半減期核種の寄与」、および②「実際の被ばく状況に対応した合理的な線量係数の適用」により、より精度の高い内部被ばくの線量評価に寄与することを目的とし、平成 28 年度より 3 年計画で研究を実施してきた。特に、「福島県の住民の健康管理や健康不安解消への取組」の有効性を高めるため、高精度で現実的な被ばく線量を被災者の不安解消と今後の健康影響評価に利用できる形で提示することを念頭に研究を進めた。第一の観点「①短半減期核種の寄与」に関しては、平成 28 年度に学術論文や報告書等から短半減期核種に関する情報を調査・解析し、評価対象とすべき短半減期核種としては放射性テルルや放射性ジルコニウム等が重要であることを明らかにし、平成 29 年度には線量評価に必要なパラメータを実験的に求めた。本年度は、得られた各種のパラメータを用いて内部被ばく線量を推定し、事故後 1 年間程度の期間では、放射性テルルの線量寄与が放射性セシウムの数%程度であることを明らかにした。第二の観点「②合理的な線量係数」に関しては、放射性セシウムの線量係数（摂取量 Bq から実効線量 Sv への換算係数）が、今回の福島事故後の内部被ばくにおいては過度に保守的な（大きすぎる）可能性があることから、動物実験により消化管吸収率や臓器移行係数を新たに求めることとした。平成 28 年度は動物トレーサ実験の設備・装置の整備を完了し、平成 29 年度はラットに実際に福島県で採取した汚染土壌を投与し、消化管吸収率が国際放射線防護委員会のモデルで使われている吸収率に比べ 10 分の 1 程度と低いことを実証した。本年度は、人工的に放射性セシウム (^{134}Cs) で汚染させた土壌を作成し、長期間にわたって消化管吸収率や体外への排泄速度を求めた。その結果、消化管吸収率は約 0.2 程度であり、可溶性のセシウムに対して国際放射線防護委員会が提示している 1.0 よりは有意に小さく、燃料中の不溶性セシウムに対して最近提示された 0.1 よりは大きいことが実験的に示された。さらに、大気拡散モデルと沈着モデルを用い、放射性テルルの地表分布から放出時間の推定を行い、テルルの放出とプラントの事故事象との関連を明らかにした。

キーワード

内部被ばく線量、短半減期核種、線量係数、高精度線量評価、放射性テルル

研究協力者

川島 茂人 (京都大学大学院農学研究科 教授)

研究参加者

高橋 千太郎 (京都大学複合原子力科学研究所 特任教授)

木梨 友子 (京都大学複合原子力科学研究所 准教授)

福谷 哲 (京都大学複合原子力科学研究所 准教授)

木野内 忠稔 (京都大学複合原子力科学研究所 講師)

池上 麻衣子 (京都大学複合原子力科学研究所 助教)

窪田 卓見 (京都大学複合原子力科学研究所 助教)

八島 浩 (京都大学複合原子力科学研究所 助教)

中村 秀仁 (京都大学複合原子力科学研究所 助教)

藤原 慶子 (京都大学複合原子力科学研究所 技術職員)

牧 大介 (京都大学複合原子力科学研究所 技術職員)

岩田 佳代子 (京都大学大学院農学研究科 D3)

田中 草太 (京都大学大学院農学研究科 D3)

I. 研究目的

東京電力福島第一原子力発電所の事故後、関係機関の不断の努力もあり復興・復旧が進んできたが、依然、福島県の住民の放射線（能）健康影響に対する不安感は大い。特に、内部被ばくの健康影響に関して、（実効線量は大きくなく、将来的に健康影響につながるとは考えられないにもかかわらず）、被災者は漠然とした不安感を持っており、合理的で精度の高いデータを分かりやすい形で提示してその解消を図ることが必要である。また、住民の健康影響に関する調査等が進められているが、その基礎ともいべき被ばく線量について、より精度の高い線量推定値を提供することは重要である。

本研究は、福島第一原子力発電所の事故に伴う一般公衆の内部被ばく線量に関して、これまで考慮されていなかった 2 つの重要な観点、すなわち①事故後初期の短半減期核種の寄与、および②実際の被ばく状況に対応した合理的な線量係数の適用により、より精度の高い内部被ばくの線量評価を行い、「福島県の住民の健康管理や健康不安解消への取組」の有効性を高めるため、高精度で現実的な被ばく線量を被災者の不安解消と今後の健康影響評価に利用できる形で提示することを目的とし、平成 28 年度より 3 年計画で研究を実施してきている。また、3 ヶ年の研究経過のなかで、放射性テルルの短半減期核種としての線量寄与が明らかとなったため、評価委員会の助言を受けて、放射性テルルの放出時期やプラント事象との関連についても付加的に研究対象とした。

第一の観点「①短半減期核種の寄与」に関しては、平成 28 年度に文献調査等から評価対象とすべき短半減期核種としては放射性テルルや放射性ジルコニウム等が重要であることを明らかにし、平成 29 年度には線量評価に必要なパラメータを実験的に求めた。本年度は、実際に、内部被ばく線量を推定し、事故後 1 年間程度の期間では、被災者の方がどの程度の内部被ばく線量であったかを明らかにするとともに、線量の推定に影響する種々の要因について明らかにすることを目的とする。

第二の観点「②合理的な線量係数」に関しては、平成 28 年度に必要な動物実験装置の整備を完了し、平成 29 年度には、セシウムの線量係数（摂取量 Bq から実効線量 Sv への換算係数）が、今回の福島事故後の内部被ばくにおいては過度に保守的な（大きすぎる）可能性があることから、動物実験により消化管吸収率や臓器移行係数を新たに求めることとした。平成 28 年度は動物トレーサ実験の設備・装置の整備を完了し、平成 29 年度はラットに実際に福島県で採取した汚染土壌を投与し、消化管吸収率が国際放射線防護委員会のモデルで使われている吸収率に比べ 10 分の 1 程度と低いことを実証した。本年度は、人工的に放射性セシウム (^{134}Cs) で人工的に汚染させた土壌を作成し、長期間にわたって消化管吸収率や体外への排泄速度を求める。さらに、その結果を用いて、消化管吸収率を推定することを目的として研究を進める。

さらに、評価委員会より助言のあった放射性テルルの放出時期やプラント事象との関連については、研究協力者として大気環境が専門の京都大学大学院農学研究科の川島教授の協力を求め、軽水炉のシビアアクシデントが専門で福島原発事故時のプラントの事故事象に詳しい日本原子力研究開発機構の日高研究員との共同研究を実施する。具体的には、大気拡散モデルと沈着モデルを設定し、放射性テルルの地表分布から放出時間の推定を行い、テルルの放出とプラントの事故事象との関連を明らかにする。

II. 研究方法

本研究は研究目的の項に記載したように、現在の内部被ばく線量評価において見落とされている短半減期核種の寄与と、土壤に吸着したセシウムの摂取というようなより現実的な状況での内部被ばく線量を求めようとするものである。このため、それらに対応して以下の2つの観点・アプローチから研究を実施することとした。すなわち「①短半減期核種の寄与を考慮した線量評価」と「②合理的な線量係数を考慮した線量評価」である。両者は並行して実施し、最終的に統合して、合理的で高精度な内部被ばくの線量評価を行い、「福島県の住民の健康管理や健康不安解消への取組」の基礎となり、その有効性を保証する上で必要な高精度で現実的な内部被ばく線量を、被災者の不安解消や今後の健康影響評価に利用できる形で提示していく。3年計画で研究を開始し、平成30年度は最終年度であり、実験的研究の成果の取りまとめと共に、論文や国際会議への発表などにより関連分野への成果の公表・広報にも留意した。

1. 第一のアプローチ「①短半減期核種の寄与を考慮した線量評価」:

平成28年度には、事故により環境中に放出された短半減期核種を対象に、文献等の調査研究に基づき、環境中での短半減期核種の種類と存在量（放射性セシウムとの相対量、半減期や線量係数、食品への移行率などを考慮し、線量の寄与が大きかったと推定される核種としては放射性テルルが最も重要であることを明らかにした。平成29年度には、放射性テルルについて環境中での挙動や人への移行に関するパラメータを収集するとともに、土壤から食用植物等への移行係数など、過去に十分な知見のないパラメータを実験的に求めた。平成30年度は実験を継続して各種の条件下でのパラメータを求めるとともに、短半減期核種による内部被ばく線量を算定する。また、放射性テルルに次いで線量寄与の大きい可能性のある放射性銀について、実験的な土壤植物移行係数の取得の可能性を明らかとするため、理研サイクロトロンを使用した放射性銀トレーサの作成方法について併せて検討を行う。

2. 第二のアプローチ「②合理的な線量係数を考慮した線量評価」:

福島原子力事故の被災者では、有意な量の土壤に吸着された放射性セシウムを摂取していたことが推定される。一般にセシウムは強固に土壤粒子に吸着されているが、このような状態での放射性セシウムの消化管吸収率については知られていない。本研究では、平成28年度に放射性セシウムを用いた動物実験装置の整備を行い、平成29年度には、実際に福島県で採取した土壤を用い、土壤に吸着された状態で実験動物（ラット）に投与して放射性セシウムの消化管吸収率や臓器移行率を明らかにした。その結果、土壤に吸着された放射性セシウムの消化管吸収率は、かなり低いことが分かったが、放射エネルギーが少なく、長期的な動物実験はできなかった。このため、平成30年度には、摂取される土壤や食品、絶食などの生理的要因によってどのように変化するかを明らかにし、より实际的で合理的な線量係数を算出することとした。また、この線量係数を用いて実際の（精度の高い）内部被ばく線量評価を行い、被災者に対して現在想定されている内部被ばく線量の何分の一程度が実際の線量であるかを提示する。

3. 放射性テルルの放出時期やプラントの事故事象との関連

上記の研究を実施することにより、短半減期核種の放射性テルルの線量寄与が大きいことが判明した。これに対し、評価委員会から、放射性テルルの重要性を見出したことは重要な知見であるが、それであれば、放射性テルルがどのような事故事象と関連していたかを明らかにすべきであるとのコメントがあった。これを受けて、平成 30 年度には大気拡散モデルと地表沈着モデルを策定し、逆推定法により放射性テルルの放出時刻とプラント事象を推定する。具体的には、ほぼ東北地方全域を包括する地域（北緯 37.488 度、東経 139.937 度を中心とする 900km 四方）について気象モデルと対流・拡散モデルを設定する。次に、事故後の 1 時間ごとに単位量の放射性テルルが放出されたと仮定して地表沈着量を求め、実際の地表沈着パターンを再現できるように時間ごとの放出量を決定し、プラントからの放出時刻を推定する。

（倫理面への配慮）

人を直接の対象とした研究ではないので、その点での配慮は必要ない。動物実験を含む研究であり、動物愛護に関する倫理面での配慮が必要である。これに関しては、文部科学省の動物実験に関する指針に準拠して実験を進めるとともに、京都大学における動物実験指針を遵守し、原子炉実験所の動物実験委員会の承認を得て実施した。

III. 研究結果

1. 短半減期核種の寄与を考慮した内部被ばく線量

平成 28, 29 年度に実験的に求めたテルルの土壌から葉菜（小松菜）および根菜（ラディッシュ）への移行係数を用い、事故後短期間において住民がこれらの食品を摂取することで受けた可能性のある最大線量を、摂取期間や地域、年齢層ごとに詳細に評価をした。その結果、放射性テルルが与えた可能性のある最大線量は、成人で、放射性セシウムが与える線量の 3.2%、幼児で 28% 程度であることを明らかにし、日本保健物理学会誌に投稿し掲載された。また、線量推定値に大きく影響する要因について考察し、上記の土壌・植物移行係数以外に、線量の評価値を変動させる

主要なパラメータについて検討した。その結果、土壌植物移行係数に次いで線量の評価値を変動させると思われるパラメータは、摂取期間であり、収穫後、数日で摂取を終わるか、冷凍保存等をして長期間継続して摂取するかによって、変動率 100 のオーダーで線量は異なってくる。また、市場において地元産の食品が占める割合（市場係数）や、個人の嗜好による当該食品の摂取量の変動も評価線量を変動させる重要な要因と推定された。これらの一連の考察は、第 18 回国際放射化学会議で発表した（表 III-1）。また、植物実験や動物実験に使用できる放射線銀のトレーサ作成の可能性について検討した。その結果、カドミウムを光量子で照射し、生成されてくる ^{105}Ag （半減期 41.3 日）を酸性条件下でイオン交換樹脂により抽出・精製することで、キャリアフリーの放射性銀を製造することが可能となった。この放射性銀は、放射能濃度や比放射能も植物や動物の実験に利用できるものであった。これらの成果は第 62 回放射化学討論会に報告した。

2. 土壌に吸着された放射性セシウムの消化管吸収率

平成 29 年度には、福島県で採取した放射性セシウム汚染土壌を用いて動物実験を行い、土壌に付着あるいは吸着した放射性セシウムではラットの消化管からの吸収率が小さいことを見出した。しかし、採取された土壌中の放射性セシウムの放射能濃度が小さく、測定限界の点で長期間の実験は不可能であった。そこで平成 30 年度は、非汚染の土壌に ^{134}Cs を塩化セシウムの状態で滴下し、この人工的に作成した汚染土壌を用いて全身での放射性セシウムの滞留率を求め、イオン状態で投与された放射性セシウムの滞留率との比較から消化管吸収率を推定した。

図 III-1(左)に示したように、土壌に付着あるいは吸着した放射性セシウムは当初は非常に早く消化管から排泄され、その後、残留したほぼ 20% の放射性セシウムがゆっくりと排泄された。一方、図 III-1(右)に示したようにイオン状態で投与した場合、ほぼ 80% 程度がゆっくりと排泄されていた。イオン状のセシウムが全量消化管に吸収されている（ICRP の消化管モデルに従い吸収率は 1.0）と仮定し、この早く排泄される割合と、ゆっくりと排泄される割合を相互比較すると、土壌に吸着された放射性セシウムの消化管吸収率は約 0.2 と推定され、国際放射線防護会議が可溶性セシウムに対して提示している吸収率に比べ非常に小さいことが明らかとなった。得られた成

表 III-1 放射性テルルによる内部被ばく線量の推定に影響する要因とその程度

パラメータ	変動率（オーダー）
土壌植物移行係数	100
市場係数	10
摂取量	10
収穫時期	1.5
摂取期間	100
年齢層	3

果は日本保健物理学会誌に投稿し掲載された。さらに、人工的に Cs-134 を吸着させた土壌を湿潤・乾燥処理すると消化管吸収率が低下することを見出し、第 18 回 国際放射化学会議に発表した。

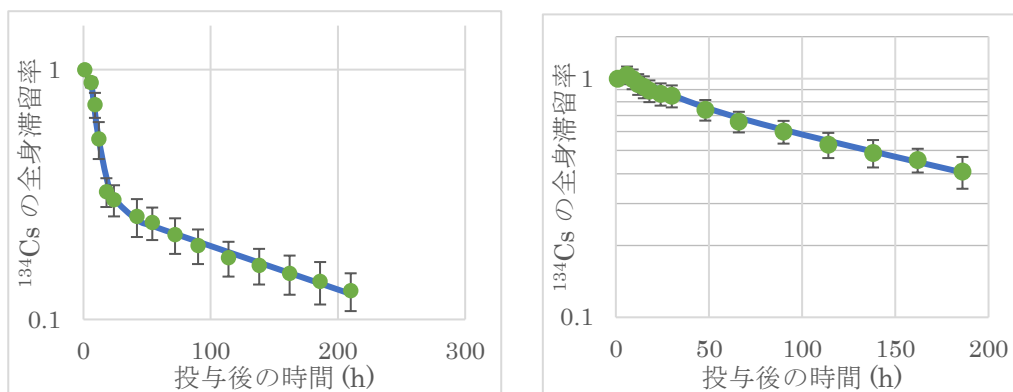
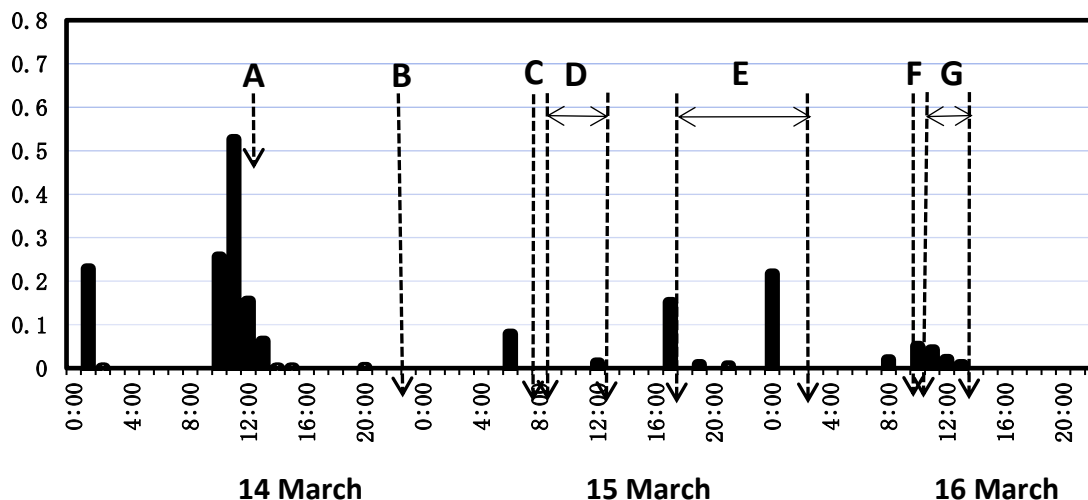


図 III-1 (左) 放射性セシウムで人工的に汚染させた土壌をラットに投与した時の放射性セシウムの全身滞留率。短時間で消失する部分と、比較的ゆっくりと消失する部分に分かれる。一方、図 III-1 (右) に示したようにイオン状の放射性セシウムを投与すると大部分がゆっくりと排泄されていく。これらの実験結果の比較分析から、消化管吸収率は 0.2 と推定された。

3 テルルの大気中への放出時期とプラントの事故事象との関連

大気拡散・沈着モデルを作成し、これに基づきある任意の一時間における地表沈着量を推定した。次に計算された地表沈着量と実際の土壌濃度分布を比較解析することで放射性テルルの放出時間を推定した。その結果、図III-2 に示した通り、プラントからの放出量は 14 日の午前 11 時頃に相対的に多かった。さらに、15 日および 16 日にも散発的な放出があったとの推定結果が得られた。この推定された放出時期は 3 号機の水素爆発などの事故事象に良く一致しており、本研究の結果は、テルルの放出が 3 号機の事故に主として起因することを示している。得られた結果は、シビアアクシデント時における放射性テルルの放出という炉工学の観点でも重要であり、米国原子力学会誌に投稿し掲載された。



図III-2 大気拡散・沈着モデルを用いて推定された放射性テルルのプラントからの放出日時。縦軸は任意目盛であり、グラフは相対的な放出量の時間推移を表している。

IV. 考察

平成 29 年度までに、今回の福島原発事故において有意な内部被ばく線量を与える短半減期核種としては放射性テルルであることを明らかにし、線量を推定するためには土壌—植物移行係数が必要であることから植物栽培実験を行い、実際に我が国の畑地等での移行係数を得た。平成 30 年度には、詳細に線量の推定を行い、葉・根菜類を摂取することによって放射性テルルから受けた事故後 1 年間の内部被ばく線量は、放射性セシウムによる線量の最大で成人 3.2%、幼児 28% 程度であることを明らかにした。このことは、事故後に被災者の方が受けた内部被ばく線量において、放射性テルルの寄与はあまり大きくなかったことを示唆している。しかしながら、IAEA は技術書の中でテルルの土壌—植物移行係数について本実験で得られた値よりかなり高い値を示しており、今後、移行係数に関してより適切な値を実験的に求めていく必要がある。また、摂取期間や市場係数なども線量の推定値に大きな影響を与えると考えられ、精度のよい内部被ばく線量の評価のために引き続き研究が実施されなければならない。

他方、放射性セシウムによる内部被ばくの線量に目を向ければ、実験的に求めた土壌中の放射性セシウムの消化管吸収率は 0.2 程度であり、ICRP が Publ.30 以降、線量係数の算定に用いている可溶性セシウムにおける消化管吸収率 1.0 より有意に低い値であった。このことから野菜や手指に付着して経口摂取された土壌中の放射性セシウムによる内部被ばく線量は、現行の ICRP の線量係数で算定したものより小さくなることが明らかにされた。ICRP は最近、Publ.134 で不溶性の放射性セシウムでは消化管吸収率を 0.1 とするよう勧告したが、本結果はそのような勧告と整合するものであった。シビアアクシデント時に環境に放出されてくる放射性セシウムの粒子径や溶解性といった物理化学的性状に関する知見を集積し、それに対応した線量係数を設定し、より正確な線量の推定ができるようにしていく必要がある。

大気拡散シミュレーションを用いた解析により、放射性テルルの放出時間を推定した。その結果、放出時刻は 3 号炉の事故イベントの発生時刻とよく一致し、2 号炉のイベントとは一致しなかった。炉の比較的上部が損傷して炉内の放射性物質が放出されたとされる 3 号機の事故状況において放射性テルルの放出が有意に多いことを示す結果であり、今後のシビアアクシデント時のモニタリング等に参考になる重要な知見である。

V. 結論

福島原発事故において環境に放出された短半減期核種のうち、線量寄与や半減期の点から考えると、放射性ヨウ素を除くと放射性テルルが最も重要な核種である。実験的に求めた土壌—植物移行係数を用いてこれらによって汚染された葉・根菜類を事故後 1 年間にわたり経口摂取すると内部被ばく線量は放射性セシウムによる線量の成人で 3.2%、幼児で 28% 程度と推定された。しかし、この推定値は多くの要因によって変動するであろう。土壌に吸着した放射性セシウム消化管吸収率は 0.2 程度であり、ICRP の線量係数の前提となっている 1.0 より有意に低い値であった。このことから食品や手指に付着して経口摂取された土壌中の放射性セシウムによる内部被ばく線量は、現行の ICRP の線量係数で算定したものに比べ 5 分の 1 程度になる。大気拡散シミュレーションを用いた解析により、放射性テルルの放出時刻は 3 号炉の事故イベントと比較的よく

一致した。今後のシビアアクシデント時のモニタリング等に参考になる重要な知見である。

VI. 次年度以降の計画

本研究は3年計画で実施されてきており、所期の目的を達成し、平成30年度末で終了する。消化管吸収率に関する動物実験データの解析等に多少時間を要しており、引き続き、論文として発表していくとともに、福島原発事故の被災者の安全・安心に寄与できるように、本研究成果をさまざまな面で活用していただけるような活動を継続していく。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり

- 1) Takahashi, S., Kawashima, S., Hidaka, A., et al., Estimation of the Release Time of Radio-Tellurium During the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident and Its Relationship to Individual Plant Events, Nuclear Technology 1-9 2018.
- 2) Takahashi, T., Fujiwara, K., Kinouchi, T., et. al., Using Experimental Transfer Factors to Estimate the Ratio between the Committed Effective Dose from Ingestion of Radio-tellurium to that of Radio-cesium Released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. Jpn J Health Physics 53(1): 12-16, 2018.
- 3) Iwata, K., Takahashi, T., Tanaka, S., et al., Gastrointestinal Absorption Rate in Rats for Radiocesium in Soil Collected near Fukushima Power Plant or Doped Artificially with $^{134}\text{CsCl}$. Jpn J Health Physics 54, in press 2019.

B. 論文：査読なし

なし

C. 国内学会発表

- 1) Ag-105 の製造と精製，日本放射化学会年会・第62回放射化学討論会・京都，2018/8/18-20.
- 2) 水耕栽培におけるテルル、銀、カリウム、ルビジウムおよびセシウムのレタスへの移行，第20回「環境放射能」研究会・茨城，2019/3/12-14.
- 3) 放射性無担体テルルの土壌分配係数，日本原子力学会春の年会・茨城，2019/3-20-22.

D. 国際学会発表

- 1) Effect of wet and dry processes on the gastrointestinal absorption of radio cesium adsorbed to soil particles in rats. 18th Radiochemical Conference, Czech Republic, 2018/5/13-18.
- 2) Soil-plant transfer ratios of tellurium and the estimation of committed effective dose from ingestion of radio-tellurium released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. 18th Radiochemical Conference, Czech Republic, 2018/5/13-18.

E. 著書

なし

F. 講演（招待）

不溶性セシウム粒子による放射線影響解明への取り組み：粒子状放射性物質の生体内挙動・代謝の特徴、日本放射線影響学会第 61 回大会・長崎、2018/11/7-9.

G. 主催した研究集会

なし

H. 特許出願・取得

なし

I. その他

なし

Study for more accurate estimation of internal radiation doses based on the contribution of short-lived radionuclides and more realistic dose-coefficients

Tomoyuki Takahashi

Division of Radiation Control, Kyoto University Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science

Keywords: internal radiation dose; short-lived radionuclides; dose coefficients; accurate dose estimation; Fukushima nuclear power plant accident

Abstract

The present study has been planned and carried out from 2016-2018 FY, to estimate internal radiation doses, following the Fukushima Daiichi nuclear plant accident, more accurately to alleviate public concern regarding radiation health hazards and to help enhance the efficiency of state health control measures and victim support. The study was designed to estimate more accurate and realistic radiation dose using the following two approaches: (i) Considering the contribution of short-lived radionuclides not considered in past estimations, and (ii) using more realistic dose coefficients. During the fiscal year 2016-2017, we analysed existing data and reports in relevant documents and scientific meetings, and found that radio-tellurium (Te) could pose a more significant radiation dose to people comparable to that of radio-caesium (Cs). Animal and plant experiments were carried out to estimate transfer factor from soil to vegetable, and determine gastro-intestinal absorption rates. In this year, the internal radiation doses were estimated using the transfer factors of Te from soil to plants, under the assumption that these vegetables were continuously consumed by people for a year after the accident. As a results, the radiation doses from the ingestion of radio-tellurium in leaf vegetables were estimated 3.2% in adults of that of radio-caesium. This suggests that the contribution of Te to internal radiation dose was not very significantly high. Animal experiments demonstrated that the absorption ratio of Cs from soil particles to the animal body was approximately 20% , and much lower than that reported in publications by the International Committee of Radiation Protection (ICRP). This suggests that dose coefficients recommended by the ICRP may lead to overestimation of internal radiation doses. In addition, the release time of radio-tellurium and the relationship with accidental events of the nuclear reactor were investigated using advection-diffusion model. The release of radio-tellurium to the atmosphere was estimated to occur mainly on 14 March, and to related to accidental events of the No. 3 plant.

1-2 住家内汚染の包括的研究及びこれによる内部被ばく線量評価

住家内汚染の実態と挙動に係わる研究及びこれに基づく内部被ばく線量評価

主任研究者：吉田 浩子（東北大学大学院薬学研究科 ラジオアイソトープ研究教育センター 准教授）

分担研究者：篠原 直秀（産業技術総合研究所 安全科学研究部門・リスク評価戦略グループ
主任研究員）

研究要旨

今年度は富岡町の 10 戸、浪江町の 5 戸及び大熊町の 2 戸の計 17 戸の住家で調査を行った。初年度と 2 年目（昨年度）に調査した住家 44 戸と合わせ調査戸数は計 61 戸となった。61 戸中、避難指示が出ている地域の住家は 39 戸、避難指示が解除された地域の住家は 22 戸、内少なくとも 1 人の住民が帰還している住家が 6 戸である。

これらの住家について解析を行った結果をこれまでの知見と合わせて以下に示す。(1)福島第一原発からの距離と表面汚染密度との間にはゆるやかな逆相関関係が観察された。原発からの方向依存性は観察されなかった。(2) 住家内の表面汚染密度と換気回数との間に関連は認められず、木造と鉄筋コンクリート造りの住家間で換気率、表面汚染密度に差は見られなかった。(3)エアロゾル全粒径の数値と表面汚染密度中央値を用いて評価した住家ごとの再浮遊係数は表面汚染密度に対してゆるやかな逆相関にあることが示された。再浮遊係数はサイクロン式掃除機、家庭用掃除機作業時に比べハタキがけ時が 1 桁高かった。(4)実測値を用いて、DCAL (ORNL/TM-2001/190, 2006) により預託実効線量を計算した。$180\ \mu\text{m}$のハウスダストを 20 mg/日経口摂取した場合及びハタキがけ時 (1.5h) のエアロゾルの吸入摂取した場合それぞれについて ^{137}Cs による大人の預託実効線量を評価した結果、双方とも原発からの距離とゆるやかな逆相関関係を示していた。(5) 表面汚染密度と摂取、吸入の預託実効線量はいずれも原発からの距離とゆるやかな逆相関関係があり、表面汚染密度と摂取、吸入の預託実効線量はおおよそ比例関係にあることが示された。(6) 浪江町の避難指示が出ている地域の住家と解除された地域の住家との比較を、また、富岡町の避難指示が出ている地域の住家と住民が帰還している住家との比較を表面汚染密度について行ったが福島第一原発からの距離以外の差は観察されなかった。

キーワード

放射性セシウム (放射性 Cs)、ハウスダスト、エアロゾル、掃除、再浮遊、内部被ばく線量

研究協力者

なし

研究参加者

なし

I. 研究目的

主任研究者は、平成 24～26 年度の原子力災害影響調査等事業で採択された「日本家屋におけるしゃへい係数及び屋内汚染に関わる調査研究」において、飯舘村、南相馬市小高区、双葉町、大熊町、富岡町の当時の避難指示区域に建つ木造家屋 100 戸の屋内汚染を調査し、スミア法によって放射性セシウムの表面汚染密度を評価した。その結果、室内や天井裏等の表面に遊離性のダストとして屋内汚染が存在していること、汚染のレベルは福島第一原発との位置・距離に依存しており、3km 内に位置する原発近傍の住家では放射性セシウムの表面汚染密度は最大で 40Bq/cm²（平成 23 年 3 月 11 日の値に補正したとき）を超えるような高い数値まで分布していることを明らかにしてきた¹⁾。放射性セシウム（放射性 Cs）はほこりや土などの物質に付着して家屋内でハウスダストとして存在しており、住民が帰還して営む日常の行動により容易に舞い上がり、これを日常的に摂取することで経気道及び経口の内部被ばくを生じる可能性がある。経気道による被ばく線量は粒子の AMAD（空気力学的放射能中央値）やその化学形により異なることが知られており（ICRP Publication 66）、粒子の種類やサイズによって摂取量は大きく異なる（US EPA, 2017）。

平成 29 年 2 月 10 日の閣議決定による福島復興再生特別措置法の改正を受けて、双葉町、大熊町、浪江町、富岡町に続き飯舘村でも帰還困難区域における特定復興再生拠点区域復興再生計画が認定され²⁾、これらの拠点区域では 5 年後を目途に線量の低下状況も踏まえて避難指示を解除し、居住を目指すこととなった。屋外については除染が実施されるが、住家の屋内は除染の対象となっていない。特に福島第一原発から近い地域における避難指示解除後の住民の帰還と居住にあたっては、上記で述べた観点から屋内汚染の状況を包括的に把握したうえで、住民がもっとも長い時間を過ごす自宅内の身近にある放射性物質からの内部被ばくによるリスクを評価することはきわめて重要である。

これらを踏まえて、本研究では、屋内に入り込んだ放射性物質の粒子系分布や、実態と挙動を調査研究することで住民帰還後の日常生活における内部被ばく線量の評価を行うことを目的とする。さらに、本研究では、屋内汚染の挙動の解明を行うことで内部被ばく線量を低減する方策など帰還する住民に資する情報の取得を目指す。

本研究の初年度と 2 年目の昨年度では双葉町、大熊町、浪江町の合わせて住家 44 戸において、住民の掃除を模した掃除機がけ、ハタキがけ、掃き掃除を行いながらハウスダストとエアロゾルを粒径別に捕集し、放射性セシウムを測定した。これにより、以下のことが示された。1) 福島第一原発からの距離と表面汚染密度との間にはゆるやかな逆相関関係が観察された。2) エアロゾル全粒径の数値と表面汚染密度中央値を用いて評価した住家ごとの再浮遊係数は表面汚染密度に対してゆるやかな逆相関にあることが示された。再浮遊係数はサイクロン式掃除機、家庭用掃除機作業時に比べハタキがけ時が 1 桁高い。3) ハウスダストでは粒径が小さいほどダスト重量あたりの放射性 Cs 濃度が高くなる傾向があること、ハウスダスト中の放射性 Cs の 20%弱は水溶性であり、30%強は 1 規定の塩酸に溶解し、50%強がそれらに溶けない成分であること、エアロゾル中の放射性 Cs 分布には粒径依存性が見られることが示された。4) 得られた実測値を用いて、DCAL（ORNL/TM-2001/190, 2006）により預託実効線量を計算した結果、<180 μm のハウスダストが経口摂取に寄与すると考え、ハウスダストが最大値を示した住家においてこのサイズのハウスダストを 20 mg/日摂取した場合の ¹³⁷Cs による大人の預託実効線量は 1 日あたり 0.9 μSv と評価された。ハタキが

け中に再浮遊したエアロゾルを吸入した場合について、エアロゾルが最大値を示した住家における¹³⁷Csによる大人の預託実効線量はハタキがけ作業中（1.3h）に3.2 μSvと評価された。

3年目の今年度は富岡町にまで調査範囲を拡大してあらたに10戸での調査を行い、研究期間の3年間で50戸を調査する当初の目標の達成をめざす。さらに、これまでに確立した方法により試料採取及び測定・解析を行って性状及び挙動を調べ、得られた結果に基づき内部被ばく線量評価を行うことを目的とする。

II. 研究方法

1. 調査住家

富岡町の10戸、浪江町の5戸及び大熊町の2戸の計17戸（福島第一原発からの距離3.87～17.12km）において、全室を住民の掃除を模した掃除機がけ（サイクロン式掃除機及び浪江町で電源が確保できた住家では家庭用普通掃除機を併せて使用）、さらにハタキがけ、掃き掃除を行いながらハウスダストとエアロゾルを捕集した。今年度の計画では10戸での調査を行う予定であったが、協力者が多かったため予定を超える17戸の調査を行うこととなった。また、家屋のタイプに着目し調査住家を選択する計画をたてていたが、この地域での住家は圧倒的に木造が多く、鉄筋建屋の住家を見つけることができなかった。従って、17戸はすべて木造住家である。

本研究において、ハウスダストは、多段式ふるい分け装置を装着したサイクロン式掃除機で捕集した、もしくはハタキ掛けで落とした埃等をほうきで掃き集めた室内塵を指す。また、エアロゾルは、ポンプでカスケードインパクトに捕集した空気中の浮遊粒子状物質を指す。掃除機がけ、ハタキがけ及び掃き掃除の作業中の様子を図II-1及びII-2に示す。さらに、住戸の状態を確認するために、作業後に住戸の換気回数の測定を行った。ハウスダスト及びエアロゾルの採集方法及び換気回数の測定法については分担研究者の報告書で詳細に述べる。



図 II-1 作業中の様子



図 I-2 作業中の様子

3
年間で調査を行った住家計61戸の位置を図II-3に示す。61戸の内訳は浪江町21戸、双葉町17戸、大熊町13戸、富岡町10戸である。避難指示が出ている地域の住家は39戸、避難指示が解除された地域の住家は22戸、内少なくとも1人の住民が帰還している住家が6戸である。図II-2中青丸は住民が帰還していない住家、赤丸は少なくとも1人の住民が帰還している住家を示す。調査住家の内、浪江町の3階建ての集合住宅の1、2、3階（福島第一原発からの距離9.47km）

3 戸及び 2 階建て 1 棟（同じく 9.21km）が鉄筋コンクリート住宅で残りはすべて木造家屋である。

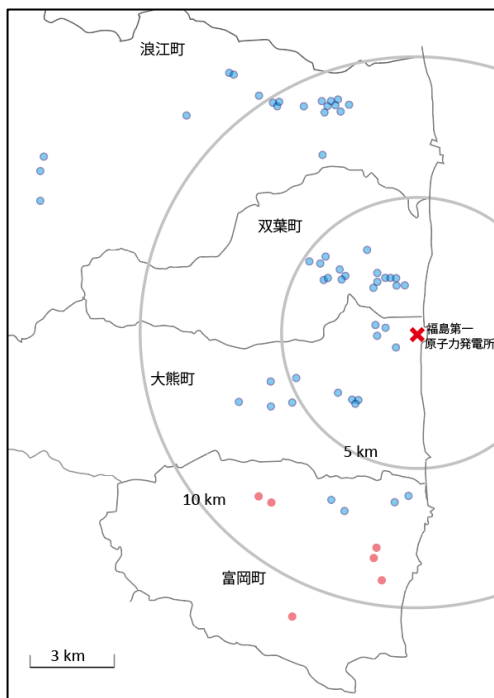


図 II-3 3 年間で調査を行った住家計 61 戸の位置。青丸は住民が帰還していない住家、赤丸は少なくとも 1 人の住民が帰還している住家を示す。

2. スミア法による表面汚染密度の測定

掃除機による捕集を行う前に、原則として住家のすべての部屋で家具平面などに沈着している放射性物質（ダストに付着）をスミア（拭き取り）法によりサンプリングした。作業中の様子を図 II-4 に示す。部屋の大きさに応じて 1 部屋あたり 1～6 箇所について、主に木の表面を JIS Z 4504(2008)³⁾に準じ 10cm 角（100 cm²）の表面を同じ強さで均一にこすり、ほぼ一様に汚染が付着するようにして試料を採取した。プラスチックシンチレーション検出器（JDC-5300、日立アロカメディカル（株）社製）で ¹³⁴Cs、¹³⁷Cs からのベータ線を 5～10 分間測定した。一部のサンプルをゲルマニウム半導体検出器で測定して放射能を評価しプラスチックシンチレーション検出器の測定値との相関関数を作成した。相関関係を図 II-5 に示す。

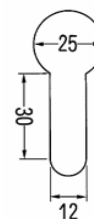


図 II-4 スミア（拭き取り）法によるサンプリング作業中の様子

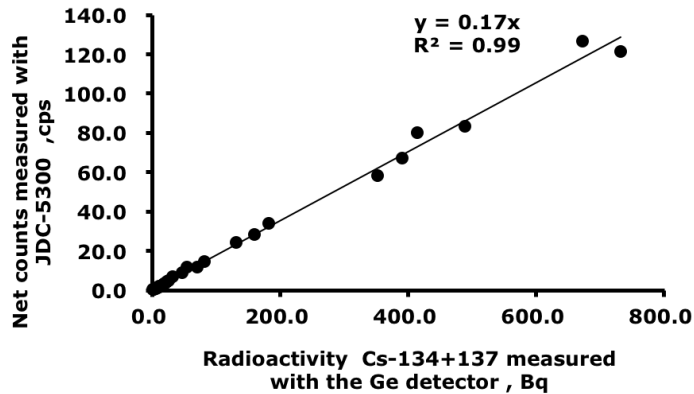


図 II-5 ゲルマニウム半導体検出器で測定した放射能,Bq とプラスチックシンチレーション検出器の測定値, cps との相関

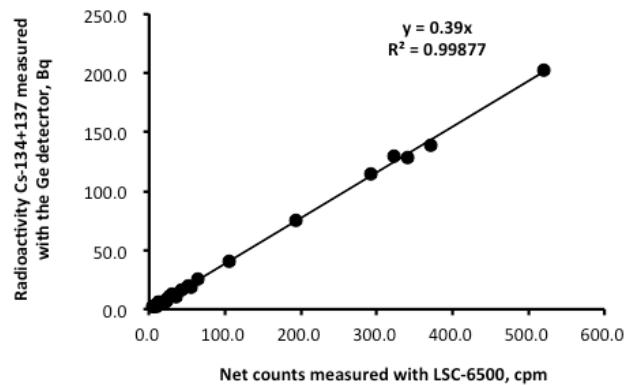
3. 放射性セシウムの測定

ハウスダスト試料及び性状で分離した後の水溶出試料、塩酸溶出試料及び残渣試料を高純度ゲルマニウム半導体検出器 (EGPC 50-195-R、EurisyS 社製、relative efficiency 33.5%) により 1,000 ~ 30,000 秒間測定し、Gamma Studio (DS-P600、セイコー・イージーアンドジー (株) 社製) にて ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の定量解析を行った。検出効率は ^{152}Eu の標準線源 (Amersham International plc 社製) からのマルチピークガンマ線により決定した。全エネルギーピーク効率は ^{134}Cs からの 796 keV、 ^{137}Cs からの 662 keV のガンマ線に対してそれぞれ 0.5455%、0.6328% である。

^{134}Cs のサム効果の影響を受けないように検出器中心から 70mm 離れたポイントで試料の測定を行なうこととした。このポイントにおいて ^{137}Cs 放射能保証点線源 (Amersham International plc 社製) を繰り返し測定した結果、放射能のずれは値付けされた値から 3.5% 内におさまっていた。すべての試料の中心はこのポイントにぴったりと合わせて測定した。

ハウスダスト (20-63, 63-180, 180-500, 500-1,000, and 1,000-2,000 μm) は 2.5-mL のマイクロチューブ (内径 10.3 mm, 高さ 47 mm) に入れ測定した。ハウスダスト (<4-20 μm) は、70-mm 直径の PTFE フィルター (polytetrafluoroethylene filter) に付着しているため、フィルターを 3 回折って 1/8 のサイズにまで小さくして測定した。水溶出試料及び塩酸溶出試料はポリチューブ (内径 15.4 mm, 高さ 94 mm) に入れ測定した。残渣試料はプラスチックの円柱状容器内のスリット (幅 29 mm, 深さ 5 mm, 高さ 15 mm) に残った状態になっているため、これを測定した。各試料の容器の形状とサイズは異なっている。試料の量が増えると、固定ポイントでの値からずれが大きくなる。各形状の最大量の試料に対するずれを、2.5-mL のマイクロチューブ入りの試料、1/8 のサイズに折りたたんだフィルター試料、ポリチューブ入りの溶液試料、プラスチックの円柱状容器スリットに入った残渣試料それぞれに対して、-5.8%、-3.4%、-5.6%、and -3.6% と評価した。水溶出試料及び塩酸溶出試料の溶液試料については、100~200 μL をそれぞれ分取して液体シンチレータ 4 mL を加え、液体シンチレーションカウンタ (LS-6500、Beckman Coulter, Inc. 社

製)で ^{134}Cs 、 ^{137}Cs からのベータ線を20-100分間測定した。一部のサンプルをゲルマニウム半導体検出器で測定して放射能を評価し液体シンチレーションカウンタの測定値との相関関数を作成した。相関関係を図II-6に示す。これを用いて液体シンチレーションカウンタの計数値から放射能の値を求めた。



図II-6 ゲルマニウム半導体検出器で測定した放射能,Bqと液体シンチレーションカウンタの測定値, cpm との相関

室内外空気中のエアロゾルは、カスケードインパクトを用いて粒径別 (<0.25 μm , 0.25-0.5 μm , 0.5-1.0 μm , 1.0-2.5 μm , 2.5-6.6 μm , >6.6 μm) にフィルターで捕集し、それぞれのフィルターについてプラスチックシンチレーション検出器 (JDC-5300、日立アロカメディカル (株) 社製) で ^{134}Cs 、 ^{137}Cs からのベータ線を60~100分間測定した。一部のサンプルをゲルマニウム半導体検出器で測定して放射能を評価しプラスチックシンチレーション検出器の測定値との相関関数を作成した。

本研究にて使用した高純度ゲルマニウム半導体検出器の全エネルギーピーク効率 は前述のとおり 796 keV(^{134}Cs)で0.5455%、662 keV(^{137}Cs)で0.6326%と低い。液体シンチレーションカウンタ及びプラスチックシンチレーション検出器の検出効率はそれぞれ95%以上、約40%とゲルマニウム半導体検出器に比べてはるかに高い¹⁾。そこで、スミアろ紙や原試料から分取・調整された放射能が低い溶液試料やエアロゾルフィルターについては、液体シンチレーションカウンタ又はプラスチックシンチレーション検出器を用いて測定し、放射能の値付けをゲルマニウム半導体検出器で行って定量評価した。

大気中放射性物質のモニタリングにおいては、機器の設置現場において、大気中放射性物質をろ紙上に集じんしながら、又は、集じん後早い段階で放射性物質を測定する。このため、自然に存在するラドン、トロン崩壊生成物による影響が問題となる。ラドン、トロン崩壊生成物のうち、影響の大きい主な核種は、RaB(^{214}Pb)及びThB(^{212}Pb)であり、それぞれの半減期は26.8分と10.6時間である。一方、本調査研究において行っているのはサンプリング法であり、現地にてサンプルを捕集後、測定までに平均で1ヶ月以上が経過しているため(大半の期間は開放系で放置)、短半減期のラドン・トロン崩壊生成物は十分に減衰しており、その影響を無視できると考えられる。また、ゲルマニウム検出器を使用した際に空気中に存在するラドン・トロン崩壊生成物が遮

へい容器のわずかな隙間を通して内部に浸透して来る可能性はあるが、本研究で使用しているゲルマニウム検出器は非密封アイソトープ使用施設内に設置されているため原則として使用中は換気されており、ラドン、トロン崩壊生成物は室内に溜まらず非常に低いレベルであると考えられる。

(倫理面への配慮)

本研究では、個人の住家内の測定を行うため、その結果には個人情報が含まれる。調査にあたっては、東北大学薬学研究科における「ヒトを対象とする研究に関する倫理審査」の承認をすでに受けており、調査の方法は承認を受けた以下の手順による。

対面もしくは書面の通知により「調査の目的と方法の説明および調査へのご協力をお願い」を説明し、同意を書面で得る。住民が避難している場合は住民への通知及び測定時の立ち会いは自治体を通して行う。得られた結果について、被験者に対し線量結果のお知らせを通知する。

さらに、個人の人権への対策として、研究実施に際しては、人間の尊厳を尊重するとともに、個人の人権の保障が科学的又は社会的利益に対して優先することを基本とし、個人情報の保護の徹底をはかる。

そのための具体的な配慮を以下に示す。

- 被験者は本人の自由意思で実験への同意、非同意を決定することができる。
- 被験者はいつでも本人の自由意思で実験の中止を決定できる。
- 実験者は、被験者の人権を尊重し、実験終了後も結果の利用等において、被験者のプライバシーの保護を優先する。
- 個人情報は実施責任者が厳格に管理及び取扱うこととし、研究目的以外には用いない。
- 個人情報利用の際は、個人の特定に至ることはないように配慮する。

III. 研究結果

1. 住家内放射性セシウムの表面汚染密度 福島第一原発からの距離・方向との関係

スミアした（ふき取った）表面の単位面積あたりのベータ線放出核種の遊離性表面汚染の放射能（表面汚染密度） A_{sr} (Bq/cm²) を式(1)により求めた¹⁾。

$$A_{sr} = (n - n_b) / (60 \cdot \epsilon_i \cdot F \cdot S \cdot \epsilon_s) \quad (1)$$

ここで、 n は測定された全計数率 (min⁻¹)、 n_b はバックグラウンド計数率 (min⁻¹)、 ϵ_i はベータ線に対する機器効率、 F は拭き取り効率、 S はふき取り面積 (cm²)、 ϵ_s は放射性表面汚染の線源効率を表す。上述したとおり、一部のサンプルをゲルマニウム半導体検出器 (EGPC 50-195-R、Eurisyss 社製) で測定することによりベータ線による計数率の値付けを行い、補正係数 ($\epsilon_i \times \epsilon_s$) を求めた。拭き取り効率は繰り返し拭き取り法によって実測で評価した 0.75 を用いた¹⁾。検出限界値は式(2)により求めた。

$$N_d = 3/2 \cdot \{3/T_s + [(3/T_s)^2 + 4 \times n_b \times (1/T_s + 1/T_b)]^{1/2}\} \quad (2)$$

ここで、 N_d は検出限界計数率 (cpm)、 n_b はバックグラウンド計数率 (cpm)、 T_s は試料測定時間 (min)、 T_b はバックグラウンド測定時間 (min) を表す。 T_s 、 T_b はともに 5~10min である。

図Ⅲ-1 及び図Ⅲ-2 に福島第一原発からの距離と表面汚染密度 (¹³⁴Cs+¹³⁷Cs) との関係性を示す。図Ⅲ-1 には本調査での現避難指示・旧避難指示区域のすべての住家を示す。図中■は住民が帰還していない住家で●は少なくとも 1 人の住民が帰還している住家を示す。図Ⅲ-2 に西~北西方向に位置する双葉町の住家を■で浪江町の住家を●で示す。表面汚染密度は中央値をマークで四分位範囲 (Q1-Q3) をバーでそれぞれ示す。放射能は 2011 年 3 月 11 日の数値に補正してある。

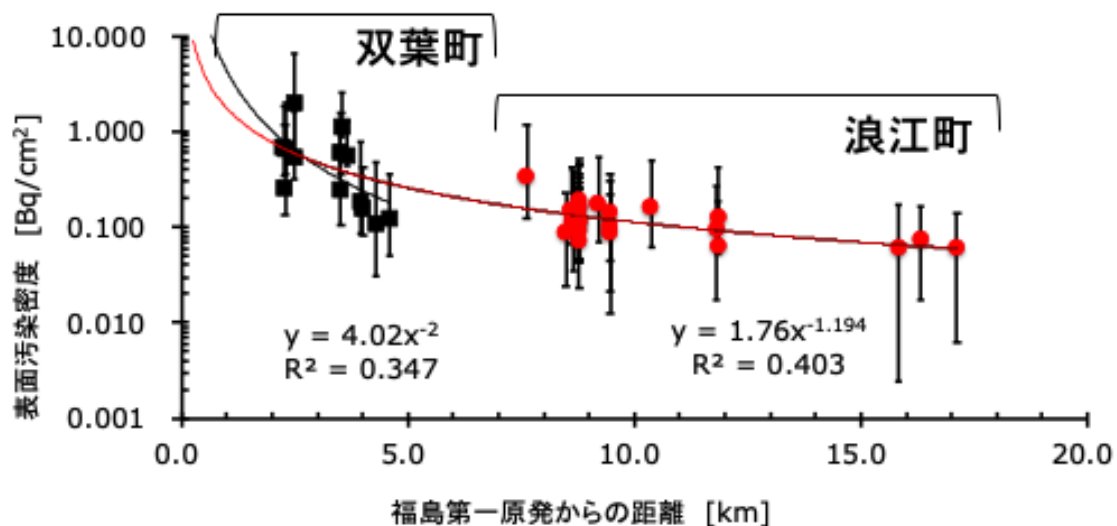


図 Ⅲ-1 福島第一原発からの距離と表面汚染密度 (¹³⁴Cs+¹³⁷Cs) との関係 本調査での現避難指示・旧避難指示区域のすべての住家を示す。■は住民が帰還していない住家で●は少なくとも 1 人の住民が帰還している住家を示す。

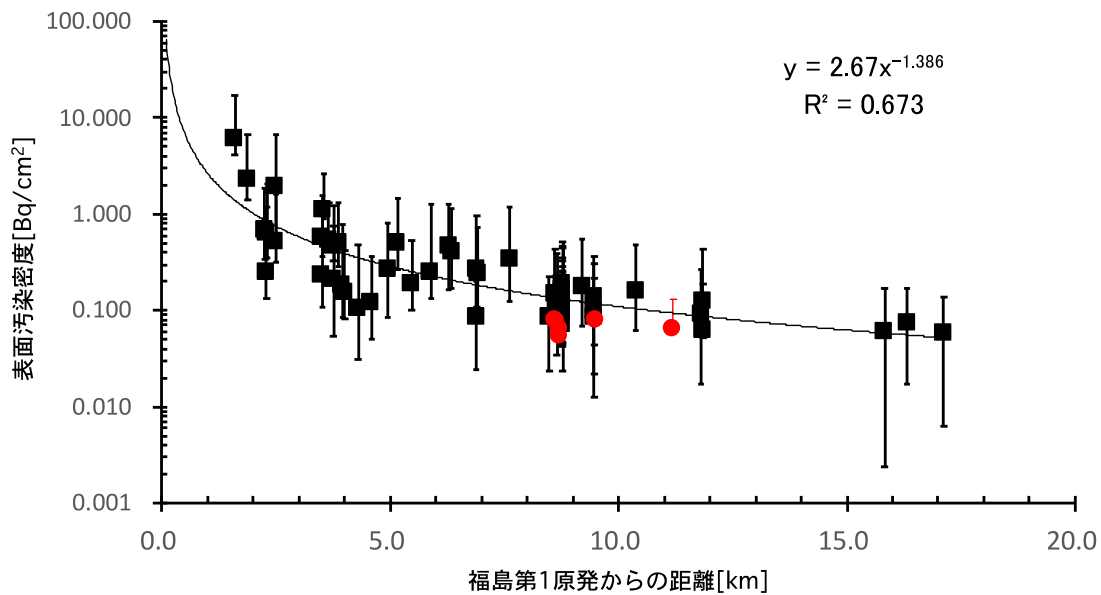


図 III-2 福島第一原発からの距離と表面汚染密度 ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) との関係 西～北西方向に位置する双葉町の住家を■で浪江町の住家を●で示す。

図III-1において住民が帰還している住家●とそうでない住家■との近似曲線に差は見られなかった。図III-2において、福島第一原発に近い双葉町では距離の二乗に反比例しているが距離の離れた浪江町では距離の1.19乗と傾きが小さくなっている。放射性プルームの拡散がガウスパフモデル⁴⁾に従っていた場合、放出点からの距離が近いとき分布の広がり小さく中心濃度は高くなるが、出点からの距離が長くなると中心濃度は低くなり、分布の広がり(拡散幅)は大きくなっていく。双葉町と浪江町での傾きの差はこの状況を反映しているとも考えられる。ただし、プルームの放出は複数回にわたっており、また地形や風等の気象条件の影響が大きいことを考慮する必要がある。

これまで調査を行った各住家ごとの換気回数 (CO_2 濃度減衰法により求めた。詳細な結果は分担研究者の報告書に記載) に対する表面汚染密度 ($^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$) を評価した。 CO_2 を各部屋ほぼ同じ濃度になるように撒き、戸締りをしたうえで無人の状態での CO_2 測定器 (Lutron Electric, MCH-383SD) により1分ごとに CO_2 濃度を数時間測定した。また、測定の前後に屋外の CO_2 濃度も測定した。得られた CO_2 の屋内外濃度の差分の減衰を指数関数でフィッティングすることで住宅の換気回数を求めた。

2. 表面汚染からのエアロゾル再浮遊係数の評価

再浮遊係数 K (/m) は表面汚染から空气中汚染へ浮遊する割合であり式(3)で表される。

$$K = \text{空气中放射能濃度}(\text{Bq}/\text{m}^3) / (\text{屋内表面汚染密度}(\text{Bq}/\text{cm}^2) \times 10^4) \quad (3)$$

住民の掃除を模した掃除機がけ（サイクロン式掃除機、家庭用普通掃除機）、ハタキがけ（掃き掃除含む）の作業中にカスケードインパクターで捕集されたエアロゾル（詳細な結果は分担研究者の報告書に記載）全粒径を足し合わせた結果を用いて、空气中放射能濃度(Bq/m³)を求めた。各住家の¹³⁷Cs 値の分布の中央値(Bq/cm²)を屋内表面汚染密度として式(3)で再浮遊係数K (/m)を求めた。空气中放射能濃度と表面汚染密度の¹³⁷Cs の測定はほぼ同じ時期に行っているため、¹³⁷Cs について減衰補正は行っていない。

3. イメージングプレートによる作業中の舞い上がりの高さ方向の分布

富岡町の10戸、浪江町の5戸及び大熊町の2戸の計17戸において、はたきがけ、掃き掃除、（掃除機がけ）の作業中、壁に貼ったろ紙（80 x 150～160 cm）に付着した放射性物質の分布をイメージングプレートで測定した。下端から約5cmごとの幅でPSLの相対比率をプロットした結果を図III-3に示す。図中、17戸の分布をそれぞれ色分けして示してある。高さ方向の分布に一定の傾向は観察されない。ハタキがけによる上からの落下及び静電気による付着の影響が大きいと考えられる。

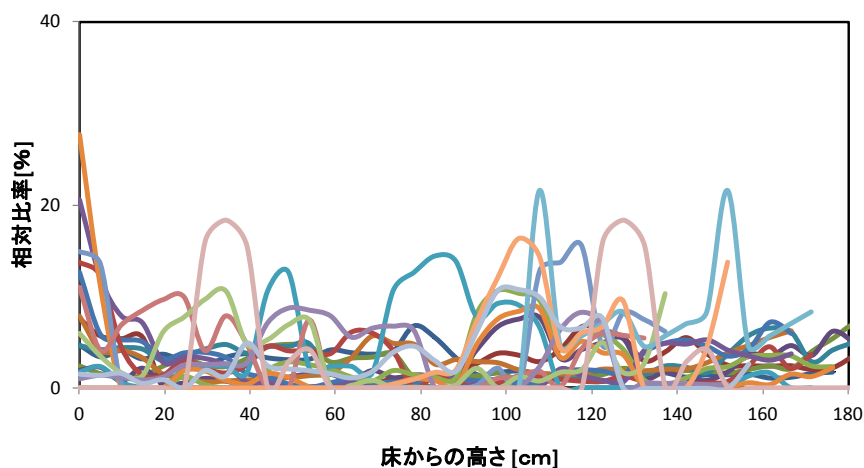


図 III-3 はたきがけ、掃き掃除、（掃除機がけ）の作業中の舞い上がりが付着したろ紙をイメージングプレートで測定

IV. 考察

1. 住家内放射性セシウムの表面汚染密度 福島第一原発からの距離・方向との関係

図Ⅲ-1 のすべての住家において、また、図Ⅲ-2 の西～北西方向の住家において、福島第一原発からの距離と表面汚染密度との間にゆるやかな逆相関関係が観察された。福島第一原発からの方向による差は認められない。図Ⅲ-1 において住民が帰還していない住家と少なくとも1人の住民が帰還している住家を色分けして示しているが、近似式に差もなく双方に違いは現在のところ観察されなかった。図Ⅲ-2 において、福島第一原発に近い双葉町では距離の二乗に反比例しているが距離の離れた浪江町では距離の1.19乗と傾きが小さくなっていた。放出点から一般環境中に流れ出したプルームは、局地的な気象現象の影響を受けながら風に流され拡散していく。ガウスパフモデルでは、放出点からの距離が近いとき分布の広がり小さく中心濃度は高くなるが、出点からの距離が長くなると中心濃度は低くなり、分布の広がり（拡散幅）は大きくなっていく。双葉町と浪江町での傾きの差はこの状況を反映しているとも考えられる。ただし、プルームの放出は複数回にわたっており、また地形や風等の気象条件の影響が大きいことを考慮する必要がある。これまで調査を行った住家の表面汚染密度と換気回数との関係からは、両者間には相関がないことが示されている。鉄筋コンクリート造（集合住宅の1、2、3階におけるもの）はほぼ同じ換気回数を示していたが、同（2階建て1棟）では換気回数は3倍以上多かった。しかしながら、表面汚染密度に差は認められない。一方、福島第一原発から1.6kmと調査住家の中で一番福島第一原発に近い距離にあった木造住家について換気回数は少ないが、表面汚染密度は調査住家の中で一番高い。図Ⅲ-1、図Ⅲ-2 及び表面汚染密度と換気回数との関係の結果は、住家内の汚染レベルは事故直後のプルーム通過時に決定されていること、プルーム通過時に住家に入り込んだ放射性物質はその後に住家の換気回数によって大きくは影響されていないことを示唆するものである。ただし、本調査において換気回数の測定は1回しか行っていない。自然換気は風力、温度差など自然現象により換気量の変動することが知られているため、換気回数との関係については今後さらに詳細な検討が必要である。

2. 表面汚染からのエアロゾル再浮遊係数の評価

エアロゾル全粒径の数値を用いて各住家ごと表面汚染密度中央値との再浮遊係数 K を評価した結果では、 ^{137}Cs 再浮遊係数が表面汚染密度に対してゆるやかな逆相関にあることが示された。再浮遊係数は他のサイクロン式掃除機、家庭用掃除機作業時に比べハタキがけが約1桁高い。 ^{137}Cs 再浮遊係数(/m)は、ハタキがけ（52戸）の場合に約 $6.0\text{E-}03/\text{m}$ 、サイクロン式掃除機（46戸）の場合に約 $1.0\text{E-}03/\text{m}$ 、家庭用掃除機（14戸）の場合に約 $2.0\text{E-}03/\text{m}$ と評価された。ただし、家庭用掃除機とサイクロン式掃除機では測定値がほぼすべてで検出限界値以下であり、検出限界値の1/2の値で評価している。

表面汚染からの再浮遊係数については、原発災害後の住家における生活活動によるデータを調査・評価した報告はこれまでになく、専ら放射線管理のための観点から調査研究が行われてきた⁵⁾。原子力施設の放射性物質等により汚染された場所で作業をする場合、汚染物の再浮遊による空気汚染が放射線管理上の問題となるからである。動力炉・核燃料開発事業団東海事務所再処理工場、日本原子力研究所東海、大洗研究所等の各種放射線作業で測定されたデータを元に求められ

た調査結果では、再浮遊係数の平均的な範囲として機器の除染補修作業時は $1.0E-7 \sim 1.0E-5 / \text{cm}$ 、プルトニウム等を取扱う作業時は $1.0E-7 \sim 1.0E-6 / \text{cm}$ と報告されており、これらをまとめて再浮遊係数はおよそ $1.0E-7 \sim 1.0E-5 / \text{cm}$ としている⁵⁾。すなわち、 $1.0E-5 \sim 1.0E-3 / \text{m}$ であるので上記のハタキがけの場合の数値約 $6.0E-03 / \text{m}$ はこれよりかなり高い数値となっている。この理由としては、再浮遊係数を評価した際の作業内容が異なること、原子力施設と一般住家では床や壁天井の素材や家具・家財の有無など条件が大きく異なること、また、本調査において表面汚染密度を求める際に主に木などの平滑な表面のスミアによっておりカーペットや布団などの布やけぼだ素材のものを対象としていないため（これらの素材では拭き取り効率が取得できない）、表面汚染密度が低く評価されている可能性があることが考えられる。

3. 内部被ばく線量評価

得られた実測値を用いて、DCAL (ORNL/TM-2001/190, 2006)⁶⁾により預託実効線量を計算した。DCAL (Dose and Risk Calculation System) は米国オークリッジ国立研究所で開発された内部被ばく線量評価コードで、これにより組織 T の等価線量 H_T が計算でき、これに組織又は臓器 T の組織加重係数 W_T を乗じて総和することにより実効線量 E が求められる。DCAL は、ICRP が 1990 年に採択した基本勧告 (1990 年勧告)⁷⁾ に対応したコードであり、MIRD 型ファントム⁸⁾で整備された吸収割合データ^{8,9)}に基づき線量を計算する。本研究で調査を行った 52 戸における大人についての 1 日もしくは 1 回の被ばく線量を評価した。評価にあたっては、各戸ごとに粒径分布及び溶存性情報を組み入れて行った。なお、子供について、DCAL では公衆の任意の年齢について線量係数の計算ができるため評価は可能である。しかし、本調査での調査住家は多くが帰還困難区域に位置しており、帰還困難区域への子供の一次立ち入りは許可されておらず、子供についての被ばく線量の評価は現実的ではないため本研究では実施しなかった。

ハウスダストの経口摂取は手を介しての経路によると考えられ、どの粒径のハウスダストが手に付着するかについては様々な報告が出されているが¹⁰⁻¹²⁾、一般的には、 $<150 \mu \text{m}$ のハウスダストが寄与するとする論文が多いようである。本調査のふり分けでは、 $<180 \mu \text{m}$ がこれと近い値となるため、評価にあたっては $<180 \mu \text{m}$ のハウスダストが経口摂取に寄与とした。又、ハウスダスト中の放射性 Cs についてそれぞれの粒径ごとに水溶性の成分、1 規定の塩酸に溶解する成分、それらに溶けない成分の割合を評価している（詳細は分担研究者の報告書で記述。）、これを用いて $<180 \mu \text{m}$ のハウスダストについて小腸での吸収率 (f_1 値) を水溶性の成分と塩酸に溶解する成分については 1 をそれらに溶けない成分については 0.1 を用いて計算した¹³⁾。ハウスダストの経口摂取による預託実効線量と福島第一原発からの距離との間にはゆるやかな逆相関関係が観察された。

ハタキがけ中に再浮遊したエアロゾルを吸入した場合について、ICRP Publ.66¹⁴⁾では粒子径分布に対数正規分布を仮定したときの空気力学的放射能中央径, Activity Median Aerodynamic Diameter (AMAD)が $1 \mu \text{m}$ 、 $5 \mu \text{m}$ の 2 つのモデルを適用している。しかしながら、本研究調査でエアロゾルの粒子径分布は対数正規分布を描いていないため、部位ごとの沈着率は最大値で置き換え安全側での計算を行った。エアロゾルの溶存性はハウスダストと同じであると考え、ハウスダストの溶存性データを用いて f_1 値は水溶性の成分と塩酸に溶解する成分については 1 をそれらに溶けない成分については 0.1 を用いて計算した¹³⁾。ハタキがけを 1.5 時間行ったときの再浮遊エアロゾル吸入による摂取量 I_a (Bq) の評価を (4) 式に従って行った。

$$I_a = C \times M \times t \times T \quad (4)$$

C：空气中放射性物質濃度、M：呼吸率、t：滞在時間（1.5時間）、T：マスク装着による透過率

呼吸率,Mには、カテゴリー「家事の身体活動」の日本人男女の平均呼吸率（放医研ラドン濃度測定・線量評価委員会（1998）による） $M=1.17\text{m}^3/\text{h}$ を用いた。マスクの透過率は装着の仕方によって大きな幅があるが、作業中の空气中放射性物質濃度から評価した摂取量と精密型ホールボディカウンタ(WBC)測定値との比較から透過率,Tを0.5とし、算出した。

エアロゾル吸入による預託実効線量と福島第一原発からの距離との間にはゆるやかな逆相関関係が観察された。（マスクの透過率についての詳細は平成29年度研究報告書 3. 作業者の体内残留放射能の推定を参照されたい。なお、放射線の健康影響に係る研究調査事業 平成30年度成果発表会（終了課題）評価結果において、参考情報として、空气中放射性物質濃度からの計算とWBCによる測定値との関係があると面白いとのコメントをいただいたが、平成29年度研究において作業者のWBC測定を行っており、これに関しても平成29年度研究報告書を参照されたい。）

ハウスダストの経口摂取による預託実効線量及びエアロゾル吸入による預託実効線量の双方ともが福島第一原発からの距離との間にゆるやかな逆相関関係があることが観察された。すなわち、今後の住民の帰還における住家内残留放射性Csに起因する内部被ばく線量は、その住家の福島第一原発からの距離がわかればある程度把握できることを示唆するものである。

表面汚染密度、摂取・吸入による預託実効線量ともに福島第一原発からの距離との間にゆるやかな逆相関関係が観察される。したがって、表面汚染密度と摂取・吸入による預託実効線量は正の相関関係にある。このことは、表面汚染密度の情報により摂取・吸入による預託実効線量を（幅はあるものの）ある程度推定できることを示唆するものである。掃除機吸引・ハタキがけ作業による試料採取に比べてスミア法による試料採取はきわめて簡便で短時間で済む方法であるため、適用しやすい。

4. 帰還する住民に資する情報

4-1 残留放射能の効果的な除去方法

表面汚染密度がある程度高い地域（大熊町、富岡町の、浪江町）で、複数のスミアサンプリングができるのに十分な広さの平滑な平面があった10戸の住家において、以下に示すさまざまな異なる7種類の作業（掃除）を行った後に表面汚染密度がどう変わるか、すなわち残留放射能の効果的な除去方法を調べた。（n=190）それぞれの掃除は同じ面の異なる箇所で行った。

①何もしないでスミア②サイクロン掃除機がけ後スミア③家庭用掃除機がけ後スミア④キムタオル乾式でていねい拭き取り後スミア⑤化学雑巾（サッサ）で1回拭き取り後スミア⑥化学雑巾（サッサ）でていねいに拭き取り後スミア⑦湿式拭き取り、から拭き後乾いてスミア⑧キムタオル除染剤で湿式拭き取り、乾いてからスミアの結果を比較した。図IV-1に①何もせずにスミアしたときの表面汚染密度を1としたときの各作業後の表面汚染密度の比を示す。それぞれの掃除は

同じ面の異なる箇所で行っているが、初期値は①何もせずにスミアしたものと同程度の表面汚染密度であると想定している。図中棒グラフとバーはそれぞれの掃除法についての平均値と 1σ を表す。④キムタオル乾式でていねい拭き取り後スミア⑥化学雑巾（サッサ）でていねいに拭き取り後スミア⑧キムタオル除染剤で湿式拭き取り、乾いてからスミアのあとではいずれも ND であったので検出限界値の $1/2$ で示している。②サイクロン掃除機がけ後スミア③家庭用掃除機がけ後スミアにおいて、相対値が 1 より大きくなっていた。この結果は、これらの掃除法では表面に付着した汚染は除去されておらず、吸引により表面汚染が浮き上がって取れやすくなっていることを示唆していると考えられる。拭き取り効率が上がったため、表面汚染密度が増えているように見えている。つまり、サイクロン掃除機や家庭用掃除機では大きいハウスダストは集塵できるが、表面に付着した汚染は除去されないことを示している。汚染の除去には④キムタオル乾式でていねい拭き取り⑥化学雑巾（サッサ）でていねいに拭き取り⑧キムタオル除染剤で湿式拭き取りの 3 つの方法がきわめて効果的であることがわかった。これらの方法ではハタキがけのようにエアロゾルの再浮遊も生じないので掃除による内部被ばくを避けつつ除染できる方法として推奨される。

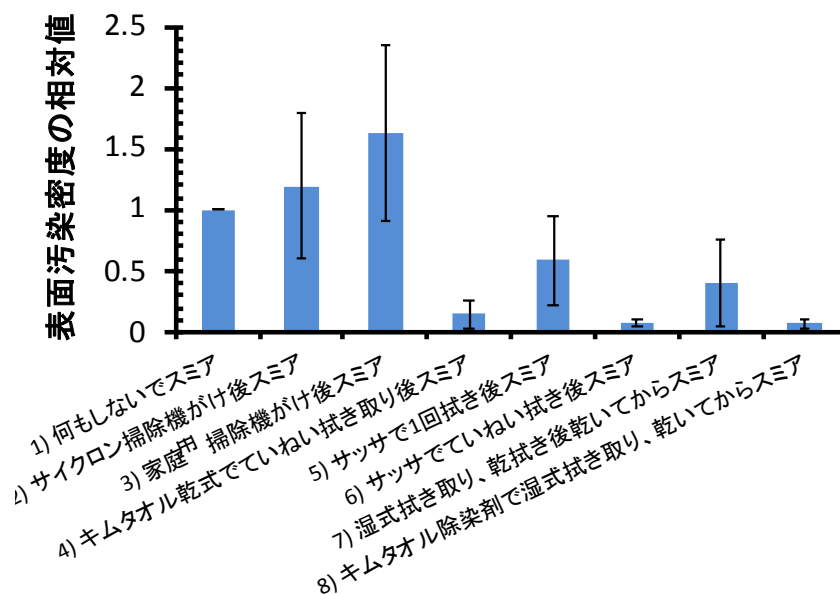


図 IV-1 異なる作業（掃除）後の表面汚染密度の相対値

4-2 屋内表面汚染密度の経時変化

帰還困難区域に位置する住家 5 戸（大熊町 1 個、富岡町 4 戸）及び富岡町の避難指示解除後住民がすでに帰還している住家 1 戸において、時間において屋内表面汚染密度の 2 回目の調査を行った。1 回目の表面汚染密度の数値のほとんどは平成 24～26 年度の原子力災害影響調査等事業で採択された「日本家屋におけるしゃへい係数及び屋内汚染に関わる調査研究」で得たものであり 2015/1/27～2016/10/7 の間に調査された。2 回目は 2018/5/30～2019/2/5 で 1 回目と 2 回目の間の経過日数は 851～1424 日であった。1 回目と 2 回目間の経時変化を図 IV-4 にまとめて示す。図中、避難指示解除後住民がすでに帰還している住家 1 戸について、●で示した。残りは帰還困難

区域に位置する住家 5 戸である。表面汚染密度の数値は 2011/3/11 の日付で減衰補正し、四分位範囲 (Q1-Q3) をバーで示した。1 回目と 2 回目で同一の箇所でスミアして採取した試料について、その変化を評価したころ、帰還困難区域に位置する住家 5 戸のうち、2 回目に平均の数値が 1.54 倍に上がっている住家が 1 戸あった。図 IV-2 中 ● で示す。残り 4 戸では 0.50~0.9 と数値は下がっていた。避難指示解除後住民がすでに帰還している住家 1 戸での数値は下がっていた。時間をおいて 2 回目の調査を行った戸数がまだ少なく数値が上がっていた理由等明確ではない。今後の継続調査が必要である。

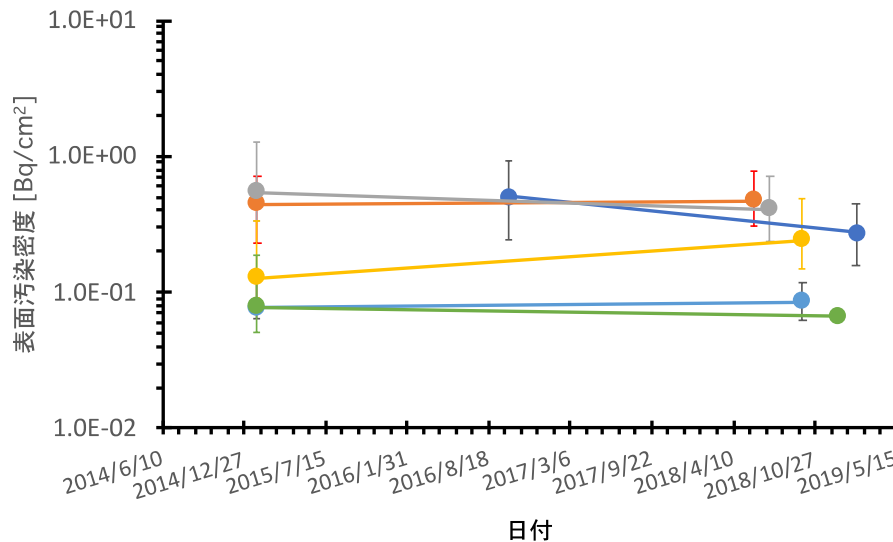


図 IV-2 屋内表面汚染密度の経時変化 帰還困難区域に位置する住家 5 戸と避難指示解除後住民がすでに帰還している住家 1 戸 (●) 表面汚染密度の数値は 2011/3/11 の日付で減衰補正し、四分位範囲 (Q1-Q3) をバーで示した。

V. 結論

今年度は富岡町の 10 戸、浪江町の 5 戸及び大熊町の 2 戸の計 17 戸の住家で調査を行い、3 年間の調査戸数は計 61 戸となった。

全戸について解析を行った結果を以下に示す。(1)福島第一原発からの距離と表面汚染密度との間にはゆるやかな逆相関関係が観察された。原発からの方向依存性は観察されなかった。(2) 住家内の表面汚染密度と換気回数との間に関連は認められず、木造と鉄筋コンクリート造りの住家間で換気率、表面汚染密度に差は見られなかった。(3)エアロゾル全粒径の数値と表面汚染密度中央値を用いて評価した住家ごとの再浮遊係数は表面汚染密度に対してゆるやかな逆相関にあることが示された。(4)実測値を用いて、DCAL (ORNL/TM-2001/190, 2006) により預託実効線量を計算した。$180 \mu\text{m}$ のハウスダストを 20 mg/日経口摂取した場合及びハタキがけ時 (1.5h) のエアロゾルの吸入摂取した場合それぞれについて ^{137}Cs による大人の預託実効線量を評価した結果、双方とも原発からの距離とゆるやかな逆相関関係を示していた。(5) 表面汚染密度と摂取、吸入の預託実効線量はいずれも原発からの距離とゆるやかな逆相関関係がある。すなわち、今後の住民の帰還における住家内残留放射性 Cs に起

因する内部被ばく線量は、その住家の福島第一原発からの距離がわかればある程度把握可能である。表面汚染密度と摂取、吸入の預託実効線量はおよそ比例関係にあることが示された。(6) 浪江町の避難指示が出ている地域の住家と解除された地域の住家との比較を、また、富岡町の避難指示が出ている地域の住家と住民が帰還している住家との比較を表面汚染密度について行ったが福島第一原発からの距離以外の差は観察されなかった。

VI. 次年度以降の計画

2019年4月10日第一原発立地自治体で初めて大熊町の避難指示が一部解除された。2020年度には常磐線の全線運転再開と同時に大野駅及び双葉駅周辺への一般人の出入りが可能になる。また、特定復興再生拠点区域では、再生計画認定の5年後を目途に線量の低下状況も踏まえて避難指示を解除し、居住を目指すこととなっており、大熊町などの地方自治体では除染検証委員会を立ち上げこれらへの準備を開始している。このような状況下、特に福島第一原発に近い地方自治体では住民の帰還を想定して住家内を調査する本調査にきわめ関心が高く、地方自治体の声かけのもとに協力者が増えたため、当初予定した50戸を大幅に超えた調査が可能になった。

平成24年度～26年度の原子力災害影響調査等事業「日本家屋におけるしゃへい係数及び屋内汚染に関わる調査研究」(主任研究者：吉田浩子)で調査した住家から、繰り返しての調査を依頼されたため富岡町では3年前に調査した5戸の住家を再度調査した。4戸は帰還困難区域(特定復興再生拠点区域)、1戸は避難指示が解除されすでに住民が帰還・居住している住家であり、これらの住家で屋内表面汚染密度が経時的にどのような変化をしているのか調べた。(本報告書にも記述。)しかしながら、戸数がまだ少なく明確な変化傾向が観察できていない。地方自治体は、住家内外の残留放射能・放射線についての経時変化についての情報を求めているが、原子力事故後の住家内外の状況を長期にわたって継続して調査したデータはこれまで国内外とも存在しない。

そこで、平成31年度からの放射線健康管理・健康不安対策事業(放射線の健康影響に係る研究調査事業)「被ばく線量に影響を及ぼす住家内外の要因に関わる研究」(主任研究者：吉田浩子)においてこれまでに調査を実施してきた住家のフォローアップ調査を行い、時間経過後、除染後、住民帰還後の変化について情報を収集する。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり

- 1) N. Shinohara, H. Yoshida-Ohuchi. (2018. 5月). Radiocesium contamination in house dust within evacuation areas close to the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *Environment International*, 114: 107-114.

B. 論文：査読なし

なし

C. 学内学会発表

- 1) ○吉田浩子、篠原直秀、真辺健太郎、桧垣正吾. 「福島第一原発に近い地域の住家内セ

シウム汚染による内部被ばく線量評価」日本保健物理学会第 51 回研究発表会,2019/6/30
(札幌)

2) ○吉田浩子、篠原直秀、真辺健太郎。「福島第一原発に近い地域の住家内セシウム汚染の実態とこれによる内部被ばく線量評価」日本原子力学会秋の大会,2018/9/5 (岡山)

3) ○篠原直秀、吉田浩子。「福島第一原子力発電所近傍の住宅室内のセシウム汚染」大気環境学会 放射性物質動態分科会,2018/9/14 (福岡)

4) ○吉田浩子、篠原直秀。「福島第一原発に近い旧避難指示地域での住家内残留セシウム」日本原子力学会春の年会,2019/3/21 (水戸)

D. 国際学会発表

なし

E. 著書

なし

F. 講演

1) 篠原直秀 (2018.9.14), "福島第一原子力発電所近傍の住宅室内のセシウム汚染", 大気環境学会 放射性物質動態分科会, 九州大学, (福岡)

G. 主催した研究集会

なし

H. 特許出願・取得

なし

I. その他

1) 大熊町除染検証委員会就任 (平成 31 年 1 月)

2) 福島県農林水産部農業振興課に協力 「農作業時の放射線被ばく対策」作成 (平成 31 年 3 月)

ふくしま復興ステーションで公開

<http://www.pref.fukushima.lg.jp/site/portal/ps-nogyo-nousin-gijyutu04.html>

VIII. 参考文献

1) Yoshida-Ohuchi, H., Kanagami, T., Satoh, Y., Hosoda, M., Naitoh, Y., Kameyama, M., Indoor radiocaesium contamination in residential houses within evacuation areas after the Fukushima nuclear accident. Sci. Rep. 2016; 6: 26412.
<http://dx.doi.org/10.1038/srep26412>.

2) 復興庁ホームページ 特定復興再生拠点区域復興再生計画
<http://www.reconstruction.go.jp/topics/main-cat1/sub-cat1-4/saiseikyoten/20170913162153.html>

3) JIS Z 4504, Evaluation of surface contamination beta-emitters (maximum beta energy greater than 0.15 MeV) and alpha-emitters. 2008.

- 4) 市川陽一、四方浩、石田健二、大場健護,原子力発電所からの放射性雲による γ 線照射線量率の短時間変動特性の評価方法 日本原子力学会誌 1981;23:212.
- 5) 関昭雄、大西俊彦、叶野豊、岩月恒信,放射線管理のための表面汚染からの再浮遊係数に関する文献調査 動力炉・核燃料開発事業団東海事務所, 1988.
- 6) Eckerman, K.F., Leggett, R.W., Cristy, M., Nelson, C.B., Ryman, J.C., Sjoeren A.L., Ward, R.C. User's Guide to the DCAL System. ORNL/TM-2001/190. 2006.
- 7) The International Commission on Radiological Protection: 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 60. 1991.
- 8) Cristy, M., Eckerman, K.F., Specific Absorbed Fractions of Energy at Various Ages from Internal Photon Sources, ORNL/TM-8381/V1-7. 1987.
- 9) Cristy, M., Eckerman, K.F., SEECAL: Program to Calculate Age-Dependent Specific Effective Energies, ORNL/TM-12351. 1993.
- 10) Yamamoto, N., Takahashi, Y., Yoshinaga, J., Tanaka, A., Shibata, Y., Size Distributions of Soil Particles Adhered to Children's Hands, 2006; 51: 157-163.
- 11) Duggan., M.J., Inskip, M.J., Rundle S.A., Moorcraft, J.S., Lead in Playground Dust and on the Hands of Schoolchildren, Sci. Tot. Environ. 1985; 44: 65-79.
- 12) Choate, L.M., Ranville, J.F., Bunge. A.L., Macalady, D.L., Dermally Adhered Soil: 1. Amount and Particle-Size Distribution, 2006; 2(4): 375-384.
- 13) Pratama., M.A., Takahara., S., Hato, S., Evaluation of Effective Dose Coefficient with Variation of Absorption Fraction in Gastrointestinal System for Ingestion of Radiocesium, Jpn. J. Health Phys., 2017; 52(3): 200-209.
- 14) The International Commission on Radiological Protection: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection, ICRP Publication 66. 1994.

Study of indoor contamination in residential houses and evaluation of internal exposure dose due to indoor radiocaesium contamination

Hiroko Yoshida

Graduate School of Pharmaceutical Sciences, Tohoku University

Key word : radiocaesium, house dust, aerosol, cleaning, resuspension, internal exposure dose

Abstract

Indoor radiocaesium contamination was analyzed for house dust and aerosol samples collected from 61 residential houses, including 17 houses in Tomioka Town, Namie Town, and Okuma Town investigated in this year. A moderate inverse relationship between indoor surface contamination and distance from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, FDNPP was observed. Resuspension factor, which is defined as the ratio of the radiocaesium activity in aerosol collected above the resuspension to the median value of surface contamination, were obtained during dusting and vacuuming with cyclone handy cleaner and normal cleaner for each house. A moderate inverse relationship between resuspension factor during dusting and indoor surface contamination was observed. The average of resuspension factor during dusting was evaluated as $6.27\text{E-}03 \pm 5.16\text{E-}03$ /m, with one standard deviation, which are higher by a factor of ten than those dusting vacuuming with cyclone handy cleaner and normal cleaner. Based on the measured values of house dust and aerosol samples in each house, committed effective doses of ^{137}Cs due to ingestion of house dust and inhalation of aerosol were estimated using DCAL (ORNL/TM-2001/190, 2006) by assuming that an adult intakes 20 mg/day (US EPA, 2017) of the house dust ($< 180 \mu\text{m}$) and inhales aerosol during dusting (1.5h), respectively. Each series of committed effective dose of ^{137}Cs calculated for ingestion of house dust and inhalation of aerosol in each house was inversely proportional to distance from the FDNPP and proportional to indoor surface contamination. Aside from an inverse relationship related to distance from the FDNPP, no clear differences in indoor surface contamination were observed for houses in Namie Town within evacuation areas and those in the areas where the evacuation order was lifted. Nor for houses in Tomioka Town within evacuation areas and those where residents already returned and live either.

1-2-a 住家内汚染の包括的研究及びこれによる内部被ばく線量評価

(分担) 住宅室内における放射性物質の挙動の把握と曝露評価

分担研究者 篠原 直秀 (産業技術総合研究所 安全科学研究部門・リスク評価戦略グループ)

研究要旨

平成30年度は、大熊町・浪江町・富岡町の住宅17軒において調査を実施した。これらの住宅において、住民の掃除を模した掃除機掛け(サイクロン式・吸引式)、ハタキ掛け・掃き掃除を行いながらハウスダストとエアロゾルを粒径別に捕集し、放射性セシウムを測定した。以下には、昨年度までに実施した結果も含めて本年度に評価を行った結果を示す。59軒で換気回数を測定した結果は、 0.40 ± 0.31 回/hであった。ただし、換気回数とハウスダスト中の放射能の間に関連は見られなかった。57軒の住宅におけるハウスダスト重量当たりの放射能濃度は、 $6.4 \times 10^2 \pm 7.5 \times 10^2$ Bq/g (<4-2,000 μm)および $1.2 \times 10^3 \pm 1.4 \times 10^3$ Bq/g (<4-180 μm)であり、粒径が小さいほど高かった。59軒について測定したはたき掛け中の室内空気中の放射能濃度は、 6.8 ± 7.9 Bq/g (全粒径)および 1.6 ± 2.7 Bq/g (PM2.5)であり、粒径が小さいほど、気中放射能は小さかった。53軒の住宅におけるハウスダスト(全粒径)からの水・塩酸抽出試験の結果、残渣中 ^{137}Cs ($48\% \pm 17\%$) > HCl溶解液中 ^{137}Cs ($33\% \pm 12\%$) > 水溶液中 ^{137}Cs ($19\% \pm 11\%$)であり、約50%が胃中でも溶け出ない可能性が示唆された。異なる掃除方法ごとの気中放射能濃度は、はたき掛け ($N=34$; 4.6 ± 1.3 Bq/m³) > サイクロン式ハンディ掃除機掛け ($N=33$; 0.60 ± 0.10 Bq/m³)、吸引式掃除機掛け ($N=14$; 0.65 ± 0.14 Bq/m³) > 屋外 ($N=3$; 0.12 ± 0.081 Bq/m³)であった。12軒で測定した気中粒子濃度も、はたき掛け ($N=12$; PM2.5: 22 ± 12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: 92 ± 56 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > 吸引式掃除機掛け ($N=6$; PM2.5: 7.8 ± 3.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: 19 ± 11 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) > サイクロン式ハンディ掃除機掛け ($N=12$; PM2.5: 4.7 ± 2.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: 8.6 ± 6.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、屋外 ($N=6$; PM2.5: 3.5 ± 1.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: 5.8 ± 1.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)であった。また、気中濃度減衰から求めた気中粒子の減衰速度定数は、PM2.5およびPM10に対して、 0.35 ± 0.18 /時間および 0.53 ± 0.25 /時間 (半減期1.6時間および0.91時間)であった。換気の効果を除いた沈降速度定数は、PM2.5およびPM10に対して、 0.13 ± 0.083 /時間および 0.32 ± 0.12 /時間 (半減期4.9時間および1.8時間)であった。ハタキがけを2時間行った際の下気道沈着量と肺泡沈着量を推定したところ、下気道で1.9 Bq (平均) および6.5 Bq (95パーセンタイル値)、肺泡で2.8 Bq (平均) および10 Bq (95パーセンタイル値)と推定された。

キーワード

室内、放射性セシウム、ハウスダスト、エアロゾル、掃除

研究協力者

なし

I. 研究目的

政府は、東京電力福島第一原発事故で福島県内の4町村に出した避難指示を、帰還困難区域を除いて平成29年3月31日と4月1日に一斉解除した。さらに、「帰還困難区域の取扱いに関する考え方」(平成28年8月31日)において、帰還困難区域のうち、5年を目途に、線量の低下状況も踏まえて避難指示を解除し、居住を可能とすることを目指す「復興拠点」を、各市町村の実情に応じて適切な範囲で設定し、整備することとしている。住民の帰還及び居住にあたっては、住家の屋内は除染の対象となっていないため、住民がもっとも長い時間を過ごす自宅内の身近にある屋内汚染の状況を把握することが外部・内部被ばくによるリスクを評価するうえで重要である。これらの結果を踏まえ、本研究では、より確かな内部被ばく線量を推定するために、屋内汚染レベルが高い福島第一原発周辺の住家において、内部被ばくの原因となるハウスダストとエアロゾルの実態調査を行う。

本年度は、昨年度までに調査件数の少なかった福島第一原発の南方の住宅(主に富岡町)での調査件数を増やすことと、エアロゾルの飛散と沈降についての経時変化を把握すること、掃除種別ごとのエアロゾル測定データを増やすことを行うことを目的として研究を実施した。

II. 研究方法

1. 調査概要と対象住宅

福島県大熊町・浪江町・富岡町の住宅17軒(福島第一原発からの距離3.7~17.1 km)において、9時から17時の間に、全室を住民の掃除を模した掃除機がけ(ハンディサイクロン式掃除機または吸引式一般掃除機もしくはその両方を使用)、さらにハタキがけ、掃き掃除を行いながら、ハウスダストとエアロゾルを捕集した。それらの住宅の換気測定についても行った。また、一部の住宅では、室内の浮遊粒子の経時変化を把握するために、PM10とPM2.5のリアルタイムモニタリングも行った。

2. ハウスダスト中の放射能

① サンプルングと分級

ハウスダストは、サイクロン式掃除機(DC61MH; Dyson)を用いて、最後段に70 mm PFTE フィルター(4 µm 孔径, Advantec PF040; 東洋濾紙)を取り付けた多段式ふるい分け装置(ふるい径: 20, 63, 180, 500, 1000, and 2000 µm)を通して粒径別に捕集した(<20 µm, 20-63 µm, 63-180 µm, 180-500 µm, 500-1000 µm, 1000-2000 µm)。捕集装置を図II-1に示す。実験室において、自動ふるい分け装置(VTX-3000L; LMS)により追加の振とうを行った後、粒径別に2.5 mL PPバイアル(マルコム)に入れて秤量した(AUW120D; 島津製作所)。



図 II-1 多段式ふるい分け装置付きハウスダスト捕集装置 (分担)

② 水溶解性・塩酸溶解性成分の分離

各粒径のハウスダストを約 50 mg もしくは約 100 mg を濃縮遠心管 (General Electric Company, VIVASPIN 20-5K) に秤取し、超純水 2.5 mL もしくは 5.0 mL を加えて 200 rpm で 2 時間振とうした (SR-1; タイテック)。振とう後、直ちに 1 時間 15000g で遠心することでハウスダスト残渣と溶出液を分離した。超純水 1 mL を加えて 1 時間 15000g での遠心を 2 度繰り返して、ダスト表面に吸着している溶出成分も溶出液側に追加で洗い出した。その後、1 規定の塩酸を 5 mL もしくは 2.5 mL を加えて 200 rpm で 2 時間振とうし、直ちに 1 時間 18000g で遠心してハウスダスト残渣と溶出液を分離し、1 mL を加えて 1 時間 18000g での遠心を 2 度繰り返して、洗い出しを行い、1 規定塩酸溶出成分を分離した。塩酸抽出は、環境省による経口曝露を目的とした土壌含有量計測の公定法に従った¹⁾。

③ 放射能測定

捕集したハウスダスト中の放射能測定の詳細は、主任研究者の報告書に記載するため、ここでは簡潔に記載する。

容器に取り分けたハウスダストの放射性セシウム (^{134}Cs , ^{137}Cs) を高純度ゲルマニウム半導体検出器 (EGPC50-195-R, EURISYS) により 1000 ~ 10000 秒間測定した。定量解析は Gamma Studio (DS-P600、セイコー・イージーアンドジー) にて行った。

水溶出試料及び塩酸溶出試料については、100 μL もしくは 200 μL をそれぞれ分取して液体シンチレータ 4 mL を加え、液体シンチレーションカウンタ (Beckman Coulter, Inc., LS- 6500) で ^{134}Cs , ^{137}Cs からのベータ線を 100 分間測定した。放射能の値は、昨年度に実施した複数のサンプルを対象にした液体シンチレーションカウンタとゲルマニウム半導体検出器の測定結果の相関式から求めた (傾き 0.0568; $R^2=0.9974$)。残渣中の放射性 Cs は、高純度ゲルマニウム半導体検出器により 1,000 ~ 20,000 秒間測定し定量した。

3. エアロゾル中の放射能

① サンプルングと分級

エアロゾルのサンプルングは、1. 掃除機がけ中 (サイクロン式掃除機を使用) と、2. ハタキが

け及び掃き掃除中に分けて行った。一部の住宅では、部屋の半分でサイクロン掃除機、半分で通常掃除機を使用して掃除機掛けをそれぞれ分けて行い、それぞれの作業中のエアロゾルを捕集した。エアロゾルの捕集は、ポータブルポンプ (Leland Legacy Pump, SKC) を用いて 9 L/min でカスケードインパクト (Sioutas Cascade Impactor, SKC) 中の PTFE フィルター (孔径 0.5 μm) に粒径ごと (<0.25, 0.25–0.50, 0.50–1.0, 1.0–2.5, 2.5–6.6, and >6.6 μm) に捕集した。PTFE フィルター (孔径 0.5 μm) としては、グリースを塗布したフィルターを用いた。

② 異なる掃除法を行った際の気中放射能

8 軒の住宅において、サイクロン掃除機とはたき掛けの際の気中エアロゾルをそれぞれ粒径別に捕集した。8 軒の住宅では、サイクロン掃除機と普通掃除機とを部屋の半分ずつで分けて行い、さらにはたき掛けを行って、それら 3 種の掃除の際の気中エアロゾルをそれぞれ粒径別に捕集した。また、1 軒の住宅では、室内クリーニング業者の 2 日間の清掃作業中の気中エアロゾルをそれぞれ粒径別に捕集した。

③ 放射能測定

捕集したエアロゾル中の放射能測定の詳細は、主任研究者の報告書に記載するため、ここでは簡潔に記載する。

それぞれのフィルターについて、プラスチックシンチレーション検出器 (JDC-5300, 日立アロカメディカル) で ^{134}Cs , ^{137}Cs からのベータ線を 60–100 分間測定した。放射能の値は、一部のサンプルで測定した高純度ゲルマニウム半導体検出器との相関式から求めた (傾き 0.208, $R^2=0.994$)。

4. 換気回数

住宅の換気回数は CO_2 濃度減衰法により求めた。各部屋ほぼ同じ濃度になるように CO_2 を室内に撒き、戸締りをしたうえで無人の状態での CO_2 測定器 (Lutron Electric, MCH-383SD) により 1 分ごとに CO_2 濃度を数時間測定した。また、測定の前で屋外の CO_2 濃度も測定した。得られた CO_2 の屋内外濃度の差分の減衰を指数関数でフィッティングすることで住宅の換気回数を求めた。

5. 気中粒子濃度の経時変化

清掃作業中の浮遊粒子濃度の上昇及び減衰の経時変化を把握するために、12 軒の住宅において、清掃作業中及びその後数時間の $\text{PM}_{2.5}$ ・ PM_{10} 濃度をポケット $\text{PM}_{2.5}$ センサー (ヤグチ電子工業株式会社) により測定した。清掃作業後、無人状態での室内での粒子濃度の減衰を指数関数でフィッティングし、換気回数を減算することで、粒子沈降速度定数を求めた。

(倫理面への配慮)

本研究では、個人の住家内の測定を行うため、その結果には個人情報が含まれる。調査にあたっては、東北大学薬学研究科における「ヒトを対象とする研究に関する倫理審査」の承認をすでに受けており、調査の方法は承認を受けた以下の手順による。

対面もしくは書面の通知により「調査の目的と方法の説明および調査へのご協力をお願い」を説明し、同意を書面で得る。住民が避難している場合は住民への通知及び測定時の立ち会いは自治体を通して行う。得られた結果について、被験者に対し線量結果のお知らせを通知する。

さらに、個人の人権への対策として、研究実施に際しては、人間の尊厳を尊重するとともに、個人の人権の保障が科学的または社会的利益に対して優先することを基本とし、個人情報の保護の徹底をはかる。

そのための具体的な配慮を以下に示す。

○被験者は本人の自由意思で実験への同意、非同意を決定することができる。

○被験者はいつでも本人の自由意思で実験の中止を決定できる。

○実験者は、被験者の人権を尊重し、実験終了後も結果の利用等において、被験者のプライバシーの保護を優先する。

○個人情報実施責任者が厳格に管理及び取扱うこととし、研究目的以外には用いない。

○個人情報利用の際は、個人の特定に至ることはないように配慮する。

III. 研究結果

1. ハウスダスト中の放射能

① ハウスダスト中の放射能

今年度これまでに分析を実施した 13 軒の住宅で、粒径が $<20\ \mu\text{m}$, $20\text{--}63\ \mu\text{m}$, $63\text{--}180\ \mu\text{m}$, $180\text{--}500\ \mu\text{m}$, $500\text{--}1000\ \mu\text{m}$, $1000\text{--}2000\ \mu\text{m}$ のハウスダスト中の ^{137}Cs (平均 \pm SD) は、 $9.2\times 10^2\pm 1.7\times 10^3$, $6.3\times 10^2\pm 9.1\times 10^2$, $4.2\times 10^2\pm 6.3\times 10^2$, $1.9\times 10^2\pm 2.5\times 10^2$, $1.2\times 10^2\pm 1.5\times 10^2$, $1.2\times 10^2\pm 1.7\times 10^2$ Bq/g であり、粒径が小さいほどダスト重量当たりの放射能が高くなる傾向にあった (図 III-1)。全粒径 ($4\text{--}2000\ \mu\text{m}$) および手に付着しやすい粒径 ($4\text{--}180\ \mu\text{m}$) では、 $3.3\times 10^2\pm 4.7\times 10^2$, $5.3\times 10^2\pm 8.0\times 10^2$ Bq/g であった。昨年度までの結果と同様、ダスト重量当たりの放射性 Cs は、家ごとに大きく異なっていた。

昨年度までに分析したものを含めた 57 軒の住宅の結果は、粒径が $<20\ \mu\text{m}$, $20\text{--}63\ \mu\text{m}$, $63\text{--}180\ \mu\text{m}$, $180\text{--}500\ \mu\text{m}$, $500\text{--}1000\ \mu\text{m}$, $1000\text{--}2000\ \mu\text{m}$ のハウスダスト中の ^{137}Cs (平均 \pm SD) は、 $3.3\times 10^3\pm 4.2\times 10^3$, $1.4\times 10^3\pm 1.7\times 10^3$, $9.3\times 10^2\pm 1.2\times 10^2$, $4.2\times 10^2\pm 5.8\times 10^2$, $2.6\times 10^2\pm 4.9\times 10^2$, $2.3\times 10^2\pm 3.9\times 10^2$ Bq/g であった (表 III-1)。全粒径 ($4\text{--}2000\ \mu\text{m}$) および手に付着しやすい粒径 ($4\text{--}180\ \mu\text{m}$) では、 $6.4\times 10^2\pm 7.5\times 10^2$, $1.2\times 10^3\pm 1.4\times 10^3$ Bq/g であった。

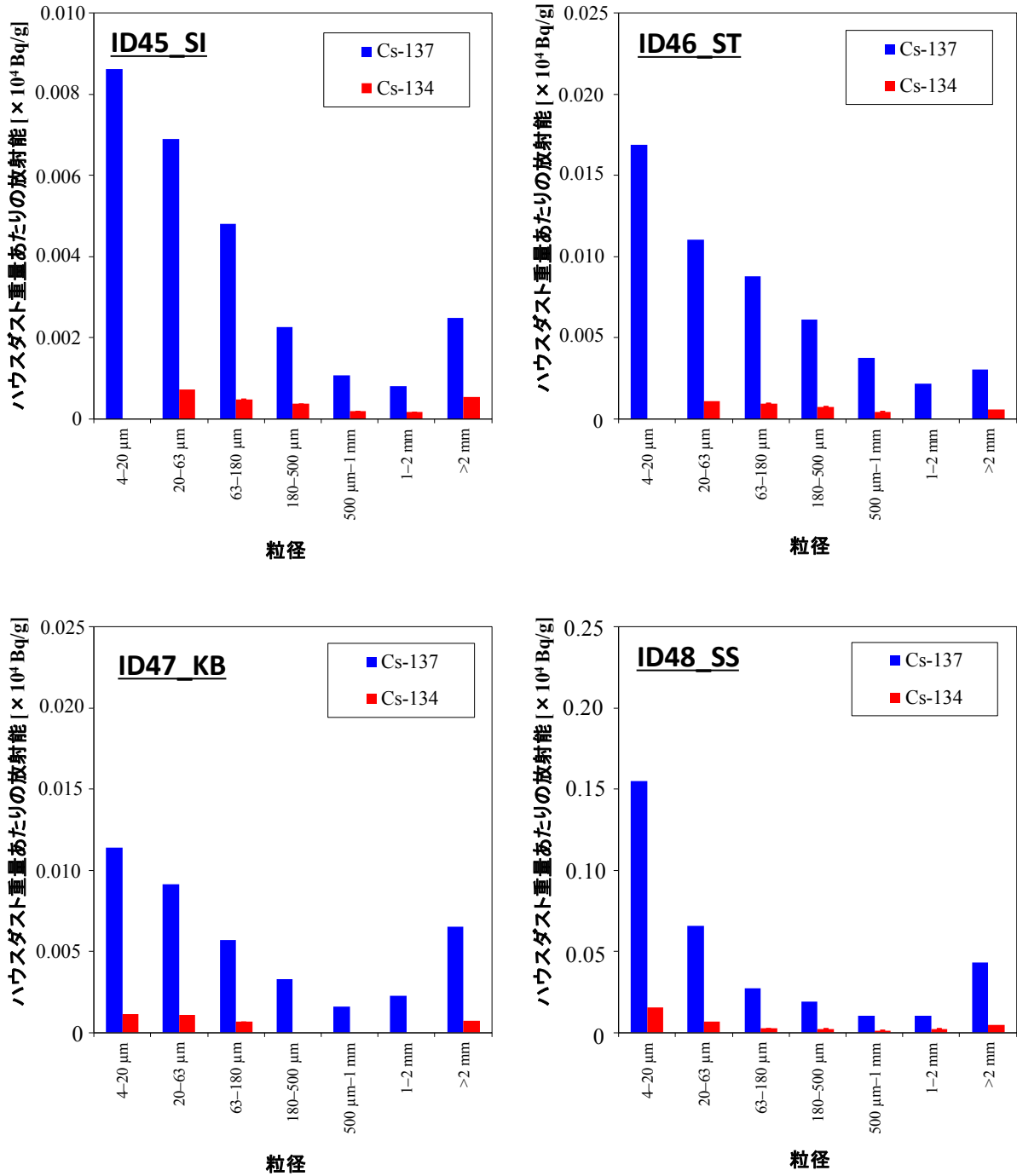


図 III-1 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs) (分担)
粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

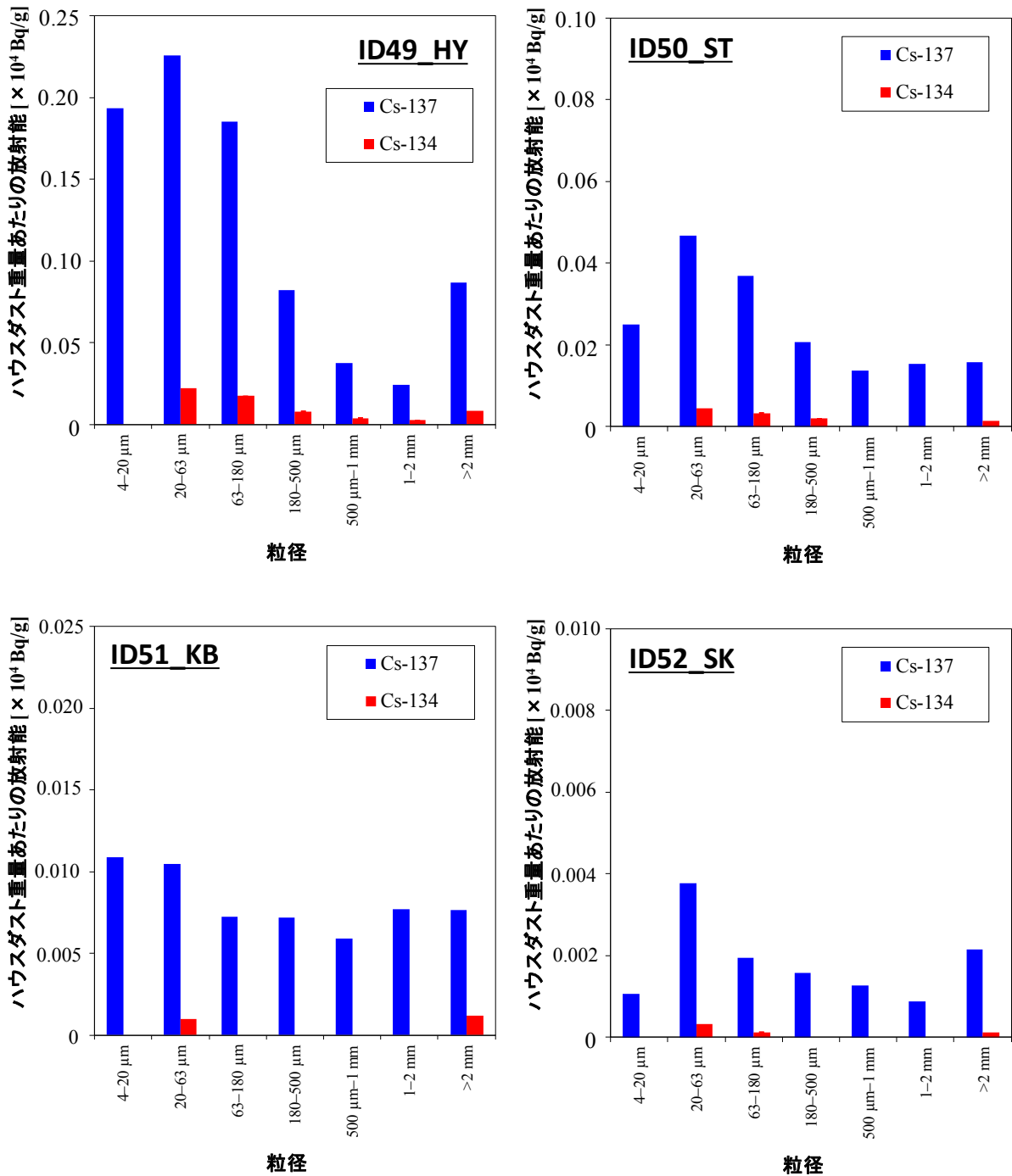


図 III-1 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs) (分担)
粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

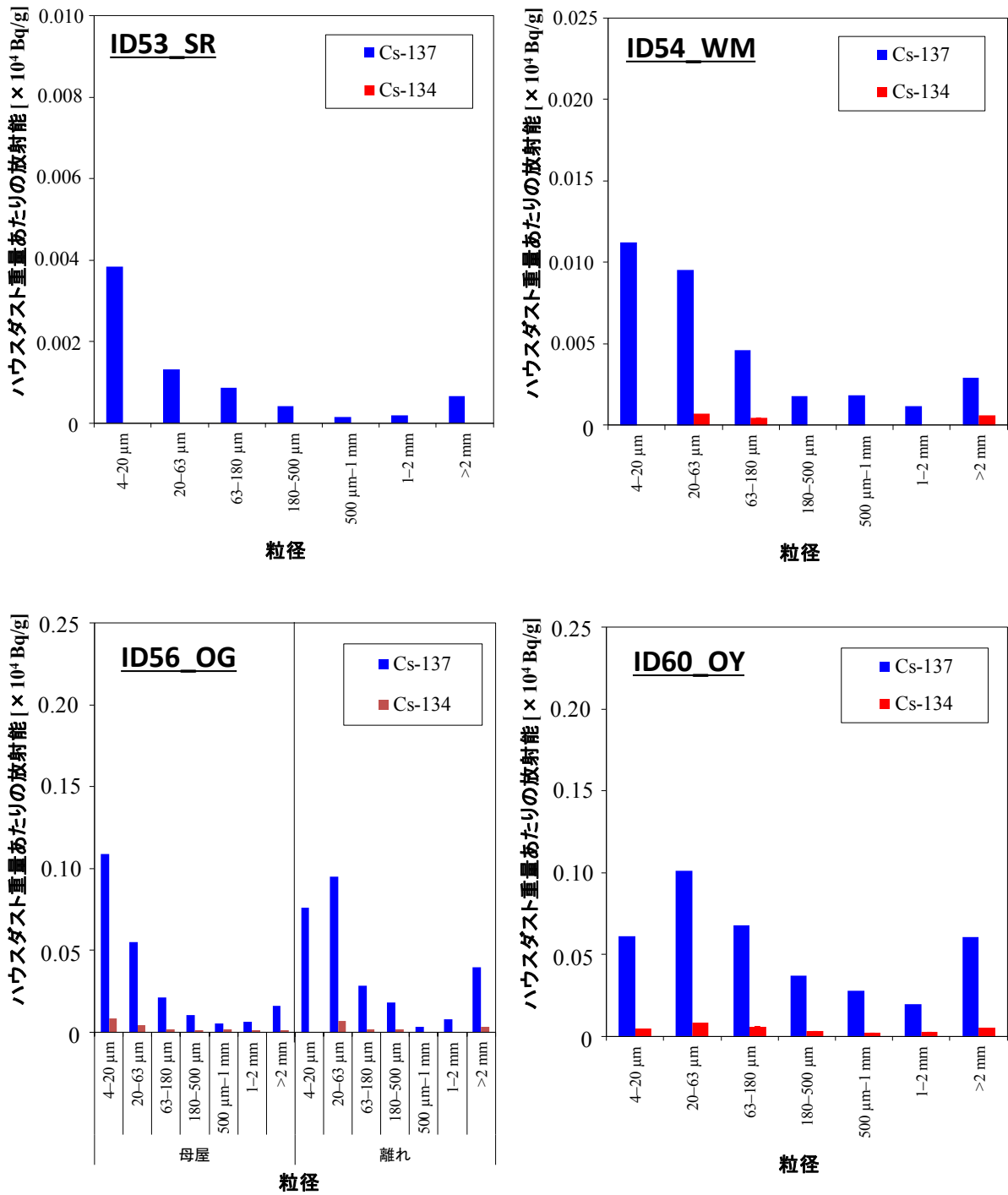


図 III-1 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs) (分担)
粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

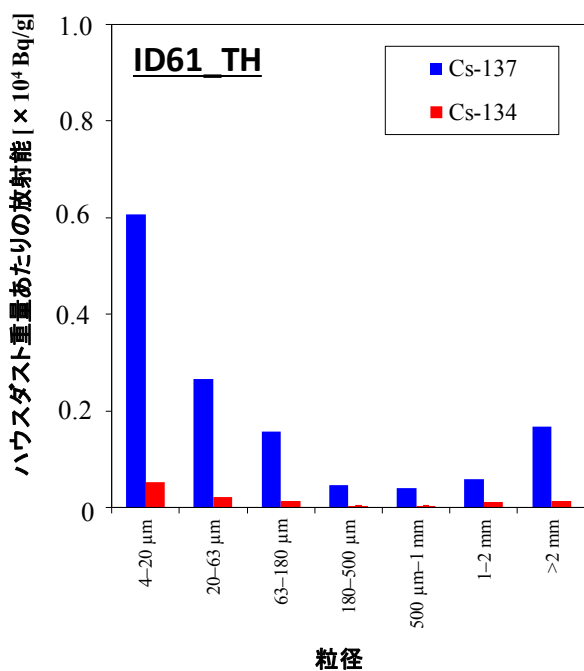


図 III-1 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs) (分担)
粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

表 III-1 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 ¹³⁷Cs 濃度 [N=57] (分担)。

粒径	ハウスダスト重量当たりの Cs ¹³⁷ (Bq/g)			
	平均 ± SD	中央値	95 パーセンタイル値	最大値
<4-20 μm	$3.3 \times 10^3 \pm 4.2 \times 10^3$	1.6×10^3	1.2×10^4	1.8×10^4
20-63 μm	$1.4 \times 10^3 \pm 1.7 \times 10^3$	6.6×10^2	5.5×10^3	6.9×10^3
63-180 μm	$9.3 \times 10^2 \pm 1.2 \times 10^3$	4.5×10^2	3.3×10^3	6.3×10^3
180-500 μm	$4.2 \times 10^2 \pm 5.8 \times 10^2$	2.3×10^2	1.2×10^3	3.1×10^3
500-1,000 μm	$2.6 \times 10^2 \pm 4.9 \times 10^2$	1.4×10^2	5.7×10^2	3.0×10^3
1,000-2,000 mm	$2.3 \times 10^2 \pm 3.9 \times 10^2$	1.1×10^2	6.0×10^2	2.5×10^3
全粒子 (<4-2,000 μm)	$6.4 \times 10^2 \pm 7.5 \times 10^2$	3.4×10^2	2.2×10^3	3.6×10^3
付着粒子 (<4-180 μm)	$1.2 \times 10^3 \pm 1.4 \times 10^3$	5.2×10^2	3.9×10^3	6.2×10^3

② ハウスダスト中の放射能の水溶性・塩酸溶解性

今年度これまでに分析を実施した 11 軒の住宅のハウスダスト中の放射性 Cs (全粒子 (<4-2,000 μm))の水溶性、塩酸溶性、残渣の比率は、 $17\% \pm 10\%$ 、 $30\% \pm 18\%$ 、 $53\% \pm 23\%$ であり、

水溶成分、塩酸溶成分の割合は家ごとに大きく異なっていた。また、粒径が小さいほど溶けやすい傾向がみられた（図 III-2）。

昨年度までに分析したものを含めた 53 軒の住宅のハウスダスト(全粒子 (<4-2,000 μm))中の放射性 Cs の水溶性、塩酸溶性、残渣の比率は、19% ± 11%、33% ± 12%、48% ± 17%であった。

(表 III-2)。付着粒子 (<4-180 μm)では、16% ± 10%、34% ± 11%、50% ± 16%であった。(表 III-2)。

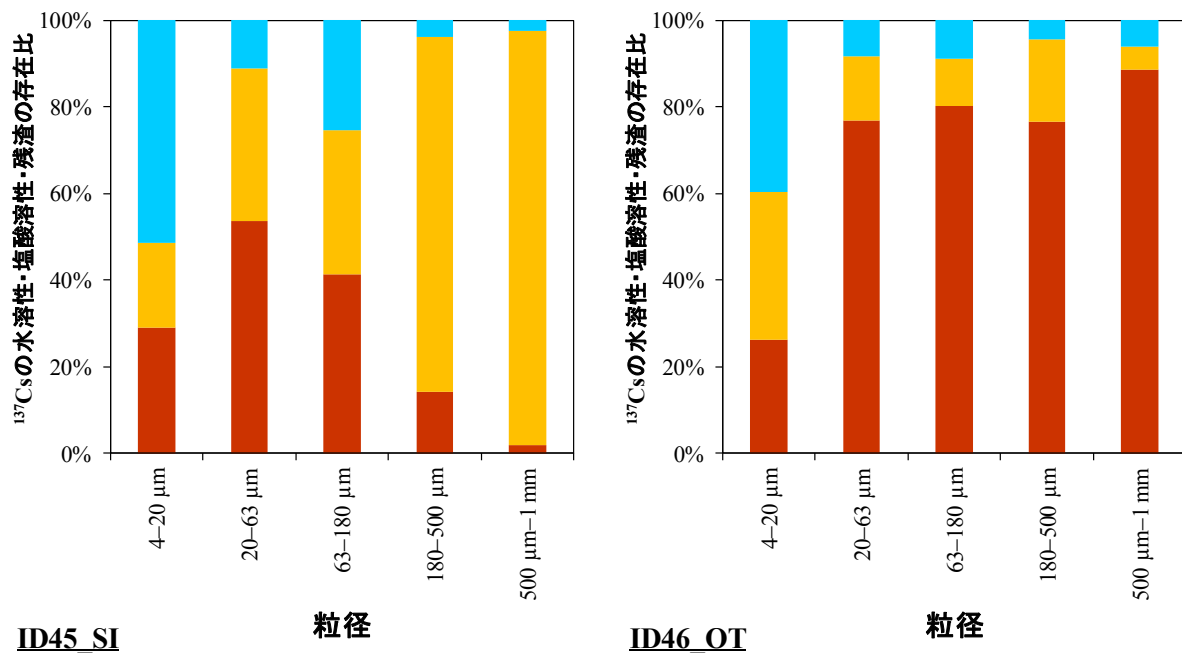
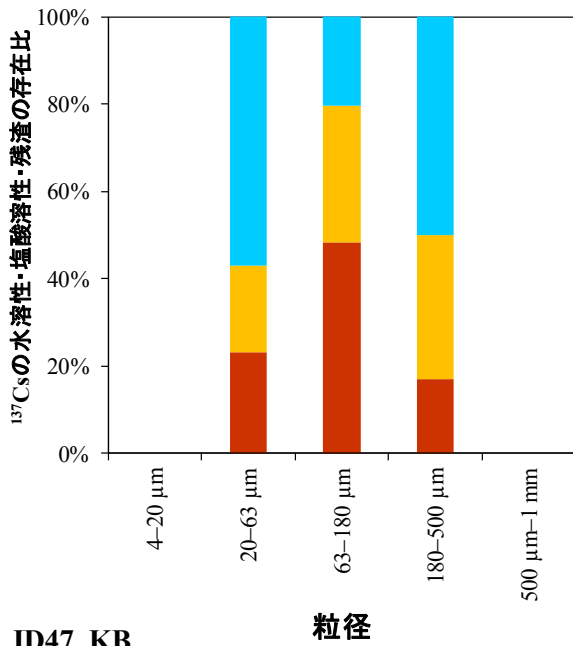
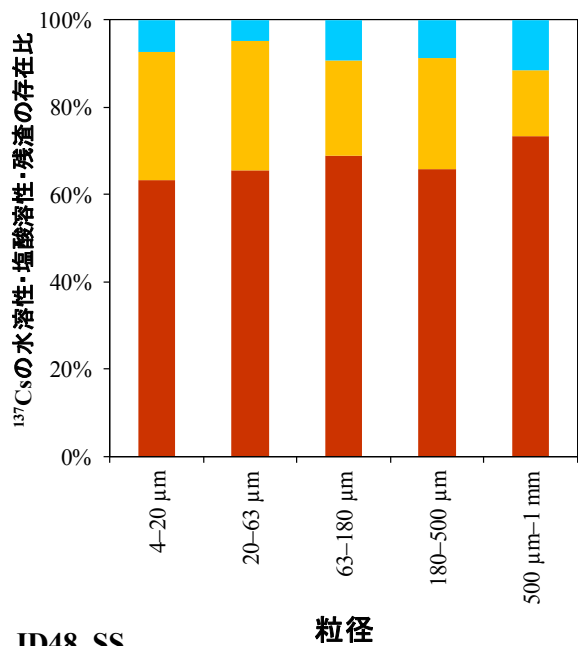


図 III-2 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合（分担）

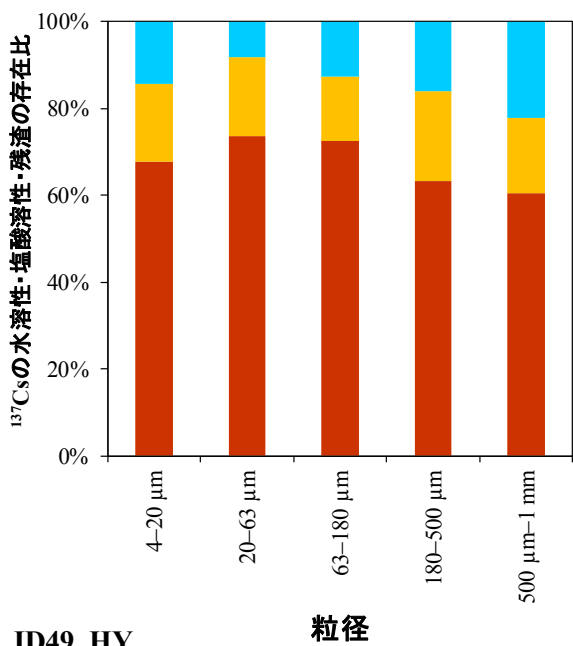
それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。



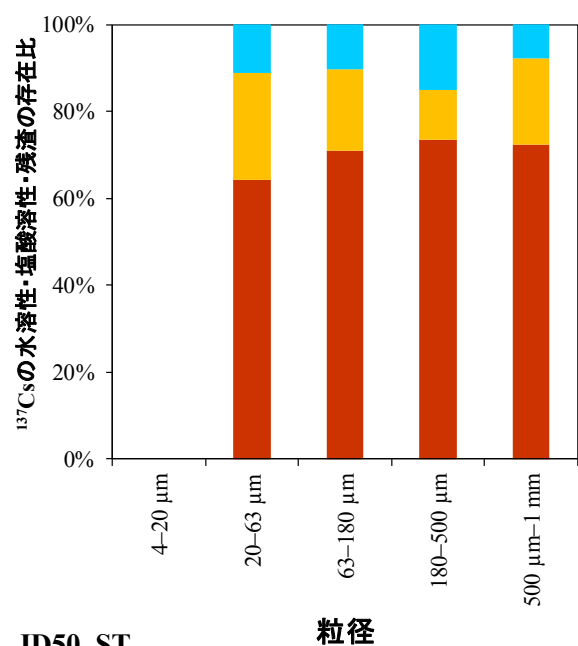
ID47_KB



ID48_SS

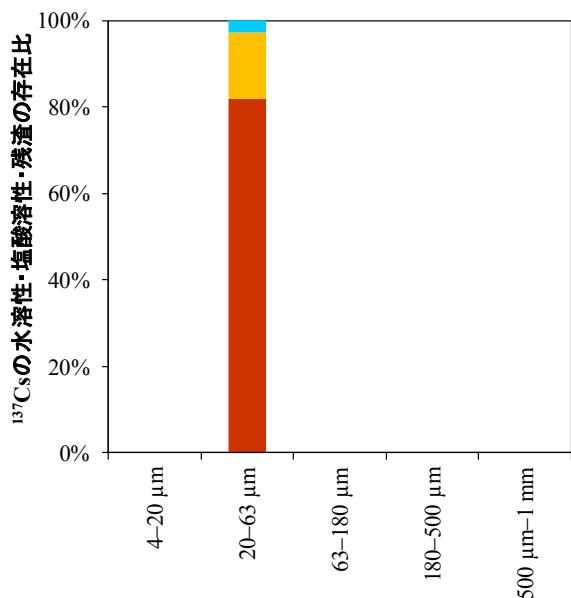


ID49_HY



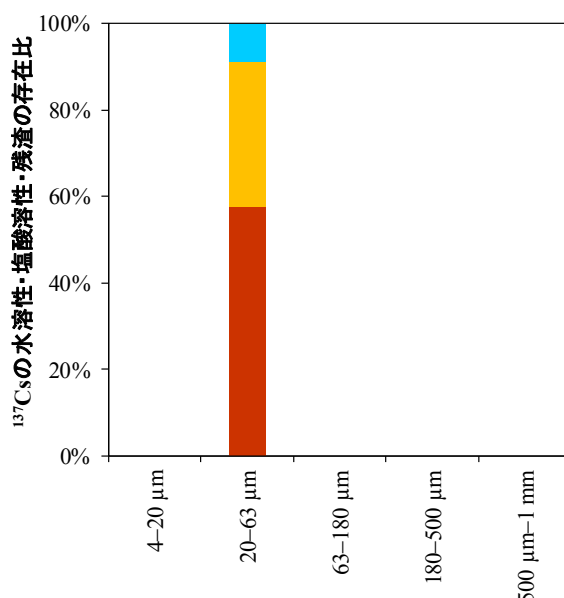
ID50_ST

図 III-2 (続き) 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 (分担) それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。



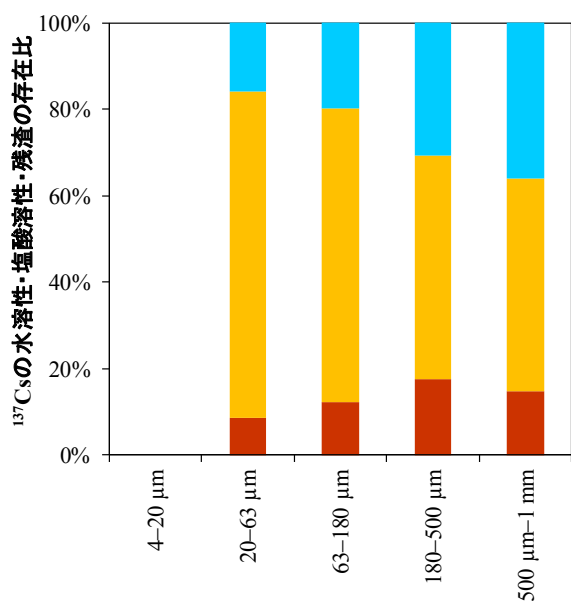
ID51_KB

粒径



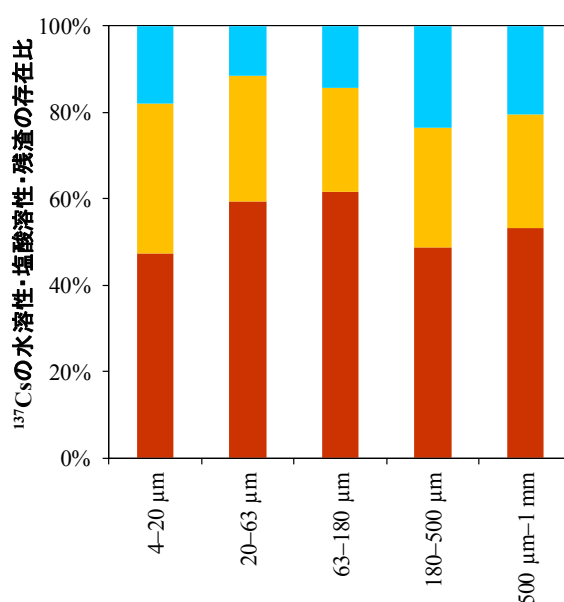
ID52_SK

粒径



ID56_OB

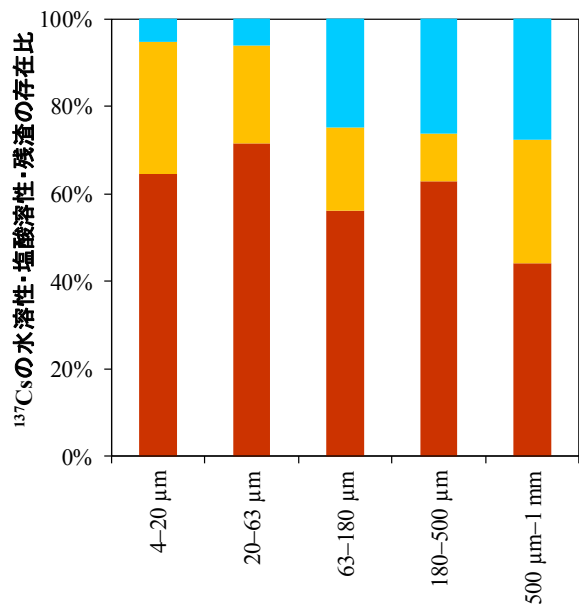
粒径



ID60_OY

粒径

図 III-2 (続き) 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 (分担) それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。



ID61_TH

粒径

図 III-2 (続き) 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 (分担) それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。

表 III-2 粒径別のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 [N = 53] (分担)

	粒径	平均±SD
残渣	<4-20 μm	43%±18%
	20-63 μm	52%±15%
	63-180 μm	49%±18%
	180-500 μm	44%±18%
	500-1,000 μm	47%±24%
	全粒子 (<4-2,000 μm)	48%±17%
	付着粒子 (<4-180 μm)	50%±16%
HCl 溶解	<4-20 μm	41%±15%
	20-63 μm	35%±11%
	63-180 μm	32%±12%
	180-500 μm	33%±14%
	500 μm-1 mm	29%±18%
	全粒子 (<4-2,000 μm)	33%±12%
	付着粒子 (<4-180 μm)	34%±11%
水溶	<4-20 μm	16%±11%
	20-63 μm	13%±10%
	63-180 μm	18%±11%
	180-500 μm	22%±13%
	500 μm-1 mm	23%±15%
	全粒子 (<4-2,000 μm)	19%±11%
	付着粒子 (<4-180 μm)	16%±10%

③ ハウスダスト中の放射能と福島第一原発からの方角・距離の関係

昨年度までに分析したものを含めた 56 軒の住宅のハウスダスト中の放射能は、福島第一原子力発電所からの距離の 2 乗の逆数と相関していた (図 III-3)。粒径が小さい <4-20 μm や 20-63 μm のハウスダストで、大きい粒径のハウスダストよりも相関が強かった。ハウスダスト中の放射能と福島第一原子力発電所からの方角の間には明らかな傾向は見られなかった。

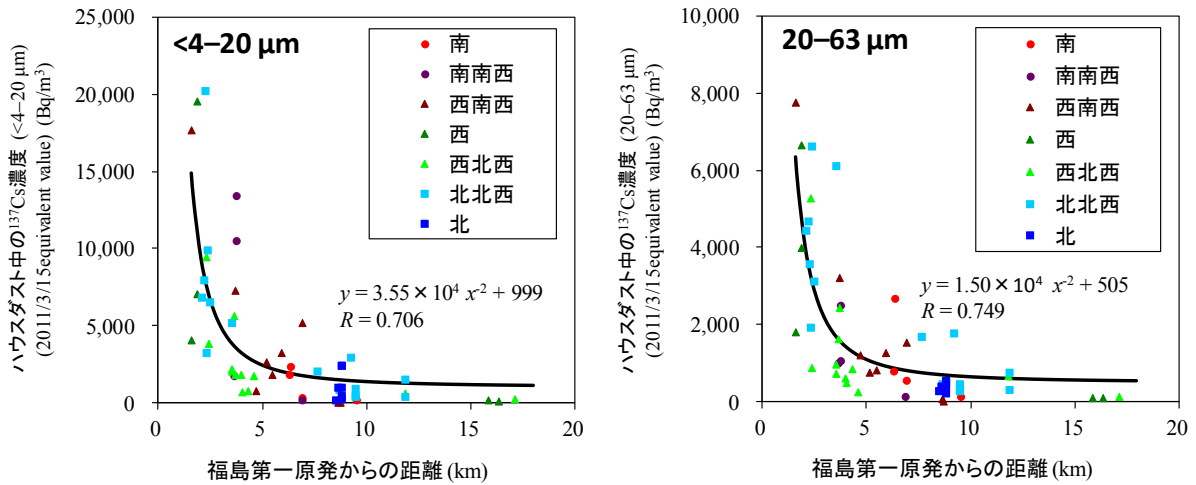


図 III-3 ハウスダスト中の ¹³⁷Cs 濃度と福島第一原発からの距離・方角の関係 (分担)

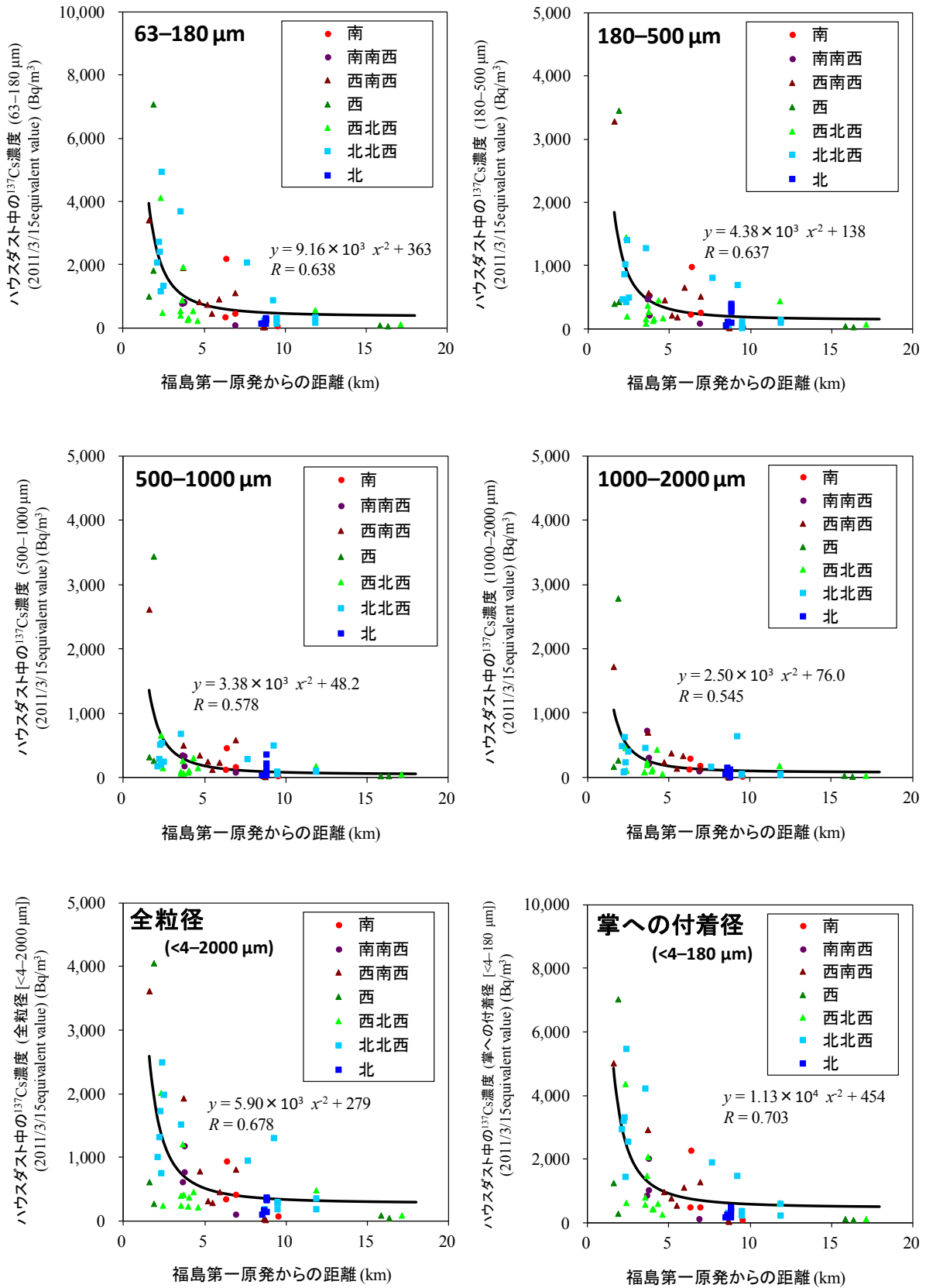


図 III-3 (続き) ハウスダスト中の ^{137}Cs 濃度と福島第一原発からの距離・方角の関係 (分担)

2. エアロゾル中の放射能

① エアロゾル中の放射能

16軒の住宅で、はたき掛け中の空気中の¹³⁷Cs(平均±SD)は、粒径が<0.25, 0.25–0.5, 0.5–1.0 μm, 1.0–2.5 μm, 2.5–6.6 μm, >6.6 μm のエアロゾルに対して、 0.095 ± 0.0099 , 0.18 ± 0.18 , 0.38 ± 0.62 , 0.86 ± 1.9 , 1.4 ± 2.6 , 1.7 ± 3.2 Bq/m³であった。全粒子およびPM2.5では、 4.6 ± 8.3 , および 1.5 ± 2.6 Bq/m³であり、昨年度までの結果と同様、粒径が小さいほど室内空気1 m³当たりの放射能は低かった。

昨年度までに分析したものを含めた59軒の住宅での空気中の¹³⁷Cs(平均±SD)は、粒径が<0.25, 0.25–0.5, 0.5–1.0 μm, 1.0–2.5 μm, 2.5–6.6 μm, >6.6 μm のエアロゾルに対して、 0.099 ± 0.10 , 0.22 ± 0.38 , 0.41 ± 0.74 , 0.92 ± 1.7 , 2.2 ± 2.8 , 2.9 ± 3.2 Bq/m³であり、全粒子およびPM2.5では、 6.8 ± 7.9 , および 1.6 ± 2.7 Bq/m³であった(表 III-3)。また、これら59軒の粒径分布を図 III-4 に示す。

表 III-3 粒径別の気中¹³⁷Cs濃度 [N=59] (分担)

粒径	エアロゾル粒径別の室内空気1 m ³ 中のCs ¹³⁷ (Bq/m ³)				検出数
	平均 ± SD	中央値	95 パーセンタイル値	最大値	
<0.25 μm	0.099 ± 0.10	N.D. (<0.18)	0.19	0.77	14/59
0.25–0.5 μm	0.22 ± 0.38	N.D. (<0.22)	0.63	2.6	15/59
0.5–1.0 μm	0.41 ± 0.74	N.D. (<0.34)	1.9	4.5	24/59
1.0–2.5 μm	0.92 ± 1.7	0.36	3.5	11	40/59
2.5–6.6 μm	2.2 ± 2.8	1.2	9.0	15	51/59
>6.6 μm	2.9 ± 3.2	1.8	9.2	14	53/59
全粒子	6.8 ± 7.9	4.7	23	41	56/59
PM2.5	1.6 ± 2.7	0.78	6.0	17	45/59

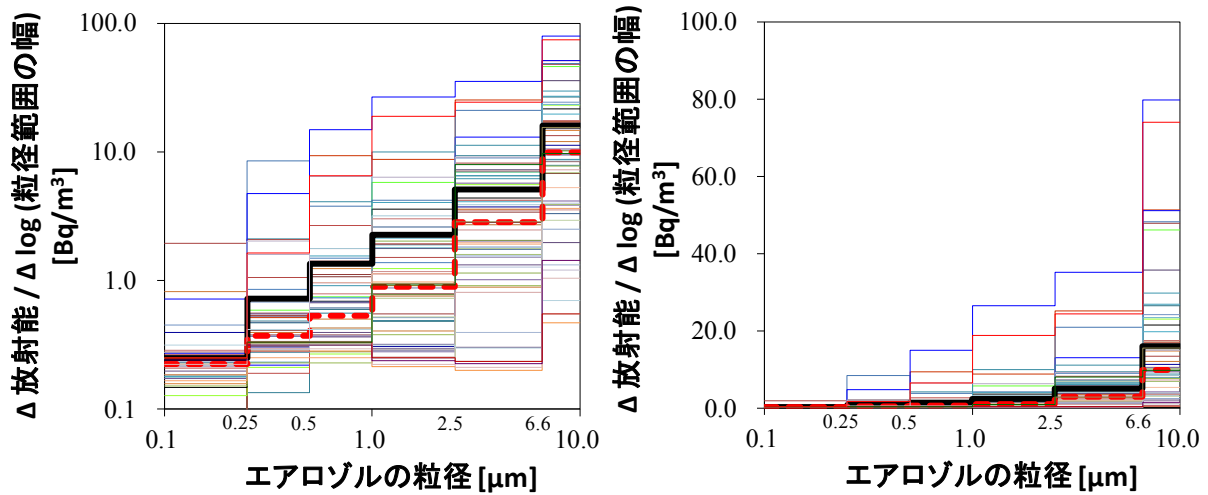


図 III-4 気中放射能の粒径分布 ($N=59$) (左図は右図の縦軸を対数表記にしたもの) (分担)
 黒い実線は平均値、赤い破線は中央値を示している。

※ 粒径別の単位体積当たりの放射能を示す際に、粒径範囲の取り方によって単位体積当たりの放射能が異なることになる。例えば、ある画分の粒径範囲を合わせて一つの粒径範囲とした場合、その粒径範囲の放射能はそれぞれの粒径範囲の放射能を足し合わせた合計の放射能となる。つまり、その粒径範囲の取り方によって縦軸の放射能が大きく異なることとなり、粒径分布を恣意的にゆがめることも可能となる。それを避けるために、粒径範囲の取り方によらない粒径分布の示し方として、一般的に、粒径範囲の幅で規格化する方法が取られる。そのため、縦軸は「 Δ 放射能/ $\Delta \log$ (粒径画分の幅)」という粒径範囲の幅で規格化した値となっている。規格化する分母は \log を取っていることで無次元化されており、縦軸の単位は $[\text{Bq}/\text{m}^3]$ と規格化する前と変わらない。

② 空気中の放射能と福島第一原発からの方角・距離の関係

昨年度までに分析したものを含めた 59 軒の住宅のはたき掛け中の室内空気中の放射能は、福島第一原子力発電所からの距離の 2 乗の逆数と相関していた (図 III-5)。ただし、ハウスダスト中の放射能と福島第一原子力発電所からの距離との関係と比べて、相関は小さかった。また、室内空気中の放射能と福島第一原子力発電所からの方角の間には明らかな傾向は見られなかった。

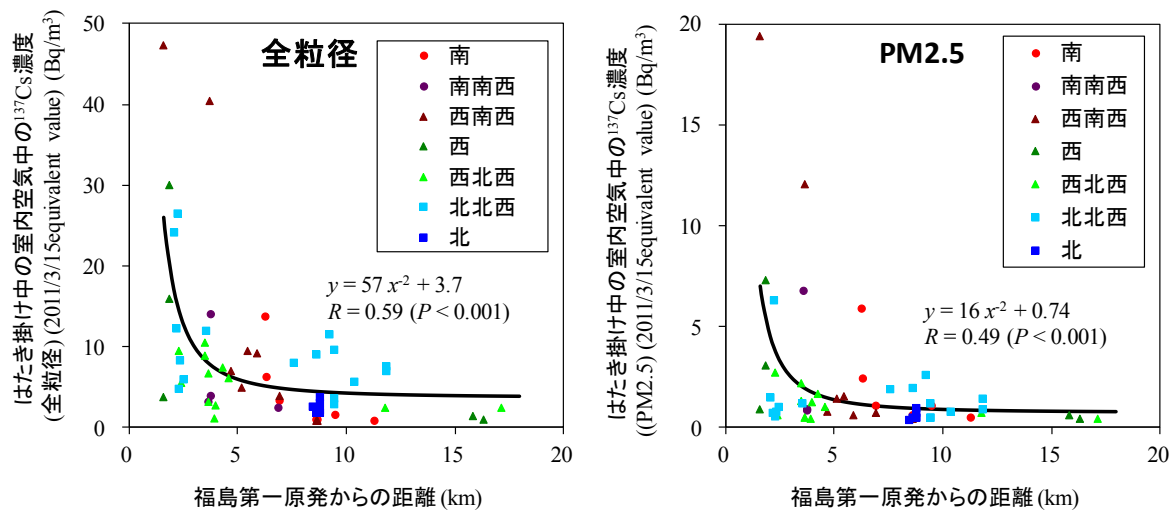


図 III-5 はたき掛け中の気中¹³⁷Cs濃度と福島第一原発からの距離・方角の関係 (分担)

③ 異なる掃除を行った際の室内空気中放射能

複数の掃除を分けて実施した 16 軒において、はたき掛け (N=16) の PM2.5 粒子の室内空気中放射能は $1.5 \pm 2.6 \text{ Bq/m}^3$ であったのに対し、サイクロン掃除機 (N=16) 及び吸引式普通掃除機 (N=8) を用いて掃除を行った場合の室内空気中の放射能は全て検出下限以下であった。

昨年度までに分析したものを含めた 34 軒の住宅では、はたき掛け (N=34) の PM2.5 粒子の室内空気中放射能は $4.6 \pm 1.3 \text{ Bq/m}^3$ であったのに対し、サイクロン掃除機 (N=33) 及び吸引式普通掃除機 (N=14) を用いて掃除を行った場合の室内空気中の放射能は全て検出下限以下であった (図 III-6)。サイクロン掃除機を用いて掃除を行った住宅の内 2 軒で、 $2.5\text{--}6.6 \mu\text{m}$ のフィルターにおいて放射能が検出され、吸引式普通掃除機を用いて掃除を行った住宅の内 1 軒で、 $>6.6 \mu\text{m}$ のフィルターにおいて放射能が検出された。

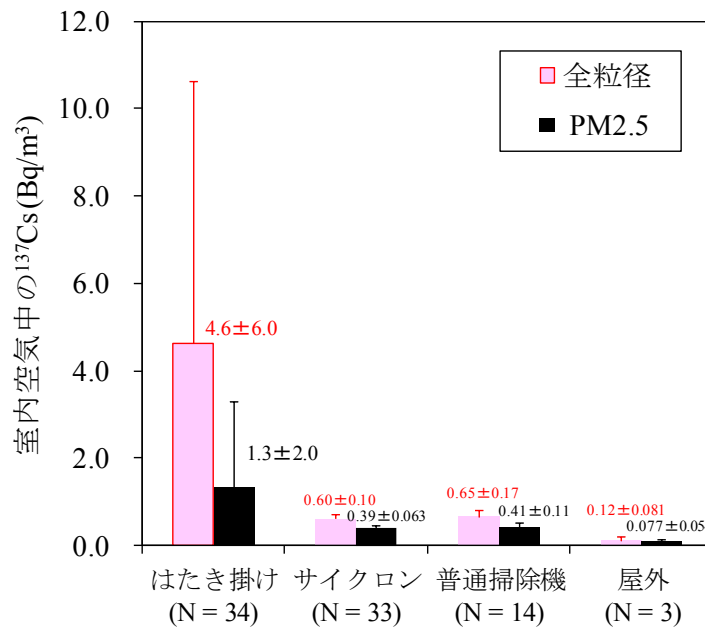


図 III-6 掃除の方法ごとの室内空気中の放射能 (分担)

3. 換気回数

今年度これまでに解析が完了した 17 軒の住宅の換気回数（平均±SD）は、 0.34 ± 0.28 /h であった（表 III-4）。昨年度までに調査した住宅を含めた 59 軒の住宅の換気回数（平均±SD）は、換気回数の平均は 0.40 ± 0.31 回/h であった。

表 III-4 本年度調査 12 軒で測定した住宅の換気回数（分担）

ID	場所	換気回数 [回/h]		ID	場所	換気回数 [回/h]	
		平均	SD			平均	SD
ID_45	1F キッチン	0.79	-	ID_54	1F 和室	0.21	0.0078
	1F 奥の和室	0.59	-		1F 寝室	0.19	0.000014
	2F 手前和室	0.46	-		2F	0.12	0.0047
ID_46	左手前和室	1.0	-	ID_55	DK	0.39	0.0051
	真中奥和室	1.0	-		リビング	0.43	0.0032
	右奥キッチン	1.0	-	ID_56	1F 右和室	0.80	0.059
ID_47	1F	0.55	-		1F 左寝室	1.0	0.044
	2F	0.30	-		2F	0.79	0.0015
ID_48	1F	0.13	0.036	ID_57	1F	0.45	0.0033
	2F	0.14	-		2F	0.41	0.0087
ID_49	1F	0.18	0.0048	ID_58	1F 右和室	0.25	0.012
	2F	0.15	0.0084		1F 左和室	0.12	0.0015
ID_50	1F	0.11	0.00030		2F 奥和寝室	0.094	0.0063
	2F	0.080	0.0016	ID_59	1F 右和室	0.26	-
ID_51	1F	0.10	0.0051		1F 左和室	0.41	0.0013
	2F	0.10	0.00066		2F	0.70	0.0039
ID_52	1F 和室	0.36	0.0065	ID_60	1F	0.30	0.00040
	1F リビング	0.37	0.013		2F	0.19	0.0045
	2F 寝室	0.13	0.0035	ID_61	1F	0.23	0.0050
ID_53	1F 左洋室	0.035	0.0016		2F	0.077	0.011
	1F 右和室	0.028	0.000014				
	2F	0.033	0.00099				

4. 気中粒子濃度の経時変化

12 軒で測定した気中粒子濃度の経時変化を図 III-7 に示す。気中粒子濃度は、はたき掛け ($N = 12$; PM2.5: $22 \pm 12 \mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: $92 \pm 56 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > 吸引式掃除機掛け ($N = 6$; PM2.5: $7.8 \pm 3.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: $19 \pm 11 \mu\text{g}/\text{m}^3$) > サイクロン式ハンディ掃除機掛け ($N = 12$; PM2.5: $4.7 \pm 2.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: $8.6 \pm 6.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$), 屋外 ($N = 6$; PM2.5: $3.5 \pm 1.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, PM10: $5.8 \pm 1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。また、気中濃度減衰から求めた気中粒子の減衰速度定数は、PM2.5 および PM10 に対

して、 0.35 ± 0.18 /時間および 0.53 ± 0.25 /時間（半減期 1.6 時間および 0.91 時間）であった。換気の効果を除いた沈降速度定数は、PM2.5 および PM10 に対して、 0.13 ± 0.083 /時間および 0.32 ± 0.12 /時間（半減期 4.9 時間および 1.8 時間）であった。

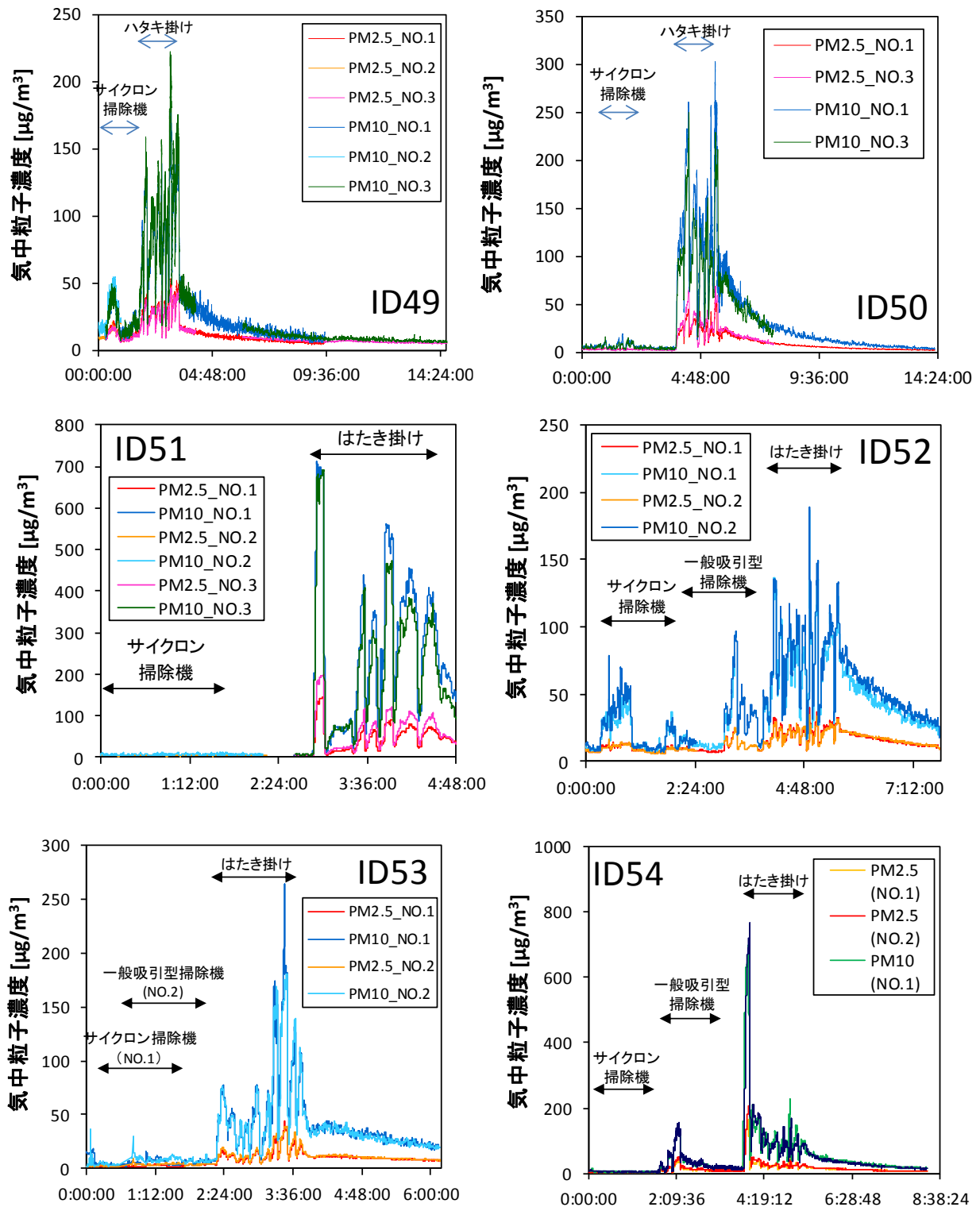


図 III-7 作業中の PM2.5 および PM10 の空中濃度の経時変化 (分担)

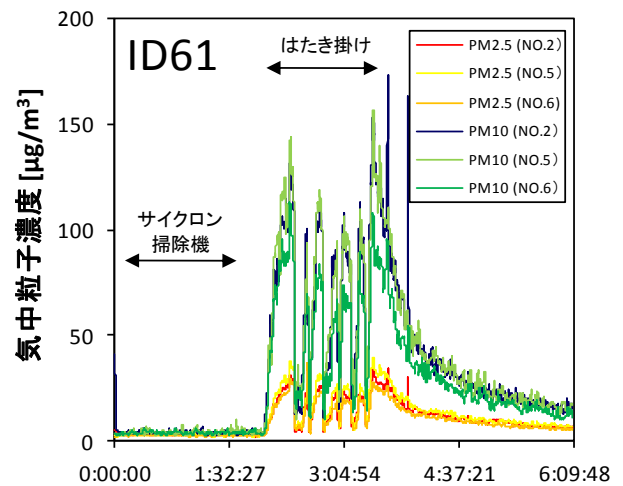
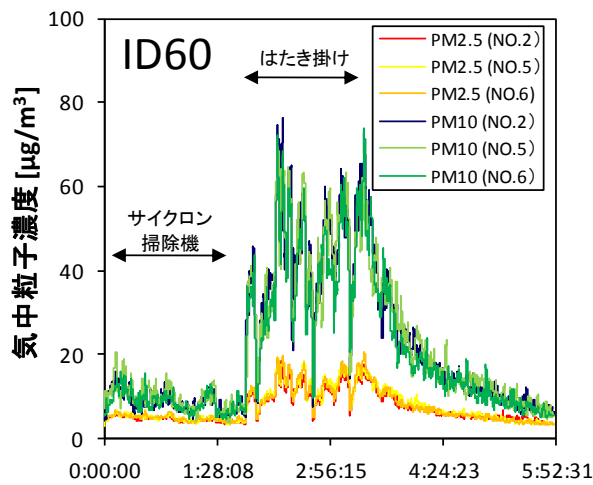
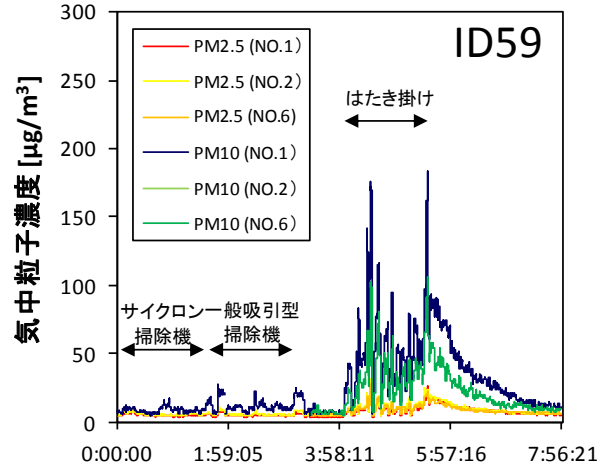
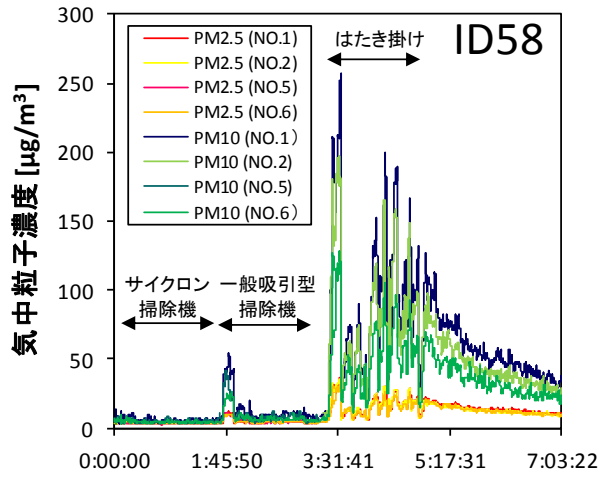
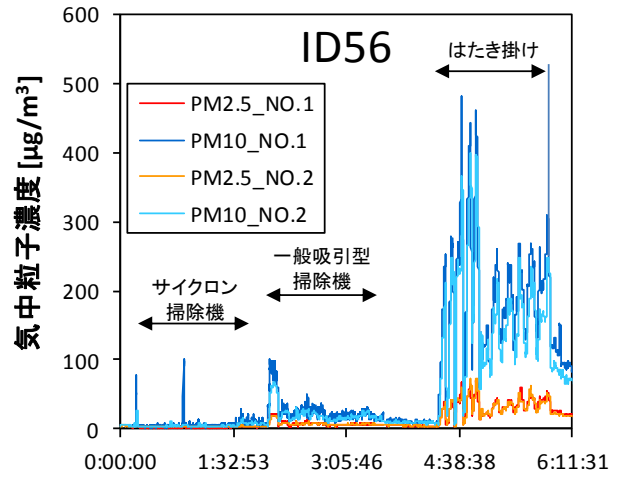
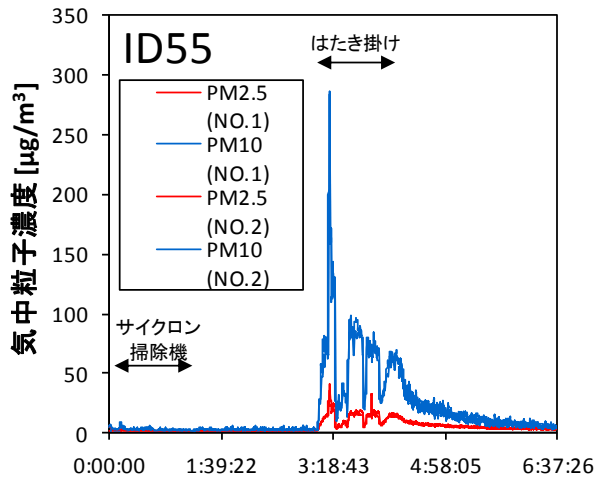


図 III-7 (続き) 作業中の PM2.5 および PM10 の気中濃度の経時変化 (分担)

IV. 考察

今年度これまでに分析を実施した 12 軒の住宅のハウスダスト (<20 μm , 20–63 μm , 63–180 μm , 180–500 μm , 500–1000 μm , 1000–2000 μm) 中の ^{137}Cs は、 9.2×10^2 , 6.3×10^2 , 4.2×10^2 , 1.9×10^2 , 1.2×10^2 , 1.2×10^2 Bq/g であり、昨年までに測定した住宅のハウスダスト中の ^{137}Cs より低濃度であった。これは、一昨年度や昨年度と比べて、福島第一原子力発電所から離れた住宅を多く調査したためと考えられる（福島第一原発からの平均距離: H28 年度 3.3 km; H29 年度 7.6 km; H30 年度 9.2 km）。ただし、昨年度までの結果と同様に、粒径が小さいほどダスト重量当たりの放射性 Cs 値が高くなる傾向であった。土壌²⁾や河川水³⁾や河川底質^{4,5)}に含まれるセシウム濃度を粒径別に測定した報告においても、粒径が小さいほど高かったという既存の報告と同じ傾向である。粒径が小さいほどダストの表面積が大きくなるため、吸着する放射性 Cs 粒子量が多くなったことを反映していると考えられる。

今年度これまでに分析を実施した 8 軒の住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性、塩酸溶性、残渣の比率は、18%、30%、51%であり、昨年度の結果（20%、32%、47%）や一昨年度の結果（17%、33%、49%）とほぼ同じであった。水及び塩酸で溶出した割合から、ハウスダスト摂食時に 50%程度は口腔及び胃腸管で溶解されないことを示唆している。

昨年度と今年度の結果はどちらも、粒径が大きいほど室内空気中の放射能が高いことを示していた。Andersson らは Indium で標識した 0.7 μm の粒子をアクリルカーペットが敷かれた室内に放出し、粒径分布が初期の中央値は 0.7 μm にあったが 24 時間後には 2.8 μm レンジ、5 日後には 5.6 μm レンジと時間経過とともに粒径が大きくなっていることを示している⁶⁾。本調査におけるエアロゾル中放射性 Cs のピークとは明らかに異なっていた。本調査は事故後 5 年半に行われたものであるため、粗大側のエアロゾルは時間経過とともに室内でより大きな粒子に吸着し粒径が大きくなったと考えられる。ハウスダストの結果からも、粒径が小さいほど重量当たりの表面積が大きくなるため、エアロゾル粒子重量当たりの放射性 Cs の吸着量は粒径が小さいほど大きくなると考えられる。しかし、小さい粒子は粒子自体が気中へ飛散しにくいことから、本研究では室内空気体積中の放射能は、エアロゾルが大きいほど高くなったと考えられる。既存の研究では、Thatcher and Layton は 1 μm より小さい粒子は掃除機掛けによりほとんど再懸濁されないことを実測で示している⁷⁾。また、歩行時の粒子の飛散は、0.5 μm の粒子と比べて 0.7 μm , 1.0 μm , 4.0 μm の粒子で 10 倍, 100 倍, 1000 倍になったという報告⁸⁾や、0.5 μm や 0.7 μm の粒子と比べて 2 μm の粒子で 10 倍になったという報告⁷⁾、1 μm の粒子と比べて 3 μm の粒子で 100 倍になったという報告⁹⁾、0.5 μm や 1 μm の粒子と比べて 2 μm の粒子で 100 倍になったという報告¹⁰⁾などがあり、粒子が小さいほど飛散量少なくなることが分かる。

はたき掛けを行った住宅の室内空気中のエアロゾルからは、91% (31 軒/34 軒)の住宅でいずれかの粒径のエアロゾルから放射能が検出され、PM2.5 サイズの粒子に限っても、62% (21 軒/34 軒)の住宅で放射能が検出された。一方、サイクロン式掃除機をかけているときの室内空気中の放射能は、2.5–6.6 μm のエアロゾルで 6.1% (2 軒/33 軒)の放射能が検出されたが、PM2.5 サイズの粒子では全く検出されなかった。一般吸引型掃除機を使用した住宅では、>6.6 μm のエアロゾルで 7.1% (1 軒/14 軒)のみ放射能が検出されたが、PM2.5 サイズの粒子では全く検出されなかった。室内の清掃作業中の PM10 及び PM2.5 の測定結果からも、はたき掛け中の暴露が掃除機掛

け中と比べて非常に高いことが示された。また、換気の効果을合わせると、はたき掛け後に PM10 は 1 時間程度、PM2.5 でも数時間以内に室内の濃度が半減することが確認された。はたき掛け後数時間は、窓開けをしておくなど換気を大きくすることで、室内での曝露濃度はさらに低減できると考えられる。この知見は、住民が一時帰宅または帰還する際に重要なものである。

今年度に調査した住宅の平均換気回数は、0.34 回/h であり、昨年度の調査住宅 (0.32 回/h) と同程度であった。一昨年度の調査住宅は、0.69/h と高めであり、昨年度および本年度調査した住宅では、地震や動物により損傷を受けていない住宅が多かった可能性が示唆される。

V. 結論

本年度は、昨年度までと比べて、福島第一原子力発電所の南方の住宅でのサンプリングを多く行った。ハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は昨年度の住宅よりも低かった。ただし、粒径が小さいほど高い傾向や、水や塩酸への溶解性については、昨年度の結果と同様の結果であった。住宅内ではたき掛けをしている際の室内空气体積当たりの放射能は、エアロゾルの粒径が小さいほど小さかった。室内空气体積当たりの放射能は、屋外や掃除機掛け中と比べて、はたき掛け中に明らかに高かった。PM10 及び PM2.5 の測定結果から、はたき掛け後数時間経つと、室内の気中粒子濃度は半分以下になることが示された。

VI. 次年度以降の計画

今後の展望としては、帰還を検討している住人に対して、本研究で得られた知見を伝えていくことで、住民がデータに基づいて意思決定ができる環境を整えていくことが必要だと考えられる。また、本年度に分析が完了しなかったサンプルについての分析を行う。放射能以外のリスク要因について、本研究で採取した試料を用いて解析・評価を行う。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

J. 論文：査読あり

- 1) N. Shinohara, H. Yoshida-Ohuchi. (2018. 5 月). Radiocesium contamination in house dust within evacuation areas close to the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *Environment International*, 114: 107-114.

K. 論文：査読なし

なし

L. 学内学会発表

なし

M. 国際学会発表

なし

N. 著書

なし

O. 講演

1) 篠原直秀 (2018.9.14), "福島第一原子力発電所近傍の住宅室内のセシウム汚染", 大気環境学会 放射性物質動態分科会, 九州大学, (福岡)

P. 主催した研究集会

なし

Q. 特許出願・取得

なし

R. その他

なし

VIII. 参考文献

- 1) 環境省 (2003) 環境省告示第十九号 土壌含有量調査に係る測定方法を定める件.
- 2) Maekawa A Momoshima N Sugihara S et al. Analysis of Cs-134 and Cs-137 distribution in soil of Fukushima prefecture and their specific adsorption on clay minerals. *J Radioanalytical Nuclear Chemistry*. 2015; 303: 1485–1489.
- 3) Sakaguchi A Tanaka K Iwatani H et al. Size distribution studies of Cs-137 in river water in the Abukuma Riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J Environ Radioactivity*. 2015; 139SI: 379–389.
- 4) Tanaka K Kondo H Sakaguchi A et al. Cumulative history recorded in the depth distribution of radiocesium in sediments deposited on a sandbar. *J Environ Radioactivity*. 2015; 150: 213–219.
- 5) Tanaka K Iwatani H Sakaguchi A et al. Size-dependent distribution of radiocesium in riverbed sediments and its relevance to the migration of radiocesium in river systems after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *J Environ Radioactivity*. 2015; 139SI: 390–397.
- 6) Andersson K G Roed J Byrne M A et al. Airborne contamination in the indoor environment and its implications for dose. Department: Radiation Research Department Risø-R-1462(EN) 2004: 45–50.
- 7) Thatcher T L Layton D W Deposition, resuspension and penetration of particles within a residence. *Atmos. Environ*. 1995; 29: 1487–1497.
- 8) Tian Y., Sul K., Qian J., Mondal S., Ferro A. R. A comparative study of walking-induced dust resuspension using a consistent test mechanism. *Indoor air*. 2014; 24: 592–603
- 9) Qian, J., Ferro, A., Resuspension of dust particles in a chamber and associated environmental factors. *Aerosol Science Technology*. 2008; 42: 566–578.
- 10) Rosati, J., Thornburg, J., Rodes, C. Resuspension of particulate matter from carpet due to human activity. *Aerosol Science and Technology*. 2008; 42: 472–482.

Estimation of indoor radiocaesium behavior and exposure assessment to indoor radiocaesium

Naohide Shinohara

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

Key word: indoor environment, radiocaesium, house dust, indoor air, aerosol, cleaning

Abstract

House dust and aerosol was sampled based on particle size in 17 buildings mainly placed in the southern direction from the FDNPP, in Ohkuma, Namie, and Tomioka, Fukushima Prefecture, Japan. Following results include the data obtained in H28 and H29. Activities of radiocaesium (^{137}Cs) per gram of house dust increased with decreasing particle size ($N=57$; mean \pm SD [median]: $3.3 \times 10^3 \pm 4.2 \times 10^3$ (1.6×10^3), $1.4 \times 10^3 \pm 1.7 \times 10^3$ (6.6×10^2), $9.3 \times 10^2 \pm 1.2 \times 10^3$ (4.5×10^2), $4.2 \times 10^2 \pm 5.8 \times 10^2$ (2.3×10^2), $2.6 \times 10^2 \pm 4.9 \times 10^2$ (1.4×10^2), and $2.3 \times 10^2 \pm 3.9 \times 10^2$ (1.1×10^2) Bq/g for <4 – 20 , 20 – 63 , 63 – 180 , 180 – 500 , 500 – 1000 , and 1000 – 2000 μm , respectively). Radiocaesium activity concentrations per cubic meter of indoor air during dusting ($N=59$; mean \pm SD (median)) was 6.8 ± 7.9 (4.7) and 1.6 ± 2.7 (0.78) Bq/ m^3 for all aerodynamic diameter of aerosol particle and PM_{2.5}, respectively. Radiocaesium activity concentrations in indoor air decreased with decreasing the aerodynamic diameter of aerosol particles (mean: 0.099, 0.22, 0.41, 0.92, 2.2, and 2.9 Bq/ m^3 for the aerodynamic diameter of <0.25 , 0.25 – 0.5 , 0.5 – 1.0 , 1.0 – 2.5 , 2.5 – 6.6 , and >6.6 μm , respectively) and was inversely proportional to the square of the distance from the FDNPP. Indoor ^{137}Cs radioactivity concentrations were significantly higher during dusting than during vacuuming with either a cyclone handy cleaner or a normal vacuum cleaner. The mean deposited activities in tracheobronchial and alveolar regions was estimated to be 1.9 and 2.8 Bq, respectively, during a 2-h dusting period in the studied houses.

1-3 乳歯を用いた福島県在住小児の被曝線量評価

佐々木 啓一（東北大学大学院歯学研究科 教授）

研究要旨

[原発事故以前に形成された乳歯についてのイメージングプレート法（IP）を用いた線量評価]

福島県及び他県より収集した乳歯のうち、福島第一原発事故以前に形成された乳歯 4,957 本について、歯質中に含まれる放射線量の IP によりスクリーニングを行った。結果の解析にはマルチレベル線形回帰分析による多変量解析を用いた。その結果、以下の所見が得られた。

- (1) 福島県の乳歯中放射線量（QL 値）は、他県（福島第一原子力発電所より 100km 圏外に位置する県）の平均 QL 値に比べて有意に低い値を示した。
- (2) 福島県内から収集した乳歯の QL 値には地域差が認められた。
- (3) 歯種により QL 値には差が認められ、福島県、他県に関わらず上顎乳切歯は、他の歯種に対して有意に高い値を示した。
- (4) 他県乳歯の QL 値は原発事故後その乳歯が口腔内に存在した日数に比例して緩やかな下降傾向を示したのに対して、福島県の乳歯は口腔内存在日数にかかわらず、ほぼ横ばいの傾向を示した。
- (5) 年齢、性差、居住地の空間線量率と乳歯 QL 値の間には相関を認めなかった。

[ESR 法の検証]

サル歯のエナメル質を用いて、低線量領域（被ばく線量 100mGy 以下）において歯質中炭酸ラジカルの電子スピン共鳴法（ESR 法）による測定の検証を行った。エナメル質サンプルを重液分離法により象牙質から分離し、さらに、化学処理を加えることにより、従来の削り出し法よりも質の良いエナメル質サンプルの調製が可能となった。その結果、43 mGy（90%予測区間）の検出限界値を持ち、精度と直線性に優れた検量線を得ることができた。

以上の結果は、次年度以降に収集が可能となる原発事故後に形成された乳歯の線量評価を行う上での重要な基礎となるものである。

キーワード 福島第一原子力発電所事故、乳歯、内部被ばく、外部被ばく、炭酸ラジカル、電子スピン共鳴法（ESR 法）

研究協力者

木野 康志 東北大学大学院理学研究科
岡 壽崇 東北大学高度教養教育学生支援機構
関根 勉 東北大学高度教養教育学生支援機構
細井 義夫 東北大学大学院医学系研究科
大野 敬 奥羽大学歯学部
廣瀬 公治 奥羽大学歯学部

研究参加者

小坂 健 東北大学大学院歯学研究科
篠田 壽 東北大学大学院歯学研究科
清水 良央 東北大学大学院歯学研究科
鈴木 敏彦 東北大学大学院歯学研究科
千葉 美麗 東北大学大学院歯学研究科
相田 潤 東北大学大学院歯学研究科
高橋 温 東北大学病院 障害者歯科

I. 研究目的

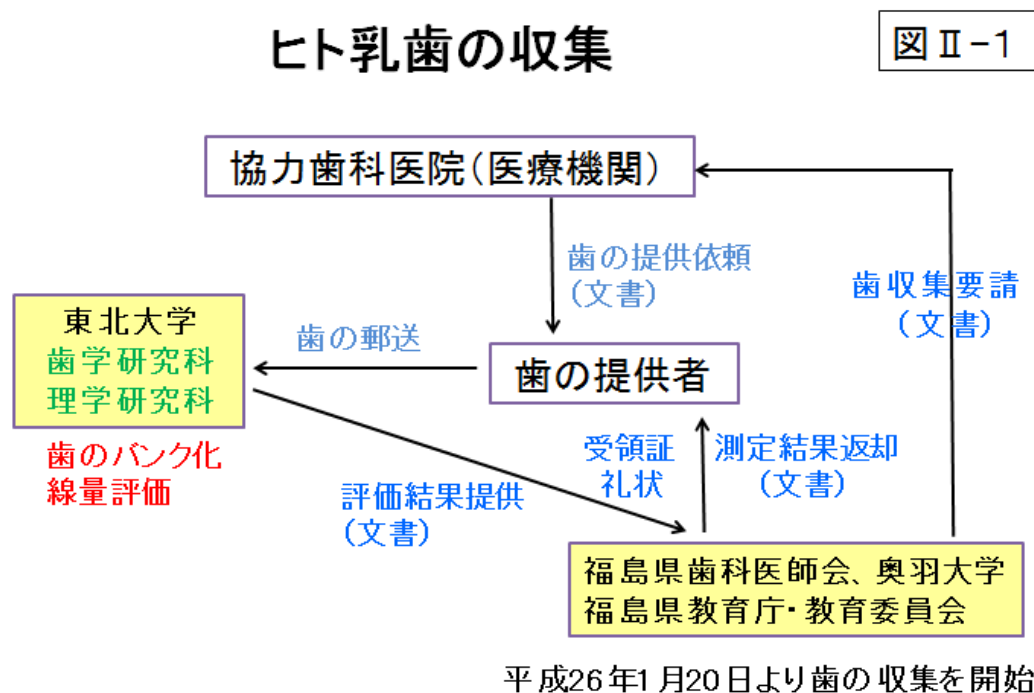
本研究の目的は、原発事故被災地およびその周辺地域に居住する幼小児を中心に、永久歯列への交換過程で脱落する乳歯や、歯科治療により抜去される歯を収集し、それらの歯に蓄積した放射性物質を物理化学的・生物学的に評価することにより、歯を用いて被ばく量や被ばく歴を個体ごとに推測し、今回の福島第一原子力発電所事故による放射線の人体への影響を評価するための基礎資料を提供することにある。具体的には、原発事故以前に形成された乳歯について、その乳歯中に含まれる放射性物質の量をイメージングプレート（IP）法によりスクリーニングし、その結果をマルチレベル線形回帰分析による多変量解析により評価し、福島県内より収集した乳歯と他県から収集した乳歯に差があるか否かを中心に検討し、次年度以降に収集可能となる原発事故後に形成される乳歯の線量評価を行うための基礎資料を提供することにある。

一方、放射線被ばくにより、歯のエナメル質内に炭酸ラジカルが発生する。この炭酸ラジカル量を電子スピン共鳴法（ESR法）により測定することにより、個体の外部被ばく量に関する情報を得ることが可能である。本年度の目的は、サルの歯を用い、100 mGy以下の低線量領域において、被ばく量と炭酸ラジカルの発生量の高信頼性が高い直線性の関係が得られるかどうかについてESR法の検証を行うことにある。

II. 研究方法

1. 福島県在住小児の乳歯の収集とアーカイブ化

平成 28 年度、29 年度における本研究事業に引き続き、本年度においても下記の概略図に従い歯の収集とバンク化を行った。歯の収集は福島県歯科医師会、奥羽大学を中心に行い、収集乳歯は東北大学歯学研究科において管理・バンク化した。乳歯収集に関する倫理面への配慮、歯のバンク化と管理の体制は、平成 29 年度までに確立した体制を維持・継続した。



2. イメージングプレート (IP) を用いた歯質中放射線量のスクリーニング

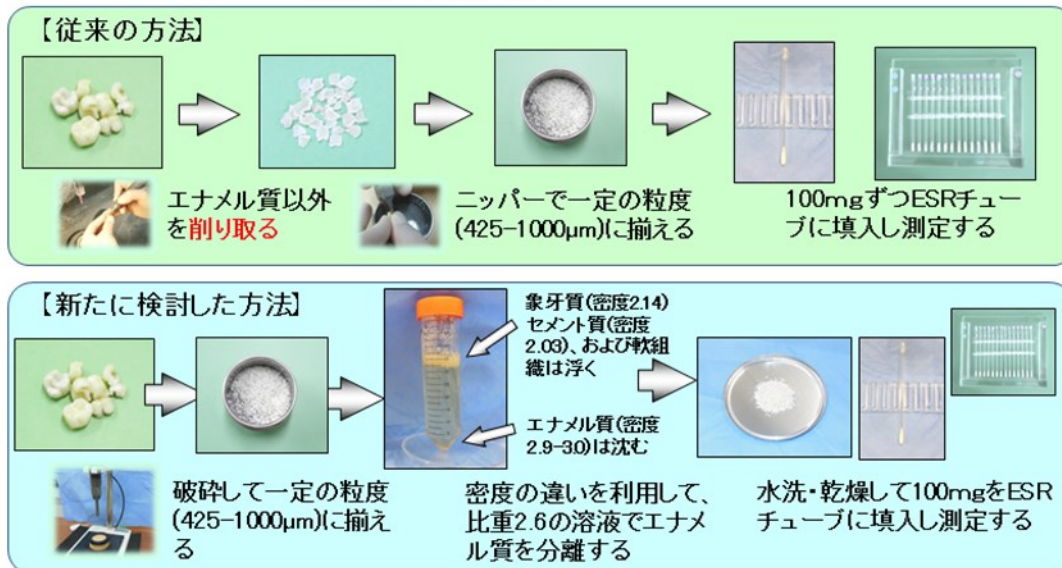
福島県内や全国各地から収集する乳歯数は年間数千本規模となる。これらの歯すべてについて、その中の放射線量を効率よくスクリーニングするための手法として、IP を使用した。1枚の IP 上には ^{40}K 基準尺と共に 100 本規模の乳歯を載せることが可能であるので、複数の IP の使用により多数のサンプルを効率よく分析することができる。また、IP の測定結果は、各 IP におけるバックグラウンドを差し引いた歯本体の QL 値 (16 bit 諧調で示される quantum level) として表記した。その具体的な測定手順や検出限界値等については平成 29 年度までの本研究で検証済みであり、本年度の研究においても同様の手法を用いた。結果はマルチレベル線形回帰分析による多変量解析により評価し、福島県内より収集した乳歯と他県から収集した乳歯に差があるか否か、福島県内の各地方で地域差があるか否か、また、年齢、性差、歯種により違いがあるか否か、地域の空間線量率との関連があるか否か、また、原発事故後、口腔内に存在した期間に依存した変化があるか否かについて基礎的な検討を加えた。



エナメル質サンプル調整法

図 II-2

ESR計測に必要なエナメル質を効率よく分離できる。一定の比重を持ち有機質量の少ない均質なエナメル質サンプルの調製が可能。象牙質も残り、その評価も可能。



3. 乳歯吸収線量の測定 (ESR法を用いた歯質中炭酸ラジカルの測定)

歯からエナメル質サンプルを調整する従来の方法(IAEAのプロトコール)は、手作業により歯からエナメル質を機械的に削り出す方法であったが(図II-2)、この方法は手技の個人差も大きく、切削に時間を要し、多数のサンプルの調整は事実上不可能に近い状態であった。本研究では、歯のエナメル質と象牙質には比重の差があることに着目し、一定粒度(425-1,000 μ m径)に粉碎した歯粉末について、エナメル質と象牙質をメタタングステン酸ナトリウム溶液(比重2.8)の中で比重分離(重液分離)する方法を開発した。この方法により、多数の歯から効率よくESR用のエナメル質サンプルを調整することが可能となった。同時に、一定の比重を持ち、有機質の含有量が少ない(微量の有機質の存在は、 γ 線照射時に発生する有機ラジカル生成の原因となり、炭酸ラジカルのスペクトルを解析する際のcriticalな妨害因子となる)均質なエナメル質サンプルを確保することが可能となった。本年度の研究においてはこの方法で調製したエナメル質サンプルを用い、ヒトの歯に近い形態を持つニホンザルの歯について、低線量領域(^{60}Co 線源を用いた照射:0, 20, 40, 60, 80, 100 mGy)を中心に検量線を描記し、データの再現性、測定データの精度について基礎的な検討を行った。ESR解析に際しては、EPR-Dosimetryプログラムを用い、6種類の成分(炭酸ラジカル、有機ラジカル、ベースライン、ハイドロキシアパタイト成分、バックグラウンドとなり得るシグナルが2種)から成るESRスペクトルの最適化作業を行った。

(倫理面への配慮)

ヒト乳歯の収集に際しては、乳歯提供者の氏名、生年月日、住所等、基本的な個人情報を得ることが必要となる。また調査目的、社会的意義、調査結果の還元、結果の開示方法等についても、保護者からの理解が必要となるので、本研究では、乳歯の収集に際して書面でインフォームドコンセントを得ることとし、インフォームドコンセントが得られた検体についてのみ測定を行うこととした。

本調査研究で遂行する乳歯の収集方法から結果の開示に至るまでの一連の過程については、東北大学大学院歯学研究科研究倫理専門委員会による承認を得（平成 25 年 1 月 31 日、および平成 28 年 12 月 16 日、承認番号 23-19）、これに基づき調査研究を実施した。また、研究グループ間における乳歯収集・被ばく線量測定に関する倫理面での共通認識ならびに住民への配慮をより徹底させるために、福島県歯科医師会および奥羽大学においても倫理委員会での審議を経て、承認を得た（福島県歯科医師会倫理委員会、平成 25 年 12 月 17 日承認および奥羽大学倫理審査委員会、平成 26 年 3 月 18 日承認、平成 30 年 3 月 31 日まで。引き続き、平成 30 年 4 月 1 日からさらに 5 年間の期間延長）。

乳歯収集の過程で得られる個人名や個人情報には連続番号を付して匿名化し、研究結果から得られる個人情報と連続番号との対応表は、主任研究者及び疫学解析責任者のみが鍵を持つ戸棚で保管した。また、得られた測定値の被験者への伝達に当たっては、結果が適切に理解されるよう補助的な説明文書を添付するなど最大限の注意を払うこととした。このため関係者の情報管理を徹底すると共に、研究機関、福島県歯科医師会が定期的に協議を行った。さらに、必要が生じた場合には、福島県庁や自治体とも協議し研究を進めることとした。

Ⅲ. 研究結果

1. 乳歯の収集とアーカイブ化

平成 28 年 12 月末現在、全国より 4,957 本の乳歯を収集した。そのうち、福島県内からの乳歯は 4,130 本で、福島市を有する県北地方、郡山市を有する県中地方、いわき市を有するいわき地方からの乳歯の比率が高い。福島第一原発から 100 km 以上離れた他県としては、北海道、新潟県、静岡県、熊本県の 4 県からの乳歯が多数を占める（図Ⅲ-1）。

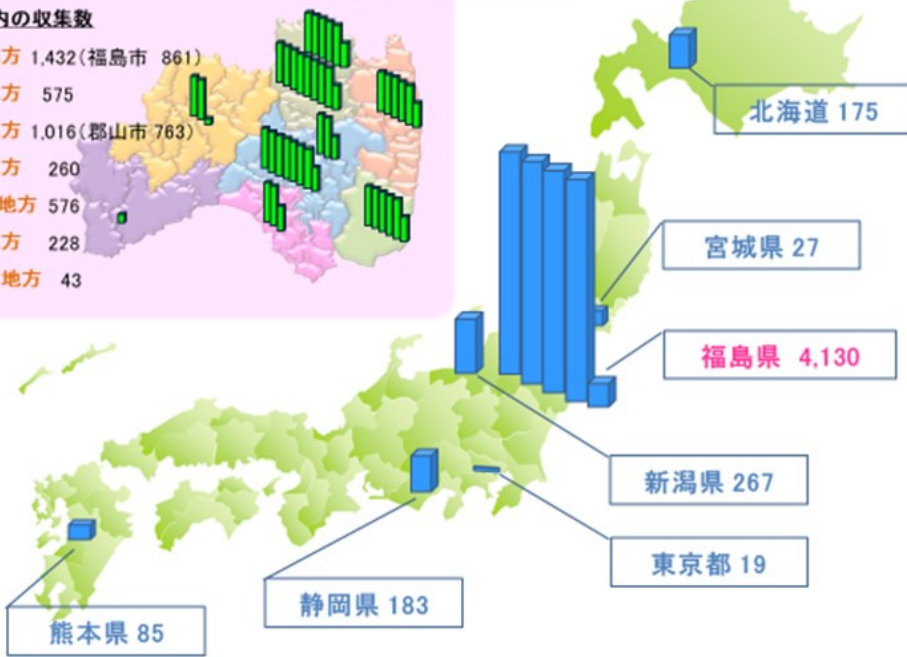
収集乳歯数 計4,957本（発災時）

（平成28年12月末現在）

図Ⅲ-1

福島県内の収集数

- ・県北地方 1,432(福島市 861)
- ・相双地方 575
- ・県中地方 1,016(郡山市 783)
- ・県南地方 260
- ・いわき地方 576
- ・会津地方 228
- ・南会津地方 43

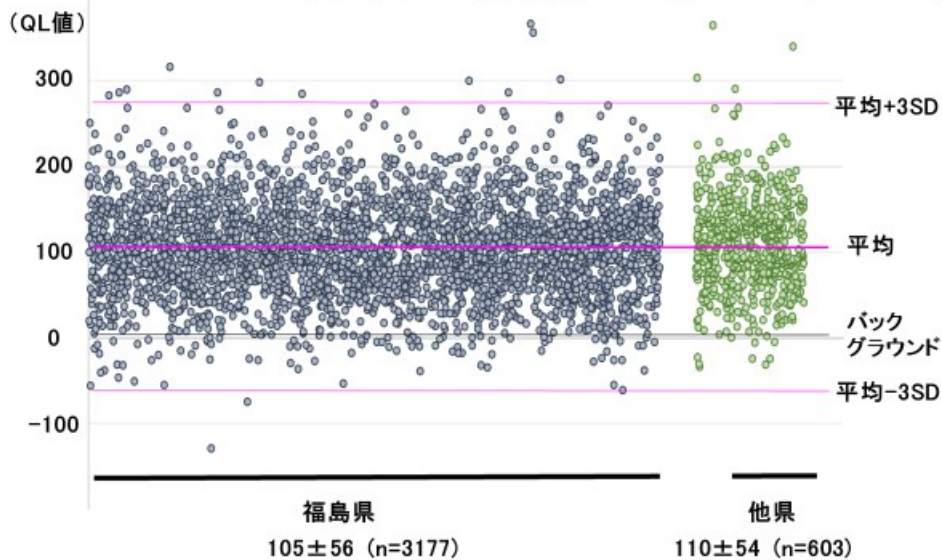


2. イメージングプレート（IP）を用いた歯質放射線量のスクリーニング

2-1 福島県と他県の違い

IP面が健全である乳歯のQL値

図Ⅲ-2

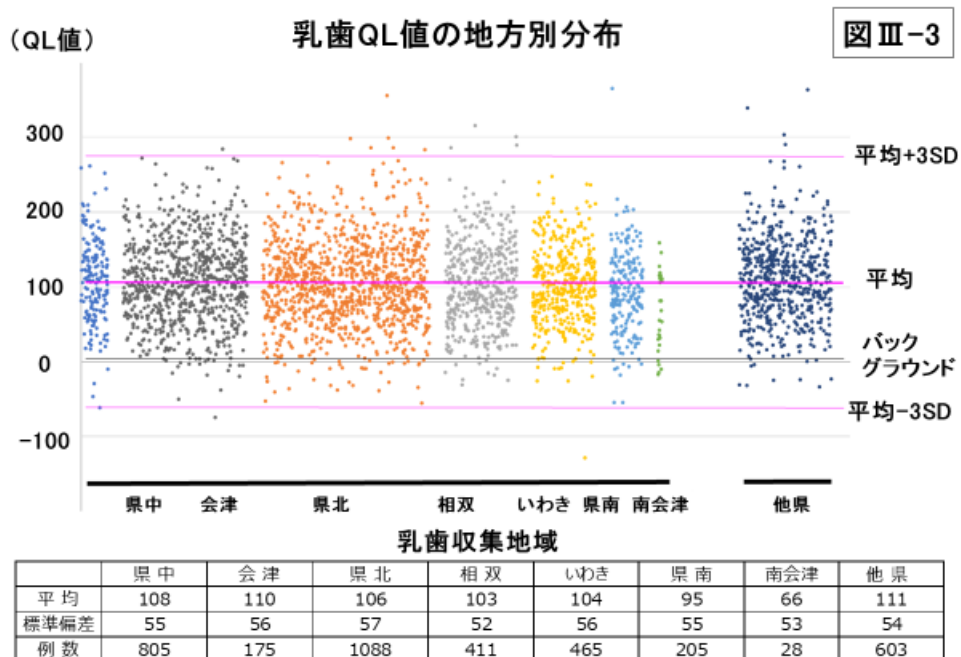


収集した乳歯の中には、検査する歯面（IP面：IPに接する側の歯面で唇側面）に充填物がある、あるいは齲蝕が認められた歯があり、これらの歯は、測定対象から除外した。図 III-2には、平成26年から平成28年の3年間に収集し、IP面が健全であった乳歯について他県（福島第一原発から100km圏外にある県）から収集した乳歯603本と福島県からの乳歯3,177本について、それらのQL値を比較した図である。他県の乳歯のQL値が 110 ± 54 （平均値 \pm SD）であったのに対して福島県の乳歯は 105 ± 56 と有意の低値（ $p < 0.05$ ）を示した。

2-2 福島県内の7つの行政区から収集した乳歯QL値の違い

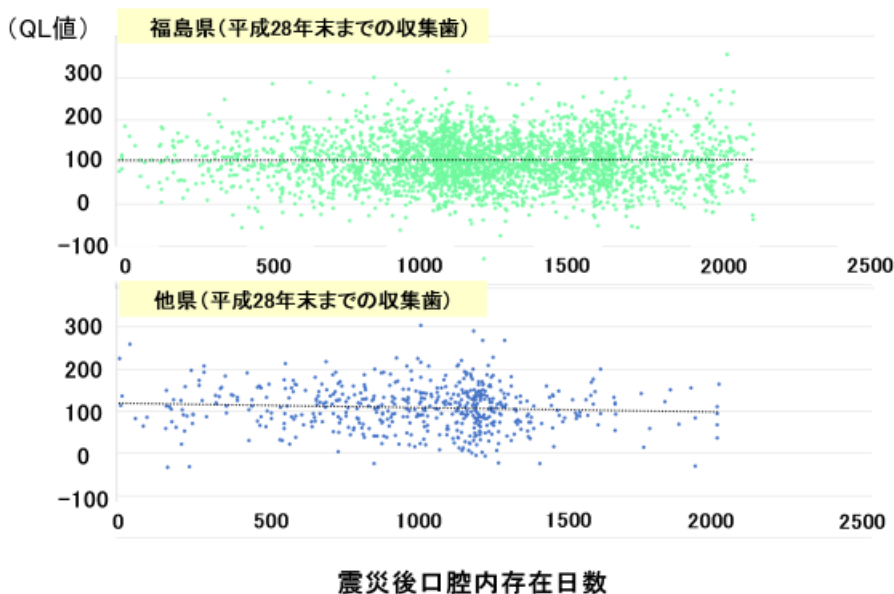
図III-3に結果を示す。乳歯QL値は福島県内の地方間で有意の差があり、会津において最も高く南会津からの乳歯において最も低い値を示した。県中、県北の値は県南、南会津の値に比べて有意に高い値を示した

2-3 震災後、乳歯が口腔内に存在した日数とQL値の関係（福島県と他県の比較）



震災後の環境にあった日数の違いによるQL値の変化

図Ⅲ-4

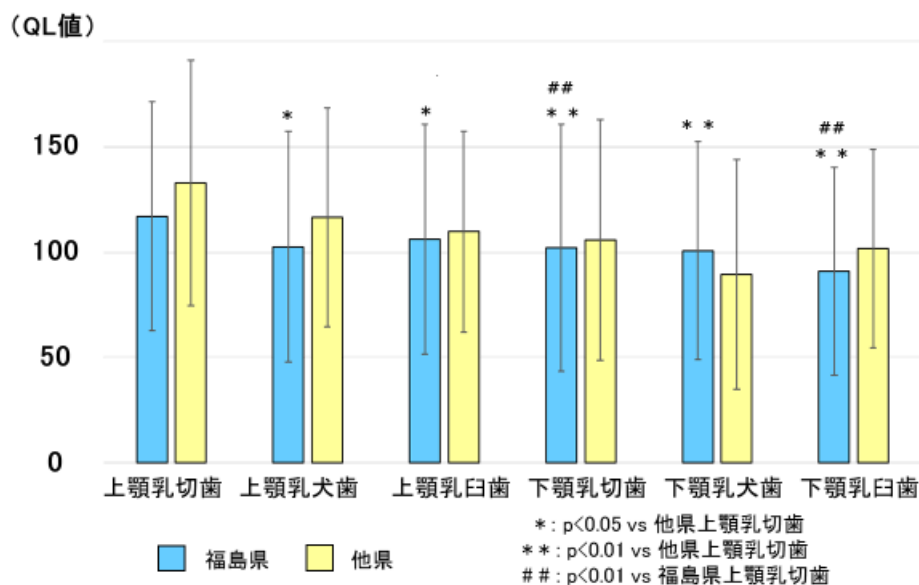


図Ⅲ-4には、震災後、口腔内に萌出した後、その歯が脱落するまでの期間（震災後、口腔内に存在した期間）と乳歯 QL 値の関係について、その時間的な推移を、福島県からの乳歯（上図）と他県からの乳歯（下図）について比較した結果を示している。他県の乳歯は、震災後6年までは、口腔内に存在する期間に比例して、緩やかな下降傾向を示したのに対し、福島県の乳歯にはこのような傾向は認められず、震災後に口腔内に存在した期間には依存せず、観察した期間中、ほぼ横ばいの状態を示した。

2-4 歯種による QL 値の違い

歯種によるQL値の違い

図Ⅲ-5



歯種により QL 値には差が認められ、福島県、他県に関わらず上顎乳切歯は、他の歯種に対して有意に高い値を示した。また、福島県の乳歯は、他県に比べ、有意の低値を示した（2元配置分散分析の後、Scheffe の多重比較、 $p < 0.01$ または < 0.05 ）。

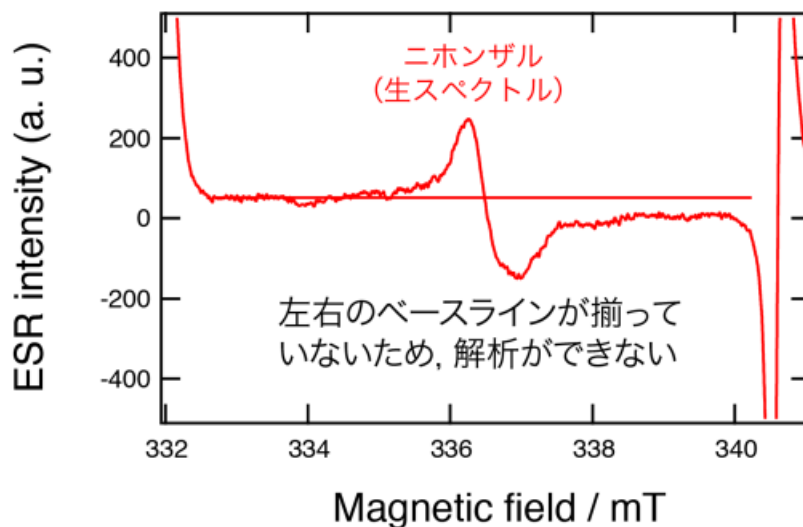
2-5 性差、年齢、居住地の空間線量率

これらの因子と、乳歯 QL 値の間には相関は認められなかった。

3. ESR 法の検証

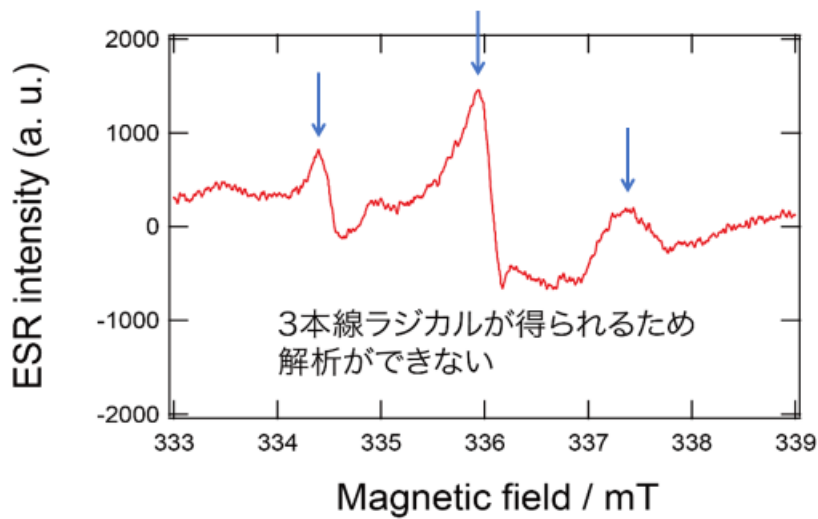
歯の ESR 測定、特にサル歯においては、図III-6のようにターゲットラジカル（炭酸ラジカルと有機ラジカル）の左右のベースラインが揃わないため、フィッティングができず、炭酸ラジカル強度が抽出できないという問題があった（問題点1）。

図 III-6



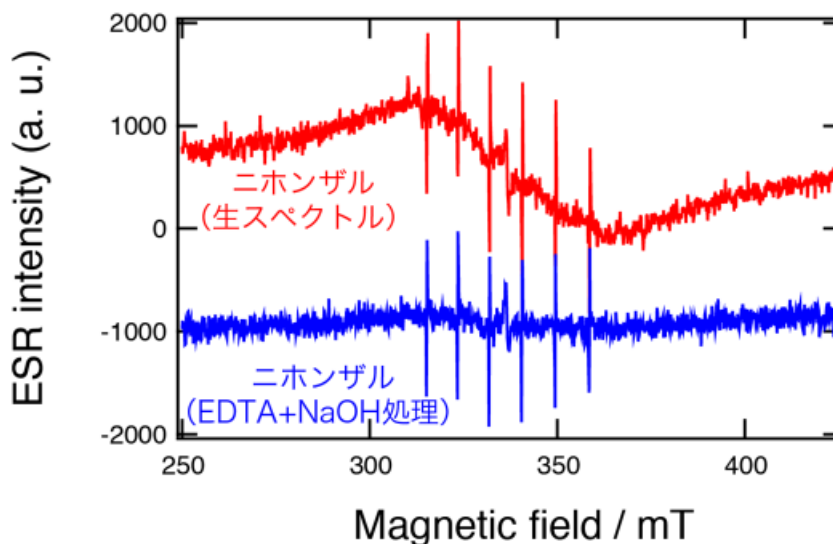
また、ヒト乳歯やサル歯においては図III-7のようにターゲットラジカルに3本線のラジカルが重なってしまうという現象が生ずることがあった（問題点2）。この場合、フィッティングが行えず、炭酸ラジカル強度の抽出が不可能であった。

図 III-7



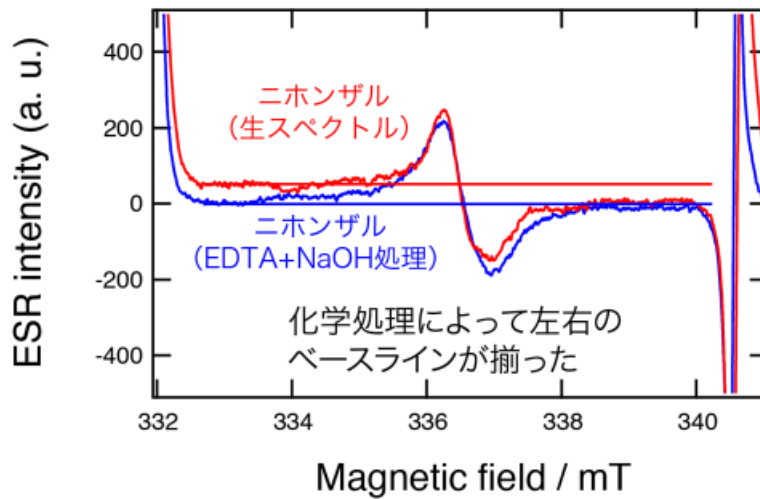
そこで、本研究では重液分離によりエナメル質を象牙質から分離した後、その試料を化学処理し、これらの解決に取り組んだ。

図 III-8



サルの歯で左右のベースラインがずれる問題点 1 は、種々検討した結果、エナメル質、試料中に混入している金属由来のスペクトルが原因と推定された（図III-8、赤のスペクトル）。そこで、金属由来の成分を Titriplex III（エチレンジニトロロ四酢酸二ナトリウム塩・二水和物）で除去し、さらに NaOH で試料をエッチングすることで試料中に残っている有機質成分を除去すると、同図の青で示すように平らなスペクトルを得ることができた。

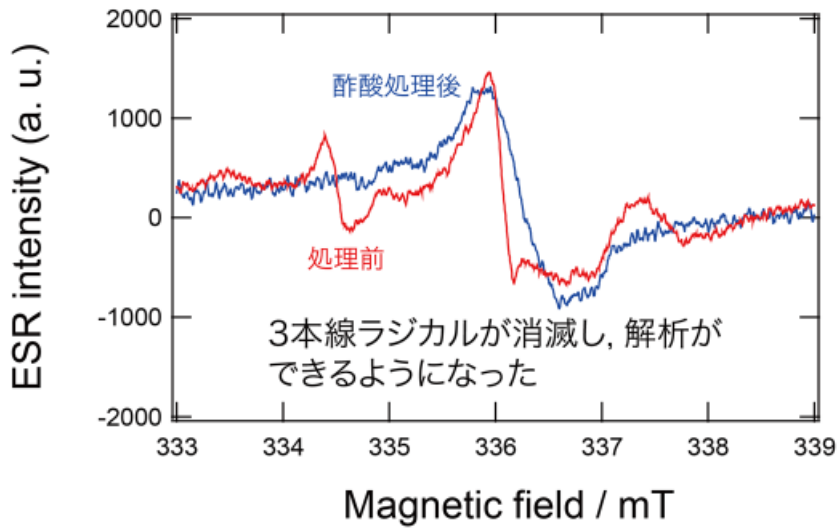
図 III-9



図III-9 は、図III-8 のターゲットシグナル部分を拡大したもので、左右のベースラインが揃っていない試料（赤）を化学処理したところ、処理前は揃っていなかった左右のベースラインが揃い（青のスペクトル）、フィッティングが可能になった。

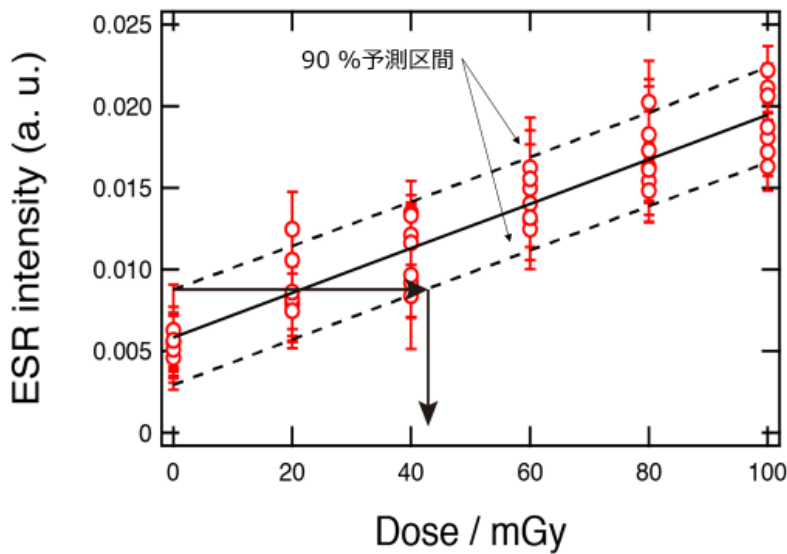
ヒト乳歯やサル歯においてターゲットラジカルに 3 本線ラジカルが重なる問題点 2 の現象は、エナメル質を重液分離した直後に NaOH 処理した試料については観測されないが、NaOH 処理後長く大気中に試料を保管すると現れるようであった。これは、エナメル質分離あるいは NaOH 処理後に試料表面に何らかの活性種が残っており、それが原因で 3 本線のラジカルが発生していると考えられた。そこで、本研究においては、NaOH 処理後に試料を酢酸に浸漬させて表面のエッチングをしたところ、3 本線ラジカルが消滅し、大気中に長く保管しても生長せず、フィッティングが可能となることが明らかになった（図III-10）。このようにしてサル歯・ヒト歯の ESR 測定用試料の前処理方法を確立することができた。

図Ⅲ-10



昨年来作成していたサル歯の検量線は、図Ⅲ-11に示すように今年度において100 mGyまでの照射が完了した。90%予測区間(破線)を考慮すると、検出限界は43 mGyと見積もられた。この値は、我々が平成26年度に作成したヒト乳歯検量線の検出限界(170 mGy、90%予測区間で評価)、あるいはヒト永久歯の検出限界(146 mGy [ref.1])を大幅に越えるものであり、大きな改善であった。今後は確立した試料処理方法を駆使し、ヒト乳歯での検量線の作成に取り組む。

図Ⅲ-11



IV. 考察

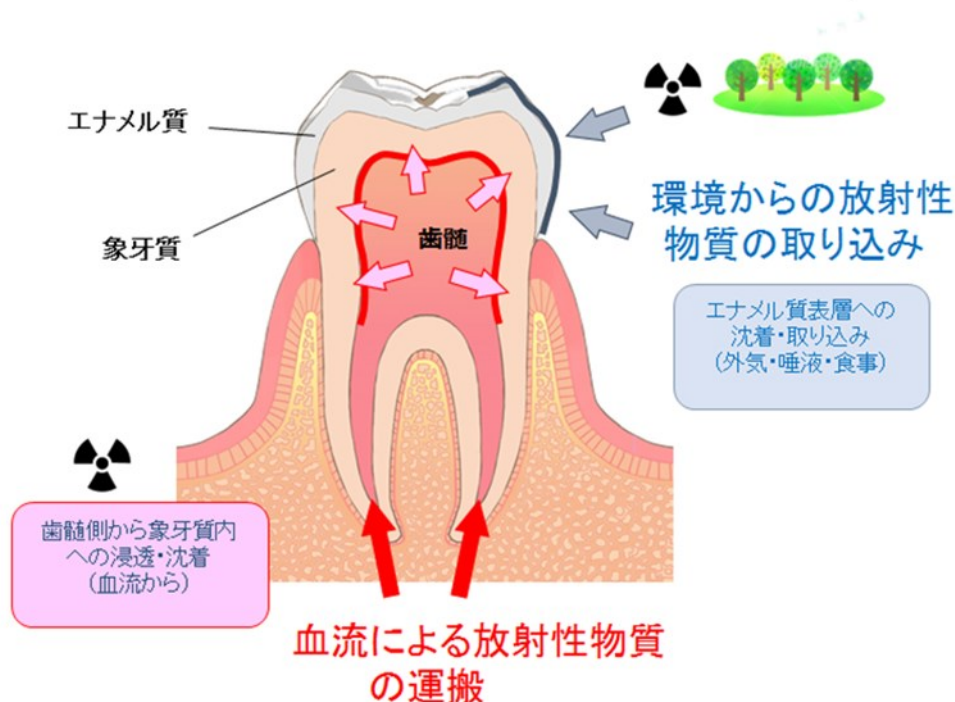
IP による線量評価

福島県および他県（北海道、新潟県、静岡県、熊本県からの乳歯が主体）の子供たちから提供を受けた乳歯について、IPにより、歯の中に含まれる放射線量について基礎的なスクリーニングを行った。その結果、福島県乳歯の放射線量は、他県からの乳歯に比べて、やや低値を示すことが判明した(図Ⅲ-2)。原発事故以前に形成された乳歯については、福島県と他県の乳歯に違いが無いと予測されたが、今回のような結果を得た。その原因は明らかではないが、原発事故以前の福島県の環境放射線量が、今回比較対象とした他県と比べて、やや低値であったことが考えられる。日本地質学会による、原発事故前の日本の自然放射線量マップによれば福島県の中央部から南北に広がる地域の自然放射線量は、日本の中でも比較的、自然放射線量が低い地域に属している (ref.2)。歯の中には、昨年の本研究において報告したように、 ^{40}K のような自然放射性核種の他に、ウラン系列やトリウム系列に属する放射性核種が含まれており、それらの濃度は、地域の放射線量を反映している可能性はある。福島県内からの乳歯についても QL 値に地域差が見られたが、この点に関しても、地域により、環境放射線量が異なることが関係している可能性が考えられる。歯の中の放射線量に地域差があることの原因は不明であるが、これらのデータは、今後、収集が始まる原発事故後に形成された歯を評価する上での基礎として重要と考えられる。

今回対象とした他県の乳歯は、福島県の乳歯に比べて、やや高い QL 値を示し(図Ⅲ-2)、図Ⅲ-4 に示したように、原発事故後、口腔内に存在した期間に比例して、緩やかに下降する傾向を示した。この下降は統計学的にも有意であった。この下降傾向がどのような原因によるかは明らかではない。

形成終了後の歯に放射性物質が入る経路(推定)

図Ⅳ-1



出典(歯のシェーマ):(株)コムネット

もともと、世界の環境中には、過去の大気中核実験等に由来する⁹⁰Srや¹³⁷Csが現在も存在しており (ref.1, 2)、それ等の放射性物質は、大気、飲食物等を介して、微量ではあるが体内に取り込まれ、それが歯の形成過程において歯質中にも取り込まれ、歯の形成が終了した後も歯質中に保持されていると考えることができる。事実、原発事故以前に形成された動物の歯や骨の中に微量の放射性物質が存在することが報告されており (ref. 3, 4)、我々も、原発事故以前に形成されたヒト乳歯中に微量の⁹⁰Srの存在を報告している (平成28年度本研究事業成果報告書)。従って、他県の乳歯中QL値に見られたゆるやかな下降傾向は、過去に歯質中に取り込まれた放射性物質の減衰過程を反映している可能性が考えられる。一方、福島県の乳歯についてはQL値が下降する傾向は認められず、横ばいの傾向を示した。他県と福島県のこの違いが何によるかは明らかではない。今回、評価の対象とした福島県の乳歯は、原発事故以前に形成を完了しているので、歯の形成時に原発事故由来の放射性物質が歯質に取り込まれたことは考えにくい。一方、歯が形成された後にも放射性物質が歯の中へ取り込まれることが知られている。図IV-1にそれらの可能性を示す。一つは、飲食物、外気、唾液等からの歯のエナメル質表面への沈着で、これには歯石等の沈着も含まれる。他の経路は、歯髄側からの血行あるいは組織液を介した象牙質やエナメル質への浸透や沈着である。さらに、歯髄側の象牙質に第2象牙質が形成される過程も考えられる。歯の主成分であるハイドロキシアパタイトは吸着性に富み、また、アパタイト結晶は、Caと同族のSrやPbといった金属を結晶中に取り込みやすく、それらは代謝されることなく歯質中に長く保持される。従って、歯が形成された後も、環境中に微量の⁹⁰Srや²¹⁰Pbなどの放射性物質が存在している場合、上記の経路を介して、それらが歯の中に徐々に取り込まれ蓄積している可能性は考えられる。チェルノブイリ事故の後、既に形成が終わったあとのウクライナ地方の住民の永久歯の放射能値に異常な上昇がみられたとの報告があるが (ref.5, 6)、これらも上記の考えを支持している。福島県の場合、原発事故後、環境中の放射性物質濃度が上昇したことが、他県のような経時的なQL値の減衰がみられなかった原因とも考えられる。しかし、その詳細は不明である。今回の福島乳歯に見られたQL値は、他県のそれと同レベルであることから、形成後に汚染があったとしても、そのレベルは低いと判断できる。

今回歯種別にQL値を測定した結果、福島県についても対照県についても、上顎乳切歯が最も高い値を示し、下顎の臼歯部が最も低い値を示した。上顎切歯は外気に触れやすく乾燥しやすいなどの性質があることから、空気中の²²²Rn子孫核種などの吸着がおり易い等の推測も成り立つが、その原因は不明である。しかし、歯を使って今後の線量評価を行う上で、歯種により違いがあることには留意する必要がある。

今後、原発事故後に形成された乳歯のQL値がどのような推移をたどるのかは注意深く見守る必要がある。

ESR 法の検証

我々は、今年度の研究において、ESR 測定における問題点の解決と検出限界の改善に取り組んだ。ESR の問題点は、クリーンな ESR スペクトルが得られない点であった。ベースラインがずれる問題点 1 は、歯の表面に付着していると思われる金属に起因すると考えられるが、サルやヒトの歯の場合、歯の表面に何が付着しているか不明であるため、単に密度差でエナメル質を分離するだけでは清浄なエナメル質が得られるわけではない。また、歯を粉碎したとき、エナメル質と象牙質の界面に存在している有機質部分は、比重法で分離したときにその一部がエナメル質側に混入する場合があると考えられる。本研究において、表面の付着している金属と、界面に存在する象牙質の除去に、TitriplexIII 処理と NaOH 処理は有効であることが判明した。問題点 2 については、酢酸で表面を軽くエッチングしただけで除去できたことから、歯の表面に残留していた何らかの活性種が原因であったことが推定された。検出限界の改善ができたのは、清浄なエナメル質を分離できたことと、繰り返し測定による測定精度の改善のためであると考えている。清浄なエナメル質からはクリーンな ESR スペクトルが得られるので、複数歯間でのばらつきが低減できる。また、統計の改善には、繰り返し測定の数を増やすことと、測定時間を増やすことの 2 つが有効であった。ESR スペクトルによる測定の再現性が高いことは平成 29 年度に報告した。しかし、炭酸ラジカル強度を抽出するためには、得られた ESR スペクトルを 5 成分でフィッティングする必要があり、このフィッティングのばらつきが大きいことが問題であった。サル歯検量線作成においては、7 つのサンプルをそれぞれ 11 回ずつ測定し、上下 2 回ずつのスペクトルを除外して、フィッティングのばらつきの少ない結果で解析を行うこととした。測定時間については、通常 30 秒の掃引（測定）を 40 回程度行うところを 360 回の繰り返し測定をして、S/N のよい ESR スペクトルを得た。この測定時間を増やすことは、低線量の試料に対しては有効であったが、線量が大きくなった試料については炭酸ラジカルのピークがはっきりと観測されるため、120 回程度の測定でも十分フィッティングが行えた。検出限界を今後さらに改善するためには、清浄なエナメル質を分離することは当然であるが、測定時間を多少短くしても、測定回数を増やしてフィッティングのばらつきの少ないデータで解析を行うことが有効であると考えられる。ヒト乳歯の詳細な検量線を作成する場合は、これらの点に注意したい。実際に野生のサルの外部被ばく線量を推定する場合は、付加線量法（検量線の作成同様、対象の歯にガンマ線を照射しながら測定を繰り返し、得られた回帰線を X 軸に外挿して被ばく線量を求める方法）を用いるのがよいと考えている。検量線を用いた方法では、炭酸ラジカル強度から線量への変換の際に 90 % 予測区間の幅に相当する約 ±20 mGy 程度のばらつきが生じる。また、個体が変われば検量線の傾きが少し変化することも考えられる。そのため、最初のスクリーニングには検量線を用い、特定の歯の詳細な被ばく線量推定を行う場合には、変換のばらつきを考慮しなくてよい付加線量法を利用するのが有効と考えられる。

今回の検量線作成には⁶⁰Co線源を用いた。一方、福島第一原発事故の外部被ばくは主に¹³⁷Csからのガンマ線によるものである。検量線を作成する場合、現実に合わせて¹³⁷Cs線源を用いた方がよいとも考えられるが、Iwasakiらの報告にあるように（ref.7）、⁶⁰Coと¹³⁷Csでは、1つの光子によるラジカル発生の効率は等しいので、⁶⁰Co線源を用いても特に問題はないと考えている。このようにして作成した検量線を用いて外部被ばく線量を推定する場合、¹³⁷Csからのガンマ線（以下、直接線）だけでなく、直接線が建物や地表で散乱してエネルギーを失ったガンマ線（以下、散乱線）による被ばくも考慮する必要がある。特に、100 keV以下のガンマ線が存在すると、直接線によって誘起されるラジカル量と比べて最大で8倍程度多くラジカルが誘起されてしまう。そのためESRによる外部被ばく線量評価においては、散乱線による外部被ばく線量の過剰評価に留意することが必要である。

V. 次年度以降の計画

- (1) 次年度以降、収集される予定の乳歯は、原発事故以後に形成された乳歯の割合が増加する。これらの乳歯のQL値が、原発事故前に形成された乳歯と比べてどのような推移をたどるか観察する。
- (2) 原発事故後に形成された乳歯について、歯質中の⁹⁰Sr量および¹³⁷Csを測定し、乳歯に取り込まれた原発事故由来の放射性物質の有無について検討する。

VI. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり なし

B. 論文：査読なし なし

C. 国内学会発表

- 1) 小荒井一真、木野康志、西山純平、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、福田智一、磯貝恵美子、岡壽崇、関根勉、福本学、篠田 壽：
ウシの歯中の放射能濃度からの環境中 Sr-90 と Cs-137 の挙動の推定。
第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会，文京区，東京都，2018/7/4-6.
- 2) 小荒井一真、木野康志、西山純平、金子拓、小野拓実、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、漆原佑介、鈴木正敏、福田智一、磯貝恵美子、岡壽崇、関根勉、篠田壽、福本学：
被災サル歯中 Sr-90 の測定と歯を用いた被災サルの骨髄線量の推定。
第 5 回福島第一原発事故による周辺生物への影響に関する勉強会，文京区，東京，2018/8/3-8/4.
- 3) 小荒井一真、木野康志、西山純平、金子拓、小野拓実、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、漆原佑介、福田智一、磯貝恵美子、岡壽崇、関根勉、福本学、篠田壽：
ウシの歯を用いた福島第一原発事故後の Sr-90 汚染経過の推定。
日本分析化学会第 67 年会，仙台市，宮城県，2018/9/12-14.
- 4) 小荒井一真、木野康志、西山純平、金子拓、小野拓実、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、漆原佑介、福田智一、磯貝恵美子、岡 壽崇、関根勉、福本学、篠田壽：
福島第一原発事故後の環境中からウシ硬組織への Sr-90 の移行挙動。
2018 日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会，京都市，京都，2018/9/18-9/20. 京都大学（ポスター）
- 5) 小野拓実、小荒井一真、木野康志、田巻廣明、岡 壽崇、高橋 温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、藤嶋洋平、Valerie Goh See Ting、有吉健太郎、中田章史、鈴木正敏、山城秀昭、三浦富智、関根 勉、篠田 壽：
浪江町の野生アライグマの臓器ごとの Cs-137 放射能濃度の測定。
2018 日本放射化学会年会・第 62 回放射化学討論会プログラム，2018/9/18-20，京都大学（ポスター）
- 6) 岡 壽崇、高橋 温、小荒井一真、木野康志、関根 勉、清水良央、千葉美麗、鈴木敏彦、小坂 健、佐々木啓一、鈴木正敏、篠田 壽、福本 学：

ニホンザルの歯の電子スピン共鳴測定による外部被ばく線量推定.
日本放射線影響学会 第 61 回大会, 長崎市, 長崎, 2018/11/7-9.

7) 小荒井一真、木野康志、西山純平、金子拓、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、
千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、漆原佑介、鈴木正敏、福田智一、磯貝恵美子、岡
壽崇、関根勉、篠田壽、福本学:
歯と骨に記録された ^{90}Sr の取り込み履歴を用いた福島第一原発事故被災サルの骨
髄線量の推定.
日本放射線影響学会第 61 回大会, 長崎市, 長崎, 2018/11/7-11/9.

8) 小荒井一真:
福島第一原子力発電所事故後の動物生息地の土壌中 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の状態
「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」専門研究会、京都大学複
合原子力科学研究所、熊取町、大阪府、2018/12/21.

9) 小荒井一真:
動物臓器内放射能濃度測定と被ばく線量評価.
新学術領域研究宇宙観測検出器と量子ビームの出会い。新たな応用への架け橋. 若手
ハードウェア研究会、豊中市、大阪府、2019/3/7-3/8

10) 小荒井一真、木野康志、西山純平、金子拓、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千
葉美麗、小坂健、佐々木啓一、漆原佑介、鈴木正敏、福田智一、磯貝恵美子、岡壽
崇、関根勉、篠田壽、福本学:
福島原発事故後のウシ、サルの硬組織への環境中からの ^{90}Sr の移行. 第 20 回環境放
射能研究会, つくば市, 茨城県, 2019/3/12-3/14.

D. 国際学会発表

1) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Junpei Nishiyama, Hiraku Kaneko, Atsushi
Takahashi, Toshihiko Suzuki, Shimizu Yoshinaka, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi
Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro,
Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda.:
Role of animal teeth for estimation of environmental pollution of Sr-90 and Cs-137
just after the Fukushima Daiichi Power Plant Accident.
Rad Chem 2018 (The 18th Radiochemical Conference), Mariánské
Lázně, Czech, 2018/5/13-5/18. (oral presentation)

2) Toshitaka Oka, Atsushi Takahashi, Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Tsutomu Sekine,
Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Toshihiko Suzuki, Jun Aida, Ken Osaka, Keiichi
Sasaki, Hisashi Shinoda.:
Improvement of the electron spin resonance spectroscopy detection limit for tooth
dosimetry, EPR BioDose 2018,
2018/6/11-15, Munich, Germany (poster presentation)

E. 著書

1) K. Koarai, Y. Kino, T. Oka, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda.:

Incorporation and Accumulation of Strontium-90 in the Hard Tissue of Animals and Their Relationship with Strontium-90 Pollution in the Environment
in “Low-Dose-Rate Radiation Effects on Animals and Ecosystem-Long-Term Study on the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident”

Ed. M. Fukumoto (Springer, in press).

F. 講演なし

G. 主催した研究集会なし

H. 特許出願・取得なし

I. その他 なし

VII. 参考文献

1) A. Wieser, A., Fattibene, P., Shishkina, E.A., Ivanov, D.V., De Coste, V., Güttler, A., Onori, S.: Assessment of performance parameters for EPR dosimetry with tooth enamel. *Radiation Measurements* 43, 731-736 (2008)

2) <http://www.geosociety.jp/uploads/fckeditor/hazard/2011/daishinsai/20110412ima/Radiation-m2.gif>

3) Koarai, K., Kino, Y., Takahashi, A., Suzuki, T., Shimizu, Y., Chiba, M., Osaka, K., Sasaki, K., Fukuda, T., Isogai, E., Yamashiro, H., Oka, T., Sekine, T., Fukumoto, M., Shinoda, H. : ⁹⁰Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Sci.Rep.* 6:24077, DOI:10.1038/srep24077 (2015)

4) Chikayama, Y., Yagi, Y., Shiono, H., Watanabe, A., Miyamoto T. Accumulation of ⁹⁰Sr to cattle and horse bones in Hokkaido. *Radioisotopes* 48, 283-287 (1999)

5) Kulev, Y.D., Polikarpov, G.G., Prigodey, E.V., Assimakopoulos, P. A. : Strontium-90 concentrations in human teeth in South Ukraine, 5 years after the Chernobyl accident. *Sci. Total Environ.* 155, 215–219 (1994).

6) Stamoulis, K.C., Assimakopoulos, P.A., Ioannides, K.G., Johnson E., Soucacos P.N. : Strontium-90 concentration measurements in human bones and teeth in Greece. *Sci. Total Environ.* 229, 165–182 (1999).

7) Iwasaki, M., Miyazawa, C., Kubota, A., Suzuki, E., Sato, K., Naoi, J., Katoh A., Niwa, K. : Energy Dependence of the CO₃³⁻ Signal Intensity in ESR Dosimetry of Human Tooth Enamel. *Radioisotopes* 40, 421-424 (1991).

Dosimetric assessment of radiation exposure using deciduous teeth collected from children in Fukushima

Keiichi Sasaki

Tohoku University Graduate School of Dentistry

Key word: Fukushima-Daiichi-Nuclear-Power-Plant-accident, deciduous teeth, radiation dose, imaging plate, ESR, radiation exposure

Abstract

Radiation dose assessment using imaging plates

Screening examination for radioactive materials incorporated in 4,957 deciduous teeth, collected from children in Fukushima and corresponding control prefectures, was carried out using imaging plates. The data were epidemiologically assessed using multivariate regression analysis to examine the dose differences in radiation, based on the Quantum Level (QL) values obtained from the teeth, in terms of differences in the residential areas, type of the tooth, sex, and duration of its existence in the mouth after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FNPP) accident. The following results were obtained: (1) Concerning the teeth formed before the FNPP accident, the QL values of the teeth collected from the resident children of Fukushima were slightly lower than those collected from the children in control prefectures. (2) There were significant regional differences in the level of radiation in the teeth collected from 7 local governmental areas within Fukushima prefecture. (3) In the Fukushima prefecture, the QL values exhibited a tendency for increase in QL values proportionate to the increasing duration of existence of the teeth in the mouth, while the QL values from control prefectures did not exhibit any such tendencies. (4) The QL values differed with the type of teeth; the highest value was observed in the maxillary deciduous incisors, and the lowest in the mandible deciduous molars. (5) There was no significant correlation between the QL values of teeth and radiation dose present in air dose in both the districts where the children resided during the accident and after evacuation. (6) There was no significant difference in the QL values between the sexes, in Fukushima and control prefectures.

Because the teeth examined in the present study were formed before the FNPP accident, the aforementioned findings may serve as important control data for future studies on teeth formation after the FNPP accident, to be conducted over the next several years.

Verification of electron spine resonance method for the measurement of carbonic radicals in teeth

Electron spin resonance (ESR) quantification of carbonic radicals in teeth has been used in cases of radiation exposure above 100-200 mGy. However, the technique lacks sensitivity for detecting exposure to radiation doses less than 100 mGy. The present study was conducted to improve the dosimetric detection limit, and thus facilitate the measurement of low radiation exposures. We optimized the technique to accurately quantify small amounts of radicals generated by doses less than 100 mGy (0, 20, 40, 60, 80, and 100 mGy) in Japanese macaque teeth. The estimated detection limit based on the 95% confidence limits for macaque teeth was 7 mGy. This technical advancement was facilitated by a novel method aiding in the separation of tooth enamel from dentin based on differences in tissue gravity, followed by the elimination of organic materials and mechano-radicals from the enamel by NaOH and CH₃COOH solutions. The observed ESR spectra were deconvoluted using an ESR dosimetry program to determine the intensities of the CO radicals, which were plotted against the irradiated gamma-ray doses to construct the calibration curves. The above technique may, therefore, be useful for ESR dosimetry of human deciduous teeth.

1-4 浪江町民のための被ばく線量調査

床次 眞司（弘前大学被ばく医療総合研究所 教授）

研究要旨

浪江町は2017年3月に帰還困難区域を除く地域の避難指示が解除され、それにともない住民の帰還が始まった。我々は住民の帰還に際し、放射性セシウム及び天然放射性核種による内部被ばく及び外部被ばく線量の評価を実施する。内部被ばく線量評価のために、町内の5か所で大気中放射性セシウムをろ紙上に採取し、高純度Ge半導体検出器で放射能濃度を評価した。また、環境水への影響を評価するために町内の5か所（ただし、2018年からは4か所）において河川水と底質土をサンプリングし、放射性セシウム濃度を評価した。さらに、ラドンによる吸入被ばく線量を評価するために家屋内外にパッシブ型ラドン・トロン弁別モニタ（RADUET）を設置した。一方、個人外部被ばく線量の評価のために住民が携帯しているDシャトルのデータ解析を行った。また、浪江町内の線量分布の全体像を把握するために3インチ×3インチNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた自動車走行サーベイを行った。その結果をもとに、町内を1km×1kmのメッシュに区切り、その中で3インチ×3インチNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた空間線量率の定点観測を行った。定点観測で得られたγ線波高分布は応答行列法によって天然成分と人工成分とに分けて空間線量率を評価し、マッピングを行った。

キーワード

浪江町、線量評価、外部被ばく、内部被ばく、自然放射線、人工放射線

研究協力者

赤田 尚史（核融合科学研究所・准教授）
岩岡 和輝（量子科学技術研究開発機構・主任研究員）

研究参加者

柏倉 幾郎（弘前大学大学院保健学研究科・教授）
細田 正洋（弘前大学大学院保健学研究科・講師）
田副 博文（弘前大学被ばく医療総合研究所・助教）
小山内 暢（弘前大学大学院保健学研究科・助教）
工藤 ひろみ（弘前大学大学院保健学研究科・助教）
城間 吉貴（弘前大学大学院保健学研究科・特任助教）
山口 平（弘前大学大学院保健学研究科・助教）
辻口 貴清（弘前大学大学院保健学研究科・助教）
プロイクラトック・タマボーン（弘前大学被ばく医療総合研究所・研究機関研究員）

玉熊 佑紀 (弘前大学大学院・学生)
鈴木 崇仁 (弘前大学大学院・学生)
浅野 喬 (弘前大学医学部・学生)
岡野 杏奈 (弘前大学医学部・学生)
森田 祐貴 (弘前大学医学部・学生)
鳴海 雄貴 (弘前大学医学部・学生)

I. 研究目的

弘前大学は2011年9月に浪江町と協定を締結し、町の意向に沿った形で様々な支援活動を実施してきている¹⁾。この支援活動の中で、帰還を前に浪江町民は帰還困難区域から放射性セシウムを含む大気を吸入することによる内部被ばく、生活に直結する河川水の汚染に対して大きな不安を抱えていることを把握した。さらに、浪江町民に実施した放射線の基礎知識に関するアンケート調査の結果によれば、浪江町民の多くは対照地域である青森県民と異なり、同じ被ばく線量であっても東京電力福島第一原子力発電所事故発由来の人工放射線による被ばく影響は自然放射線によるものと異なると考えていることが明らかになった²⁾。つまり、住民のニーズに即したデータを蓄積するとともに、人工放射線と自然放射線による被ばくの実態を明らかにし、住民に対するリスクコミュニケーションに活用するために信頼できるデータを取得することは帰還後の住民の不安の軽減につながると考えられる。浪江町は2017年3月に帰還困難区域を除く地域の避難指示が解除され、それにともない住民の帰還が始まった。そこで本研究では、帰還を予定している浪江町民のニーズに即した調査を実施し、帰還住民のより詳細な線量評価を実施することで住民の不安を軽減するデータの取得を行うとともに、人工成分と天然成分に弁別した外部被ばく線量評価、天然放射性核種として内部被ばく線量に大きく寄与するラドンによる線量評価を実施することにした。昨年度は、①大気中の放射性物質濃度の調査、②河川水及び底質土中の放射性物質濃度の調査、③帰還した浪江町民の個人被ばく線量の評価、④帰還した浪江町民の家屋内におけるラドンによる内部被ばく線量評価、⑤浪江町全域の自然放射線による空間線量率マップ、人工放射線の寄与率マップの作成を実施した。本研究は継続的にデータを取得することに意義があるため、本年度も昨年度と同様の調査を実施した。

II. 研究方法

1. 大気中の放射性物質濃度の調査

昨年度と同様に、図 II-1 に示す町内の5か所において本年度は2018年6月から3か月毎に大気試料を採取した。沢上消防屯所及び田末消防屯所の2か所では電源を確保することができたためハイボリュームサンプラを用いた。捕集フィルタとしてPTFE バインダーフィルタ (TF98, SHIBATA, フッ素処理を行ったフィルタ) を使用し、流量は500 L/min に設定した。一方、北棚塩集会所、浪江にじいろこども園及び高瀬消防屯所の3か所では電源を確保することが困難であっ

たため、バッテリー駆動式のローボリュームサンプラを用いた。捕集フィルタとしてガラス繊維ろ紙フィルタ（GF/F, Whatmann）を使用し、流量は 30 L/min に設定し電源が切れるまで捕集を続けた。捕集後のフィルタは研究室に持ち帰った後、80°C で乾燥処理を行い、乾燥重量を測定した。その後、TF98 は折り畳み、GF/F は捕集面を下にして U8 容器（直径 56 mm × 高さ 68 mm で容積が 100 mL）に詰めた（図 II-2）。その後、高純度 Ge 半導体検出器（GEM30P4-70, ORTEC 社）で測定を行った。使用した高純度 Ge 半導体検出器の分解能（FWHM）は 1.68 keV（⁶⁰Co の 1.33 MeV の γ 線）、ピークコンプトン比は 74（⁶⁰Co の 1.33 MeV の γ 線）、相対効率は 35%（⁶⁰Co の 1.33 MeV の γ 線）である。測定時間は、ハイボリュームサンプラで捕集したフィルタは約 1 日（80,000 秒）、ローボリュームサンプラで捕集したフィルタは 1 週間（604,800 秒）以上の測定を行った。¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の放射能濃度は、ソフトウェア（Gamma Studio, SEIKO EG&G）に必要な情報を入力し、解析を行った。¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の放射能濃度の評価には、それぞれ 795 keV 及び 662 keV の全エネルギー吸収ピークの計数値を用いた。



図 II-1 大気中放射性物質の採取地点と大気試料採取の様子。

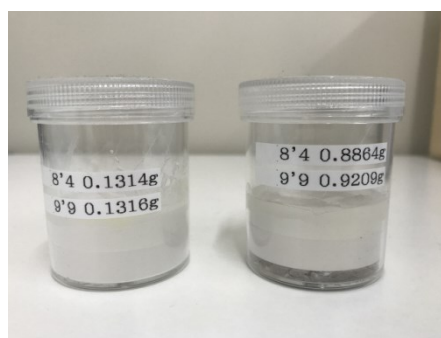


図 II-2 フィルタ試料を U8 容器に封入した様子（左：GF/F、右：TF98）。

2. 河川水及び底質土中の放射性物質濃度の調査

昨年度は、図 II-1 に示す町内の 5 か所において採水を行ったが、2018 年 2 月より棚塩は河川敷堤防工事によりサンプリングができない状況にあるので、本年度は棚塩以外の 4 地点とした。2018 年 6 月から 3 か月毎に河川水を採水した。いずれの採水地点においてもバケツによって 10 L の河川水を汲み上げコンテナ容器に採水した。さらに、底質土を 500 mL のポリ容器に封入し、研究室に持ち帰った。

河川水の処理は Ueda らの報告³⁾に従って処理を行った。それぞれ 4 L の試料水を孔径 0.45 μm のフィルタでろ過した試料とろ過をしてない試料の 2 種類準備した。ろ過していない試料を高純度 Ge 半導体検出器で測定したものを全濃度 (①とする) とした。また、ろ過した試料を測定したものを溶存態濃度 (②とする) とした。さらに、①から②を差し引いた濃度を懸濁態濃度とした。

分析には粉状イオン交換樹脂 (POWDEX 樹脂、Ecodyn Co., USA) を用いた。陰イオン交換樹脂として PAO、陽イオン交換樹脂として PCH をそれぞれ 40 g ずつビーカーに移し、純水を約 1.5 L 入れながら攪拌した。数分経ってから上澄みを捨て、さらに純水を加えて 1.5 L にした後スターラで 30 分間攪拌した。図 II-3 に示すようにカラムにろ紙をセットし、純水で洗いながらカラムに樹脂を全量入れた。流速を 20 mL/min 程度を目安にして試料水をカラムに流した。その際、カラムの出口から出てきた試料水の電気伝導度を測定し、溶存イオン成分が全て吸着されていることを確認した。試料水を全て流し込んだ後、20 分程度静置した。その後、樹脂を乾燥させるときに使う磁性皿の重量を測定し、樹脂を磁性皿の中に全て移した。80°C で 48 時間以上の条件で樹脂を乾燥させた。乾燥後、デシケーター内で 20 分程度冷却し、樹脂及び磁性皿の重量を測定した。樹脂をユニパックに全て移し塊を細かくパウダー状にした後、U8 容器に封入した。



図 II-3 カラムにイオン交換樹脂を入れて試料水を流している様子。

底質土は、105°C で 24 時間以上の乾燥処理を行った後、U8 容器に封入し、高純度 Ge 半導体検出器で 80,000 秒間の測定を行った。河川水と底質土中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の放射能濃度は、フィルタ試料と同様に Gamma Studio を使って解析を行った。

3. 帰還した浪江町民の個人被ばく線量と居住区域内での空間線量率の評価

浪江町では、帰還した住民の個人被ばく線量を評価するため別事業で D シャトル (株式会社千代田テクノル) を配布している。本研究では、浪江町経由で 20 名の D シャトルの測定データを提供してもらい、携帯期間中の個人線量当量の積算値を評価した。

4. 帰還した浪江町民の家屋内外におけるラドンによる内部被ばく線量評価

2017 年 8 月以降、89 軒の家屋を訪問し、調査協力の承諾を得た家屋内外に測定器を設置した (図 II-4)。ラドンの測定には、Tokonami ら⁴⁾によって開発された、パッシブ型ラドン・トロンモニタ

(RADUET、図 II-5) を使用した。RADUET は、国際的にも多くの国や地域で使用されている標準的なラドンモニタである。その大きさは縦 6 cm、横 11 cm、高さ 3 cm 程度で内容積が約 30 cm³ と小型で軽量である。また、測定に電源を必要とせず、臭いも音も発しない。RADUET は、換気率の異なる 2 つ容器（一つは低換気率であり、もう一つは高換気率である）を持ち、それぞれの容器の底に CR-39 (バリオトラック、長瀬ランダウア株式会社) が 1 枚ずつ張り付けられている。大気中のラドンは拡散し、容器と蓋の隙間を通過して容器内に侵入する。一方、トロンの半減期は 55.6 秒とラドンの半減期 (3.824 日) と比べると非常に短いため、容器内には殆ど侵入しない。したがって、低換気率容器内の CR-39 では殆どがラドンによる α 線を検出する。一方、高換気率容器には側壁に直径 6 mm の穴が等間隔に 6 つ開けられているためラドンとトロンは容易に容器内に侵入し、それらから放出される α 線は CR-39 の表面にトラックを形成する。さらに、高換気率容器の内壁には導電性スポンジが設置されており、塵やゴミが容器内に侵入しないように工夫されているとともに内外壁の電荷を同一に保っている。

ラドン濃度は季節変動を示すことが知られているため、3 か月を 1 期とした 4 期の測定をしている。昨年度の 8 月に設置した RADUET は 11 月末から 12 月初旬にかけて回収した。その後、次の 3 か月間のデータを取得し、これを繰り返した。実施途中で浪江町に住んでいる住民がラドンの測定を希望した場合もあった。そのような場合には、4 期の測定が終了するまで継続することになっているので、現在測定中の家屋もある。

回収後の RADUET から CR-39 を取り出し、60°C の 6M NaOH 溶液に 24 時間浸し化学エッチング処理を行った。その後、CR-39 を乾燥させ、デジタルカメラを取り付けた光学顕微鏡を用いて CR-39 のエッチピットを撮影した。得られた写真を 1 枚ずつ ImageJ (写真解析ソフト) によってエッチピット数を計数し、ラドン濃度やトロン子孫核種濃度を計算した。なお、RADUET ではトロン濃度も評価されるが、これはラドン計測におけるトロンの妨害を取り除くことが主たる目的である。トロンは半減期が短いため、ラドンとは異なり家屋内では均一な分布とならず、その濃度は測定器の設置場所に依存することが知られている。したがって、本研究ではラドン濃度のみを示すこととした。



図 II-4 家屋内外にモニタを設置した様子。



図 II-5 RADUET の外観。左が低換気率容器であり、右が高換気率容器である。高換気率容器には 6 個の穴が開いている。

5. 浪江町全域の自然放射線による空間線量率マップ、人工放射線の寄与率マップの作成

昨年度実施した自動車走行サーベイの結果をもとに、本年度も浪江町内を 1 km × 1 km に区切り、空間線量率の定点観測を実施した。測定には 3 インチ × 3 インチ NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いた。各測定地点での測定時間を 15 分間として γ 線波高分布を取得した。 γ 線波高分布の解析には 49 × 49 の応答行列⁵⁾を用いてアンフォールディングし、空間線量率(正確には、空気吸収線量率)を評価した。さらに、この手法によって天然由来と放射性セシウム (^{134}Cs 及び ^{137}Cs) 由来の空間線量率とを弁別して評価した(図 II-6)。また、一部の測定地点では 1 km × 1 km の範囲内でのバラツキを評価するために 5 地点で同様の測定を実施した。

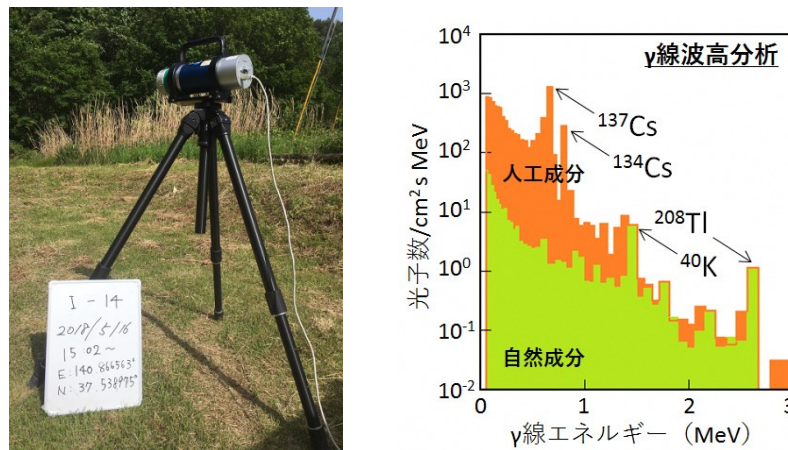


図 II-6 γ 線波高分布の定点観測の様子(左)と応答行列法によって得られた γ 線エネルギースペクトル。

(倫理面への配慮)

本研究で実施する浪江町に帰還した住民の行動調査に関しては、弘前大学大学院保健学研究科の倫理委員会に諮り承認(2016-61)を得て実施している。具体的な内容を下記に記す。

1) D シャトルによる個人外部被ばく線量に関して

1. 帰町開始前に浪江町役場の協力の下、研究者らは対象者に説明文書と口頭による説明を行い、

線量把握について署名により同意書を得る。

2. 町民は D シャトルにより外部被ばく線量を測定し、かつ弘前大学が作成した行動記録票を記入する。
3. 町民は測定済みの D シャトルを別事業の担当機関の担当者に返却する。
4. 別事業の担当機関は、収集した D シャトルの読み取りデータに対してセキュリティ保護を施した形で弘前大学の研究者に送付する。弘前大学ではこれらのデータを用いて分析を実施する。
5. 解析結果は別事業の担当機関に報告するとともに個人にも還元する。

2) 家屋内外のラドン濃度調査と住宅環境の情報に関するアンケート調査

パッシブ型ラドン・トロン弁別モニタの設置と質問紙調査を実施する。調査の依頼は、浪江町が実施する D シャトルによる外部被ばく線量把握の対象者の中から同意の得られた 100 名に対して行う。ただし、100 名の中には同一家族が含まれることが予想されるため、その場合には 1 家族に対して 1 枚の質問紙調査を行う。手順は以下の通りである。

1. 浪江町役場の協力の下、弘前大学は対象者に対する説明を行うと同時に質問紙の口頭説明を行い、署名により同意を得る。なお、説明文書には調査目的・方法、回収方法、倫理的配慮などを記載し、自由意思により参加を判断してもらう。
2. 同意が得られた町民にパッシブ型ラドン・トロン弁別モニタと質問紙を戸別訪問により手渡しする。その際に、質問紙調査も自由記載及び聞き取りで行う。本調査で使用するパッシブ型ラドン・トロン弁別モニタは小型で電源を必要とせず、任意の場所に 3 か月程度置いておくだけでよい。質問紙の内容には、対象者の氏名および住所、家屋構造（建築様式、築年、設置場所等）、設置開始日時及び回収日時、喫煙歴とする。

それ以外の線量調査、ラドン調査、大気試料サンプリングは、環境測定や環境試料を扱うもので、直接、ヒトを対象としたものではない。倫理的な配慮は特に必要がないものと思われる。

III. 研究結果

1. 大気中の放射性物質濃度の調査

大気中の放射性セシウム (^{134}Cs 及び ^{137}Cs) の放射能濃度の経時変化を図 III-1 に示す。浪江にじいりこども園は2017年10月以降、北棚塩集会所は全ての期間で検出下限値以下 (ND) であった。高瀬消防屯所では、2018年2月、6月及び9月に 0.24 mBq/m^3 から 0.30 mBq/m^3 程度の放射能濃度であったが、12月はNDであった。一方、ハイボリュームサンプラを使用した沢上消防屯所及び田末消防屯所では2018年12月時点で、それぞれ 0.08 mBq/m^3 及び 0.04 mBq/m^3 の放射能濃度であったが、総じて減少傾向にある。これは物理半減期とこの地域における環境現象による環境半減期等に由来するものと思われるが、次年度も継続してデータを取得していく。

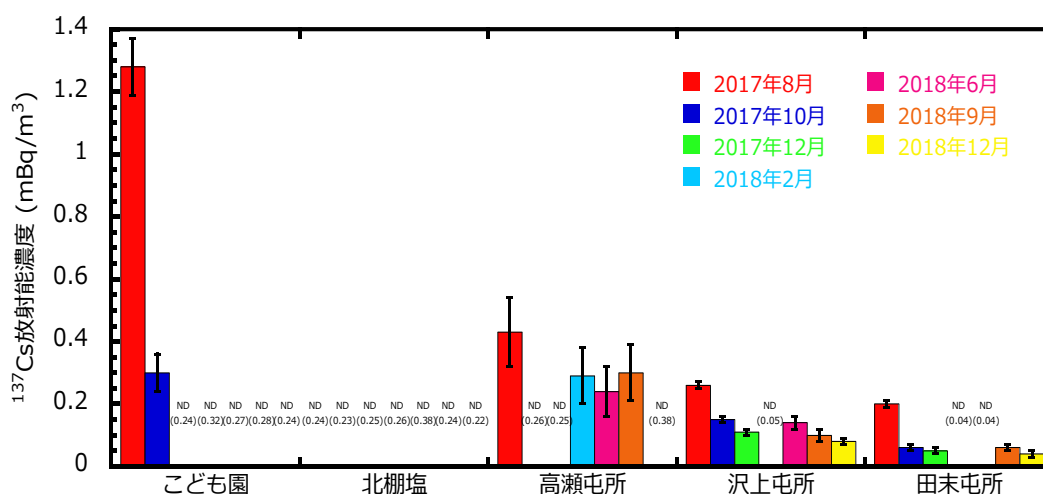


図 III-1 大気中の ^{137}Cs 放射能濃度の経時変化

2. 河川水及び底質土中の放射性物質濃度の調査

河川水中の ^{137}Cs の放射能濃度の経時変化をそれぞれ図 III-2、底質土中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 放射能濃度の経時変化を図 III-3 に示す。昨年度の報告書に記載したように、2017年8月に採水した河川水中の ^{134}Cs 放射能濃度は、棚塩及び幾世橋以外では検出されたものの、溶存態濃度が評価できたのは酒田のみであり、それ以外の4地点では全てNDであった。さらに、2017年10月に採水した河川水中の ^{134}Cs 放射能濃度は、酒田及び棚塩のみで検出されたが、全ての溶存態濃度がNDであった。また、2017年12月に採水した河川水中の ^{134}Cs 放射能濃度は全ての地点においてNDであった。2018年6月に酒田の溶存態中の ^{134}Cs 放射能濃度が $18.1 \pm 5.4 \text{ mBq/L}$ であったものの、それ以外の地点はいずれもNDであった。したがって、 ^{134}Cs については図として示さなかった。なお、2018年2月より棚塩周辺で河川敷堤防の改修工事が始まったため、採水及び採土ができなくなったため、棚塩を除いた4地点で評価を行った。

帰還困難区域に近い酒田では、2018年6月の全濃度（懸濁態+溶存態）と溶存態濃度は、2018年2月と比べて上昇した。また、小野田、高瀬、幾世橋でも同様の傾向が認められた（ただし、幾瀬橋は全濃度のみの検出）。一方、2018年6月に酒田で採取した底質土中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 放射能濃度も2018年2月と比べて優位に上昇している。気象庁によれば、この時期に台風が通過し

たとの報告はない。しかし、2018年2月の採水以降、3月1日(24.0 mm)、5日(31.5 mm)、9日(35.0 mm)、21日(14.0 mm)、22日(21.5 mm)、4月24日(12.0 mm)、25日(31 mm)、5月3日(11.0 mm)、7日(14.0 mm)、9日(28.0 mm)、23日(11.5 mm)と10 mm以上の降水量を観測している⁶⁾。つまり、継続的な降雨によって帰還困難もしくはその周辺の汚染した土壌が河川に流入して堆積したものを6月に採取した可能性がある。

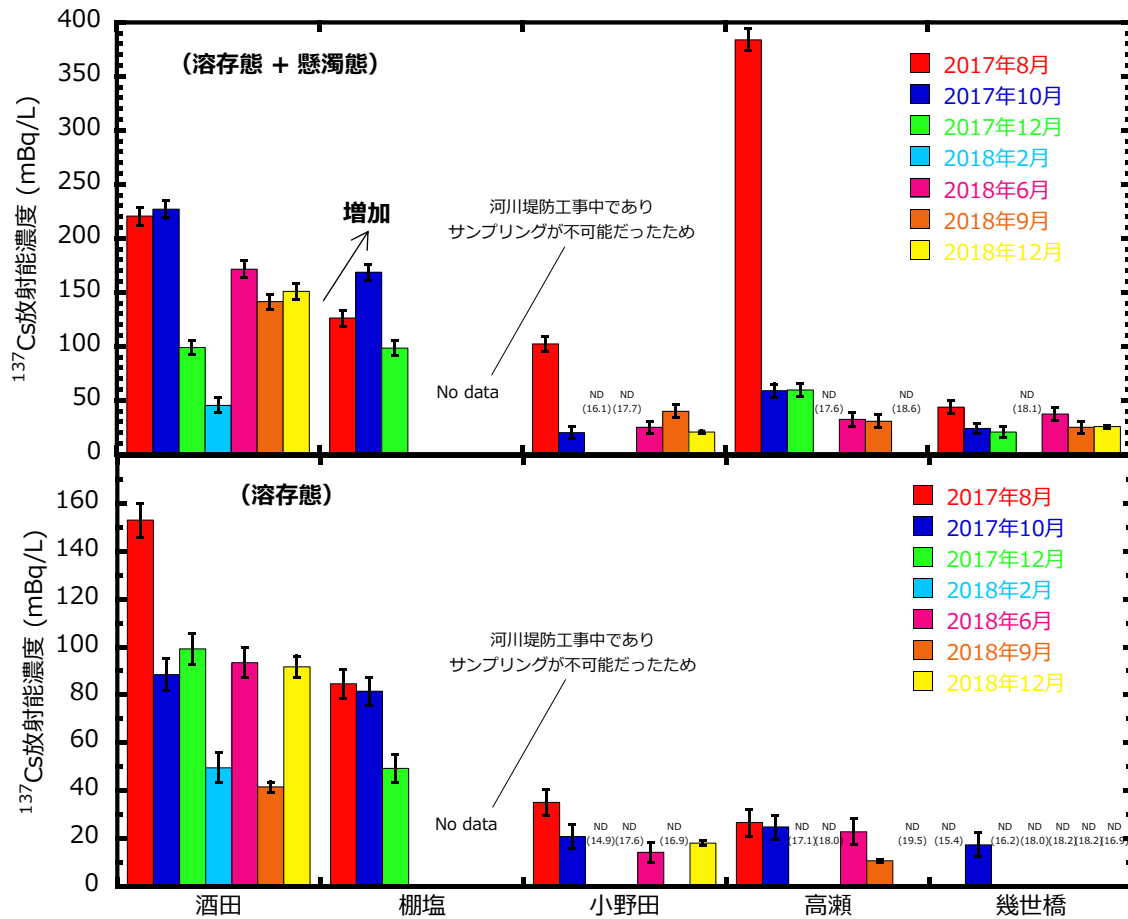


図 III-2 河川水中の ¹³⁷Cs 放射能濃度の経時変化。上段は溶存態と懸濁態中の濃度変化、下段は溶存態のみの濃度変化を示す。

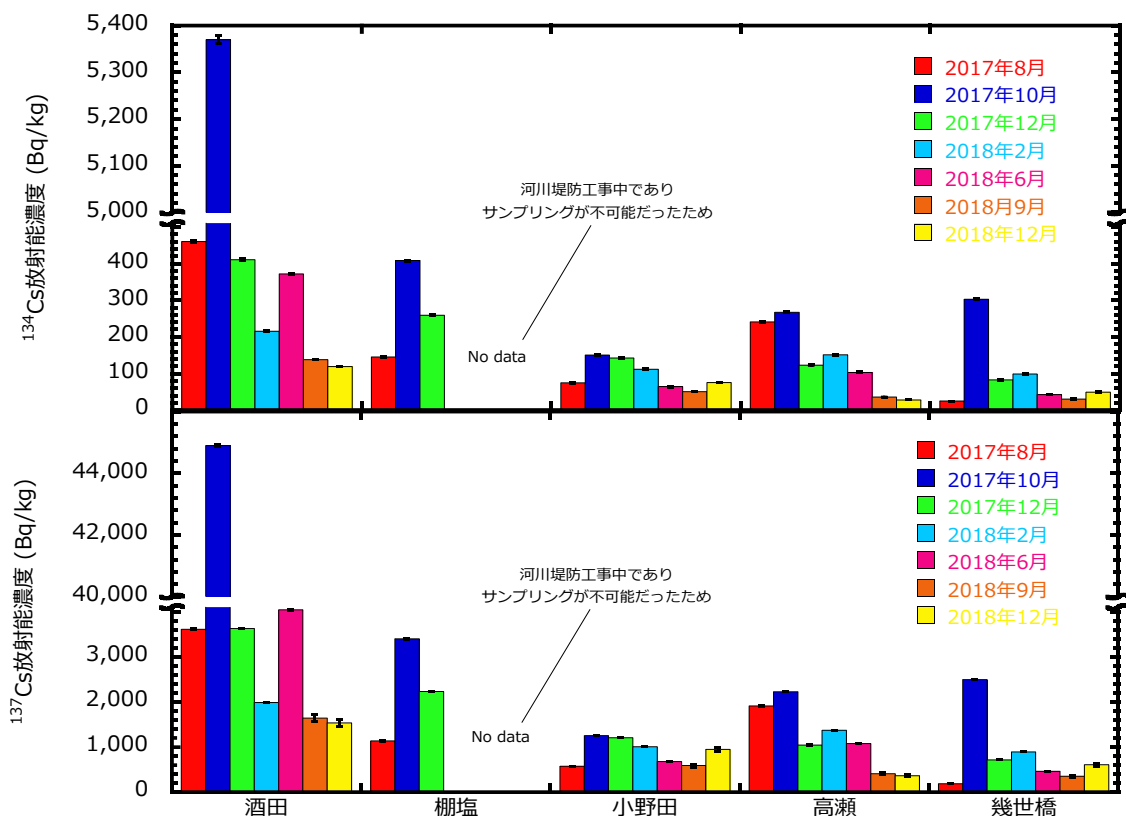


図 III-3 底質土中の放射性セシウム放射能濃度の経時変化。上段は ¹³⁷Cs 放射能濃度の変化、下段は ¹³⁴Cs 放射能濃度の変化を示す。

3. 帰還した浪江町民の個人被ばく線量と居住区域内での空間線量率の評価

D シャトルを携帯していた 20 名の携帯期間は 43 日間から 192 日間であった。この 20 名の携帯期間中の個人線量当量（自然放射線による成分を含む）の積算値は 0.19 mSv から 1.8 mSv であった。20 名の一泊あたりの個人線量当量に換算すると 1.9 μSv から 12.3 μSv と幅があった。詳細な行動記録が得られているわけではないので、十分な検討はできないが、帰還困難区域の立ち入り時間などに依存している可能性が示唆される。今後、新たな情報を取得し次第、データを更新する。本年度は、家屋敷地内における空間線量率測定のための協力依頼をした。そこで、最終年度である次年度は、ラドン調査結果を報告するとともに、許可を得た家屋において空間線量率の調査を実施する予定である。

4. 帰還した浪江町民の家屋内外におけるラドンによる内部被ばく線量評価

家屋内外で得られたラドン濃度を図 III-4 に示す。現段階で解析が終了した家屋の四期間の屋内ラドン濃度の範囲と中央値は、それぞれ ND (~13 Bq/m³) から 242 Bq/m³、33 Bq/m³ であった（いずれも暫定値）。中央値の計算では、ND となった家屋のラドン濃度を一律に 13 Bq/m³ とした。我が国の屋内ラドン濃度（算術平均値は 15.5 Bq/m³）⁷⁾ と比較すると中央値は 2.1 倍程度高い。換気回数が少ないことや、主たる基盤地質がラジウムを多く含む花崗岩や花崗閃緑岩であることが要因として考えられる。特に、木造家屋でも 100 Bq/m³ を超えた家屋も発見されたが、RADUET

の設置場所や部屋の利用頻度、換気回数によっては、この程度のラドン濃度になる可能性は十分にあり得る。行動調査を入手した後、設置場所や換気回数等を含めて情報を入手することで高濃度の要因を検討する必要がある。

また、屋外ラドン濃度の範囲と中央値は、それぞれND (~13 Bq/m³) から 76 Bq/m³、20 Bq/m³であった (いずれも暫定値)。我が国の屋外ラドン濃度の算術平均値⁸⁾は 6.1 Bq/m³と比較すると中央値は 3.3 倍程度高い。屋内と同様にNDとなった家屋のラドン濃度は一律に 13 Bq/m³として計算した。実際の屋外ラドン濃度の中央値はさらに低い値になると考えられる。一方、我が国の屋外ラドン濃度の3倍以上の値を示した場所もあり、おそらく設置場所の状況に由来していると考えられる。つまり、降雨の影響を避けるために壁に密着させて設置をせざる得ない状況にあった場合、大気中のラドンというよりも壁材からのラドンを検出している可能性がある。この場合には、我が国の算術平均値よりも高いラドン濃度が検出される可能性は十分にある。

現在までに得られた四期間分の屋内及び屋外ラドン濃度 Q の中央値を用いて、設置家屋に滞在したと仮定した際に受けるラドン由来の年間実効線量 E (内部被ばく線量) を(1)式から評価した。ただし、現段階ではここで示したラドン濃度は暫定値であるため、評価された線量も暫定的な値であることに注意が必要である。

$$E = \{(Q \cdot F \cdot T \cdot K)_{\text{indoor}} + (Q \cdot F \cdot T \cdot K)_{\text{outdoor}}\} \quad (1)$$

ここで、 F は屋内及び屋外の平衡ファクタで、それぞれ 0.4 及び 0.6 とした。 T は所在係数で、一日のうち屋内に 90%、屋外に 10%滞在するとした⁹⁾。 K は線量換算係数で 9 nSv/Bq h m³である。その結果、ラドンによる年間実効線量 (暫定値) は 1.02 mSv であると評価された。

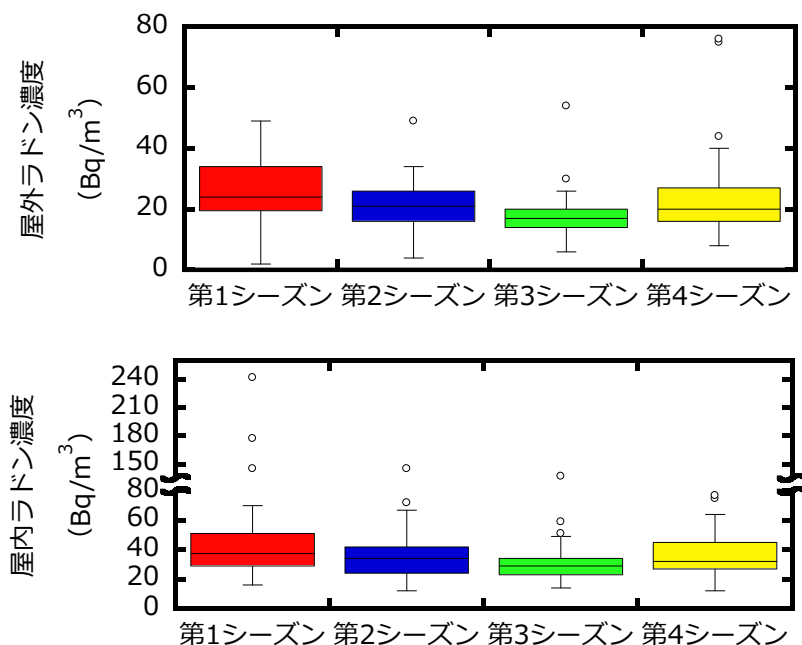


図 III-4 家屋内外のラドン濃度の変化。上段が屋外ラドン濃度、下段が屋内ラドン濃度を示す。

5. 浪江町全域の自然放射線による空間線量率マップ、人工放射線の寄与率マップの作成

自動車走行サーベイの結果をもとにして浪江町内の侵入可能な 133 地点において定点観測を実施した結果得られた天然成分+人工成分、天然成分、人工成分の確率密度分布を図 III-5 に示す。天然成分+人工成分の空間線量率の最小値、最大値、中央値はそれぞれ 0.05 $\mu\text{Gy/h}$ 、11.9 $\mu\text{Gy/h}$ 、1.45 $\mu\text{Gy/h}$ であった。また、天然成分の空間線量率の最小値、最大値、中央値はそれぞれ 0.02 $\mu\text{Gy/h}$ 、0.07 $\mu\text{Gy/h}$ 、0.03 $\mu\text{Gy/h}$ であった。さらに、人工成分の空間線量率の最小値、最大値、中央値はそれぞれ 0.01 $\mu\text{Gy/h}$ 、11.9 $\mu\text{Gy/h}$ 、1.43 $\mu\text{Gy/h}$ であった。居住区域内に限定すると、天然成分と人工成分の中央値は、それぞれ 0.03 $\mu\text{Gy/h}$ 及び 0.16 $\mu\text{Gy/h}$ であった。

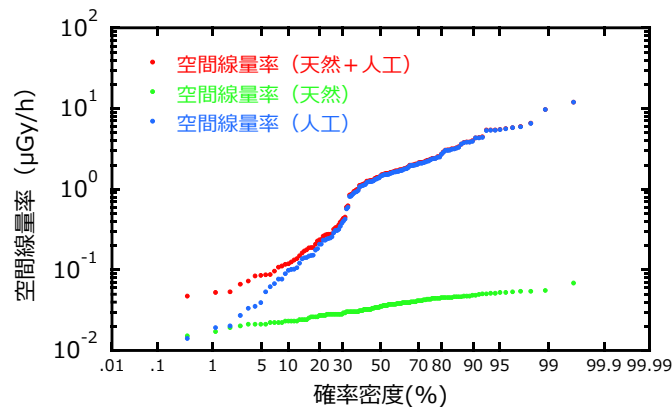


図 III-5 定点観測によって得られた空間線量率の確率密度分布。

浪江町内の 133 地点において定点観測を実施した結果得られた天然成分及び人工成分の空間線量率分布図を図 III-6 及び図 III-7 に示す。本年度の調査によって立ち入り可能な測定地点での全ての測定が終了した。空間線量率の天然成分と人工成分による年間実効線量は、居住区域内のそれぞれの中央値を用いて以下のように評価した。天然成分では、家屋内外での空間線量率の比を 1 として評価した。一方、人工成分では、Yoshida らの報告¹⁰⁾に基づき低減係数を 0.43 とした。所在係数は、ラドンによる線量評価と同様に、屋内を 0.9、屋外を 0.1 とした。また、天然成分の空気吸収線量 (Gy) から実効線量 (Sv) への換算係数には森内らによって報告されている 0.748 Sv/Gy を用いた¹¹⁾。本来は、この換算係数は空気吸収線量から実効線量当量への換算係数として報告された。しかし、対象となる γ 線エネルギーに対する換算係数は ICRP Publ.51 と ICRP Publ.116 とでそれぞれ報告されているが、その差は 2%未満であるため、本線量評価において 0.748 Sv/Gy を実効線量への換算係数として使用することは問題がないと判断した。一方、人工成分に対する換算係数には Omori らによって報告された 0.73 Sv/Gy を用いた¹²⁾。その結果、居住区域の天然成分と人工成分による年間実効線量は、それぞれ 0.20 mSv 及び 0.50 mSv であり合わせて 0.70 mSv と評価された。

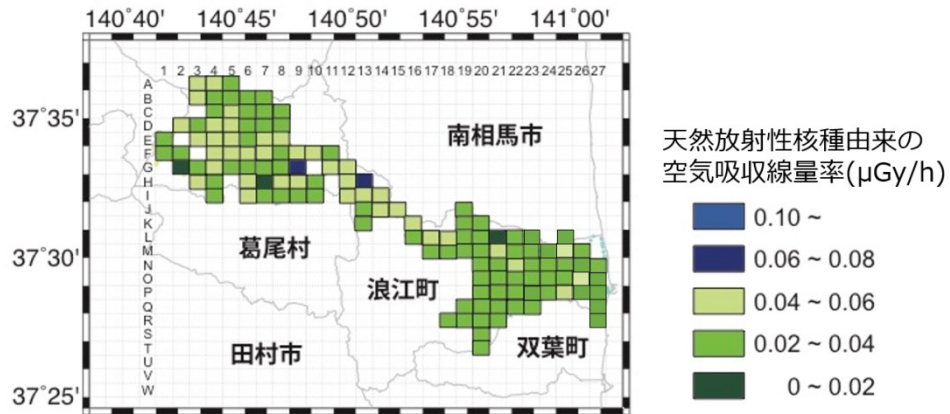


図 III-6 天然成分の空間線量率分布。

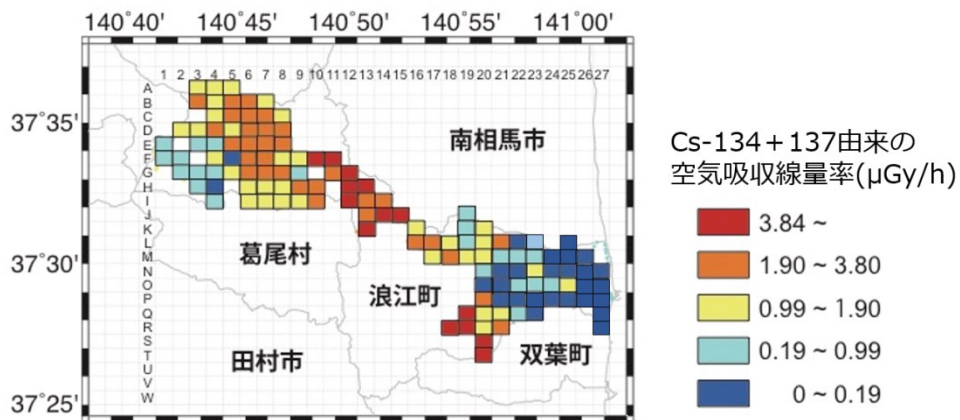


図 III-7 人工成分の空間線量率分布。

IV. 考察

大気中の放射性セシウム濃度に関して、ハイボリュームサンブラを使用した沢上消防屯所及び田末消防屯所では2018年12月時点で、それぞれ0.08 mBq/m³及び0.04 mBq/m³の放射能濃度を検出したが、しかし、ローボリュームサンブラを使用した採取地点では全て検出下限値以下であった。大気中の放射性セシウムを吸入摂取することによる内部被ばく線量は、2017年8月の浪江にじいろこども園で観測された値を用いることで保守的な評価をした。その結果、5歳児では1.0 nSv/day (= 0.04 nSv/h)、成人では1.3 nSv/day (= 0.05 nSv/h)であり、年間実効線量に換算すると約5歳児では365 nSv、成人では475 nSvとなる。次年度も継続して調査を行うことで、住民が安心して生活できる情報を提供することができるのではと考える。

河川水中の放射性セシウム濃度の評価結果より、気象条件や環境の変化によって底質土中の放射性セシウム濃度が変化する可能性があり、その結果、河川水にも影響する可能性がある。したがって、継続して調査を行うことで季節変動を検討し、引き続き環境水への影響の有無を明らかにしていく必要があると考える。底質土中の¹³⁴Cs放射能濃度と¹³⁷Cs放射能濃度の比を評価し、その経時変化を図IV-1に示す。日本原子力研究開発機構によれば、福島第一原子力発電所の1号

機、2号機、3号機から放出された¹³⁴Cs及び¹³⁷Csの放射能比(¹³⁴Cs/¹³⁷Cs)は、それぞれ0.941、1.082、1.046と報告している¹³⁾。なお、この放射能比は2011年3月11日の値として評価されている。図IV-1に示すように、浪江町内の河川の底質土中の放射性セシウムは主として1号機由来であることが明らかとなった。

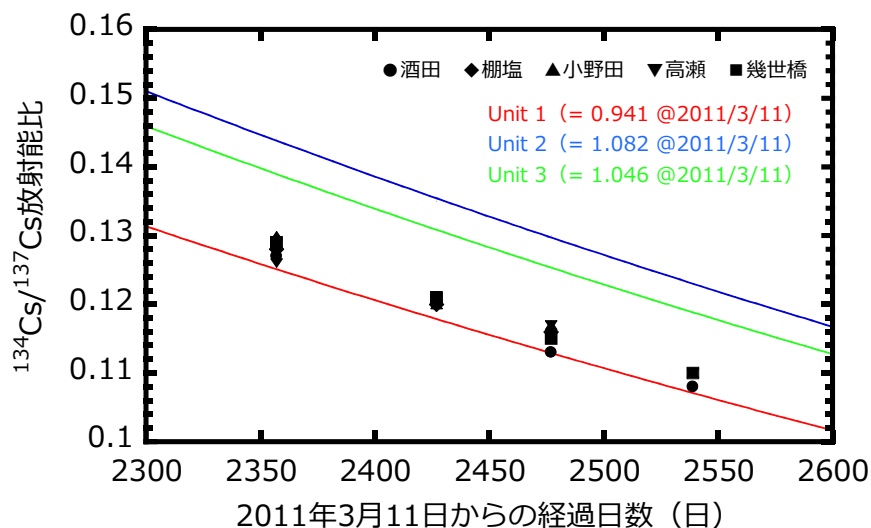


図 IV-1 避難指示解除区域における底質土中の¹³⁴Cs/¹³⁷Cs放射能比の経時変化。

D シャトルによる外部個人被ばく線量に関しては、今後も浪江町の協力のもとデータ数を増やすとともに、行動記録や対象者への聞き取り調査によって、線量の変動要因等について検討する予定である。

ラドンによる内部被ばく線量評価に関しては、四期間の解析が終了した家屋分のデータについてその結果を報告した。屋内においては100 Bq/m³を超える家屋も発見されたが、次年度は部屋の使用状況等を知るためにも行動記録を入手するとともに、ラドン濃度の連続モニタリングが可能な測定器を高濃度家屋に一定期間設置する等、継続的な調査を続けていくことで詳細な検討を行いたいと考えている。したがって、昨年度と同様に本年度も暫定値とした。このような状況ではあるが、屋内外のラドンによる年間実効線量の中央値は1.02 mSv程度と評価された。近年、国際放射線防護委員会からラドンの線量換算係数に関する新しい報告があった。このICRPの報告を基に、床次が新しい線量換算係数を計算した結果、21 nSv/Bq h m⁻³となることを報告した¹⁴⁾。この線量換算係数を用いた場合、ラドンによる年間実効線量の中央値は約2.4 mSvと評価される。新しい線量換算係数の使用を含め、国際動向にも着目しつつ事業を遂行していく予定である。

空間線量率の定点観測は133データを取得し、立ち入りが可能な調査地点の全データの取得が完了した。その結果、居住区域内のγ線(天然成分と人工成分)による年間実効線量は0.70 mSvと評価された。さらに、本年度は2か所において1 kmメッシュ内で5地点の測定を実施した。2か所の空間線量率 ± 標準偏差はそれぞれ、0.311 ± 0.164 μGy/h 及び 0.156 ± 0.014 μGy/h であり、それぞれの変動係数は53%及び9%であった。つまり、測定地点によって1 kmメッシュ内であってもその変動は大きく異なる可能性が示唆された。今後も測定値の代表性について検討を進める。

本年度までに得られた成果を基に、浪江町民が受ける年間実効線量の中央値(暫定版)を表IV-1

にまとめる。次年度は、各専門家の意見も仰ぎつつ、本調査で得られた結果をどのように住民に還元するか検討し、放射線リスクコミュニケーションに還元したいと考えている。

表 IV-1 浪江町民が受ける年間実効線量の中央値（暫定版）

	要因	自然成分	人工成分
外部被ばく	大地ガンマ線	0.20 mSv	0.50 mSv
	二次宇宙線	0.27 mSv	---
内部被ばく	経口摂取	0.99 mSv	≤1 mSv
	吸入摂取	1.02 mSv	≤3.7×10 ⁻⁴ mSv
	合計	2.5 mSv	≤1.5 mSv

V. 結論

本年度は、大気中放射性物質濃度、河川水中及び底質土中の放射性物質濃度、空間線量率分布図の作成及びラドンによる被ばく調査に関しては順調にデータを取得することができた。一方、D シャトルによる外部個人被ばく線量の調査に関しては浪江町よりデータを提供してもらい本学で解析を行うため、次年度以降も連絡を密にして解析を進めていきたいと考えている。

VI. 次年度以降の計画

浪江町及び帰還した町民の協力によって予定通りに調査が進んでいる。本研究課題は、継続調査によってデータの価値と信頼性が見出されるため、最終年度である次年度も町民の声を聴きつつ同様の調査研究を秋期前までは継続して進めていく予定である。ただし、ラドンの調査に関しては、新たな希望者がいるため四期間調査が終了するまでは実施する。さらに、暫定値ではあるが、高濃度の家屋が発見されたため、住民の許可を得た上で連続モニタリングが可能な測定を用いる等、詳細調査を実施する予定である。さらに、ラドンモニタリングの協力を得ている家屋においてラドンの結果を報告するとともに、住民の承諾を得て家屋敷地内での空間線量率の測定を実施し、空間線量率マップ作製のためのデータに加える予定である。また、次年度は最終年度であるため研究グループのみでなく、国内の専門家の意見を仰ぎながらデータを整理し、放射線リスクコミュニケーションに活用できる資料を作成する。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり

- 1) Y. Shiroma, M. Hosoda, K. Iwaoka, M. Hegedus, H. Kudo, T. Tsujiguchi, M. Yamaguchi, N. Akata, I. Kashiwakura, S. Tokonami, Changes of absorbed dose rate in air by car-borne survey in Namie Town, Fukushima prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Radiation Protection Dosimetry (in Press).

B. 論文：査読なし

1) なし

C. 学内学会発表

1) Hegedus Miklos, 城間吉貴, 岩岡和輝, 鈴木崇仁, 玉熊佑紀, 山田椋平, 辻口貴清, 山口平, 細田正洋, 柏倉幾郎, 床次眞司, Environmental monitoring of ^{134}Cs and ^{137}Cs levels in Namie Town, 日本保健物理学会第 51 回研究発表会, 2018.6.29.

D. 国際学会発表

1) Y. Shiroma, M. Hosoda, K. Iwaoka, M. Hegedus, H. Kudo, T. Tsujiguchi, M. Yamaguchi, N. Akata, I. Kashiwakura, S. Tokonami, Changes of absorbed dose rate in air by car-borne survey in Namie Town, Fukushima prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, 9th International Conference on High Level Environmental Radiation Areas -For Understanding Chronic Low-Dose-Rate Radiation Exposure Health Effects and Social Impacts, 2018.9.27.

2) M. Hosoda, Y. Tateyama, T. Suzuki, Y. Tamakuma, R. Yamada, K. Iwaoka, H. Kudo, Y. Shiroma, M. Hegedús, T. Tsujiguchi, M. Yamaguchi, I. Kashiwakura, S. Tokonami, N. Akata, Progress report of a new research project on dose assessment for residents of Namie Town, Fukushima Prefecture-Focused on radon research, VI. Terrestrial Radioisotopes in Environment International Conference on Environmental Protection, 22-25 May 2018.

3) S. Tokonami, Y. Shiroma, M. Hegedús, T. Tsujiguchi, M. Yamaguchi, H. Kudo, T. Suzuki, Y. Tamakuma, R. Yamada, K. Iwaoka, M. Hosoda, I. Kashiwakura, N. Akata, Overview of a new research project on dose assessment for residents of Namie Town, Fukushima, VI. Terrestrial Radioisotopes in Environment International Conference on Environmental Protection, 22-25 May 2018.

E. 著書

1) なし

F. 講演

1) なし

G. 主催した研究集会

1) なし

H. 特許出願・取得

1) なし

I. その他

1) なし

VIII. 参考文献

1) 床次眞司, 細田正洋, 岩岡和輝, 工藤ひろみ. “弘前大学による福島県浪江町復興支援プロジェクトの概要”. *保健物理* 2015;50(1):11-19.

- 2) 工藤ひろみ, 床次眞司, 細田正洋, 岩岡和輝, 葛西幸彦. “一般市民の放射線の基礎知識に関するアンケート調査-放射線の基礎知識の講演会に参加した浪江町民と青森県 3 市民の比較から-”. *保健物理* 2016;51(2):92-97.
- 3) Ueda S, Hasegawa H, Kakiuchi H, Akata N, Ohtsuka Y, Hisamatsu S. “Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan”. *Journal of Environmental Radioactivity* 2013;118:96-104.
- 4) Tokonami S, Takahashi H, Kobayashi Y, Zhuo W. “Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey”. *Review of Scientific Instruments* 2005;76:113505.
- 5) Minato S. “Diagonal elements fitting technique to improve response matrixes for environmental gamma ray spectrum unfolding”. *RADIOISOTOPES* 2001;50(10):463-471.
- 6) 気象庁ホームページ: <http://www.jma.go.jp/jma/index.html>
- 7) Sanada T, Fujimoto K, Miyano K, et al. “Measurement of nation-wide indoor Rn concentration in Japan”. *Journal of Environmental Radioactivity* 1999;45:129-37.
- 8) Oikawa S, Kanno N, Sanada T, et al. “A nationwide survey of indoor radon concentration in Japan”. *Journal of Environmental Radioactivity* 2006;87:239-45.
- 9) Hosoda M, Tokonami S, Omori Y, Ishikawa T, Iwaoka K. “A comparison of the dose from natural radionuclides and artificial radionuclides after the Fukushima nuclear accident”. *Journal of Radiation Research* 2016;57:422-30.
- 10) Yoshida-Ohuchi, H., Hosoda, M., Kanagami, T., Uegaki, M., Tashima, H. “Reduction factors for wooden houses due to external c-radiation based on in situ measurements after the Fukushima nuclear accident”. *Scientific Reports* 2004;4:7541; DOI:10.1038/srep07541.
- 11) 森内茂, 堤正博, 斎藤公明. “自然放射線における空気吸収線量から実効線量当量への換算係数の評価, *保健物理* 1990;25:121-128.
- 12) Omori, Y., Wakamatsu, H., Sorimachi, A., Ishikawa, T. “Radiation survey on Fukushima Medical University premises about four years after the Fukushima nuclear disaster”. *Fukushima Journal of Medical Science* 2016;62:1-17.
- 13) Nishizawa, Y., Yoshida, M., Sanada, Y., Torii, T. “Distribution of the $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ratio around the Fukushima Daiichi nuclear power plant using an unmanned helicopter radiation monitoring system”. *Journal of Nuclear Science and Technology* 2016;53:468-474.
- 14) 床次 眞司. “新しいラドン線量換算係数を考える”. *保健物理* 2018;53:282-293.

Investigation of internal and external doses for the residents in Namie Town, Fukushima Prefecture

Shinji Tokonami¹, Ikuo Kahiwakura², Masahio Hosoda², Hirofumi Tazoe¹, Minoru Osanai², Hiromi Kudo², Yoshitaka Shiroma², Masaru Yamaguchi², Takakiyo Tsujiguchi², Ploykrathok Thamaborn¹, Takahito Suzuki¹, Yuki Tamakuma¹, Takashi Asano³, Annna Okano³, Yuki Morita³, Takao Narumi³, Naofumi Akata⁴, Kazuki Iwaoka⁵

Hirosaki University, Institute of Radiation Emergency Medicine¹,

Hirosaki University Graduate School of Health Sciences²,

Hirosaki University, School of Medicine³,

National Institute for Fusion Science⁴,

National Institutes for Quantum and Radiological Sciences and Technology⁵

Keywords :

Namie Town, dose estimation, external dose, internal dose, natural radiation, artificial radiation

Abstract

Namie Town, Fukushima Prefecture allowed the evacuees to return to their houses from March 2017. We will estimate internal and external doses for the residents of Namie Town from both radiocesium and natural radionuclides. Airborne radiocesium concentrations at five points are analyzed by HPGe detector to estimate internal doses. To estimate an internal dose by radiocesium in domestic water, we are collecting river water and sediment at five points (four points from 2018). Furthermore, indoor and outdoor radon concentrations are measured using a radon-thoron discriminative monitor (RADUET) to estimate internal doses by its inhalation. On the other hand, individual external doses for the residents are estimated using an integral pocket dosimeter (D-shuttle). A car-borne survey along the main road was carried out using a 3-in \times 3-in NaI(Tl) scintillation spectrometer to know the dose rate distribution in Namie Town. Ambient dose rates are measured using a 3-in \times 3-in NaI(Tl) scintillation spectrometer at the fixed measurement points in each 1 km to make a dose rate distribution map. The gamma-ray pulse height distributions are analyzed using a response matrix method to evaluate the dose rates for natural and artificial components.

1-5 農地残留核種に基づく事故初期の放射性ヨウ素水準の推定

藤原英司（農業・食品産業技術総合研究機構、上級研究員）

研究要旨

本研究では、福島県内の農地土壌に残留した長半減期ヨウ素同位体 (^{129}I) を指標として、東京電力福島第一原子力発電所事故当時の沈着 ^{131}I の水準を遡及的に推定する。平成 30 年度は、避難指示の対象範囲に属さない 12 地点を選定し、各地点における土壌中の ^{129}I および放射性セシウムの鉛直分布を調査した。事故直後の時点において、沈着した放射性ヨウ素の 9 割以上は深さ 0~5cm 範囲の表土に留まっていたとされるが、本研究の調査結果から ^{129}I は時間経過とともに下方へ移動しており、深さ 5cm 以下への移行分を無視できないことが明らかになった。そこで土壌の深さ 0~20cm 範囲の ^{129}I 濃度から ^{129}I 蓄積量を求め、それを ^{131}I 蓄積量へ換算する形で沈着 ^{131}I を評価することとした。本研究による ^{129}I 蓄積量データと、平成 23~25 年度に実施された過去の事業による ^{129}I 蓄積量データを比較したところ、正の相関が認められ、このことから事故後数年が経過しても ^{129}I による ^{131}I 沈着の推定は可能であると示された。さらに農地土壌における ^{129}I 鉛直分布の特徴に基づいて、原子力発電所事故に由来しない（バックグラウンド） ^{129}I の水準を把握した。その結果から、 ^{129}I の全蓄積量に対するバックグラウンド成分の寄与は、事故時に放射性核種の沈着が少なかった福島県の西部や南部で約 60%~約 80%、帰還困難区域で数%、他では数%~約 20%と見積もられた。

キーワード

放射性ヨウ素、土壌沈着、 ^{129}I

研究協力者

矢ヶ崎 泰海（福島県農業総合センター浜地域農業再生研究センター）

齋藤 隆（福島県農業総合センター浜地域農業再生研究センター）

I. 研究目的

東京電力福島第一原子力発電所（以下「福島原子力発電所」と略す）事故の発生から間もない時期においては、原子炉から放出され大気拡散した ^{131}I による公衆への被ばく影響が強く危惧されていた。このため、身体の放射線計測や大気拡散シミュレーションを手段として住民、特に福島県民の甲状腺等価線量の推定や健康影響評価が進められた。福島県民を対象とする調査結果は平成 24 年度原子力災害影響調査等事業（環境省）により取りまとめられ、 ^{131}I による内部被ばくは健康上問題になるものではないとする試算が報告された¹⁾。しかしこの報告では、線量の推定に多くの不確かさが含まれることも示されており、さらなる検証を要すると結論付けられている。このように事故由来 ^{131}I については、関係する医療従事者や研究者、行政機関の努力によって調査が着実に進展し、健康被害に繋がる要因ではないことが確かめられつつある一方、推定や評価の結果検証および、検証を踏まえた研究方法やデータの高度化が、現在の主な課題となっている。

以上の背景から、本研究では内部被ばく評価のための基礎資料の精緻化を目的として、福島原子力発電所事故時における ^{131}I の地表への沈着量や沈着物の $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を、長半減期のヨウ素同位体である ^{129}I に基づいて把握する。 ^{131}I の半減期は約 8 日と短いため事故の数ヶ月後には検出不可能な水準まで減少したので、環境 ^{131}I の測定例は放射性セシウムと比較すると格段に少なく、線量推定の結果検証や改良に使用可能な実測データは限定されている。そこで事故時に ^{131}I と同時に放出され現在も土壤中に残留している ^{129}I に着目し、その濃度を測定する。

平成 29 年度は、避難指示区域内の 12 地点で土壤中の ^{129}I および放射性セシウムの濃度の鉛直分布を調査した。重点的に調査した飯舘村長泥地区におけるデータでは、土壌深さ 0~20cm 範囲の ^{129}I 蓄積量に占める、深さ 0~5cm 範囲の表土部分への ^{129}I 分配割合は 51%、 ^{137}Cs については同 57%であり、 ^{129}I の 5 割程度および ^{137}Cs の 4 割程度が、事故による沈着後の 6 年間に 5cm 以深の下方へ移動したことが示された。原子力規制庁による土壌モニタリング情報の、飯舘村長泥地区における深さ 0~5cm 範囲の表土 ^{131}I 濃度の実測値に対し、本研究による同条件の ^{131}I 濃度推定値は約半分であり、ほぼ下方移行分に対応する形で過小評価となった。そこで、下方移行が起きず ^{129}I および ^{137}Cs が表土に保持され続けることを仮定し、0~5cm 範囲に沈着 ^{129}I の全てが分配されるとして計算したところ、 ^{131}I 濃度および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の推定値は実測値とほぼ合致することが確かめられた。なお以上の下方移行傾向は、飯舘村長泥地区に限らず認められた。平成 30 年度は、避難指示の対象範囲に属さない 10 地点で現地調査および土壌試料採取を行う計画とした。

II. 研究方法

原子力発電所付近およびその北西方向に広がる避難指示の対象範囲を除く、福島県内の広範囲で土壌試料を採取し、試料の放射性核種分析を進めた。得られた ^{129}I 蓄積量データについて、先行調査による結果と比較した。また原子力発電所事故以前の大気圏内核実験や核燃料再処理に由来する ^{129}I （バックグラウンド ^{129}I ）による、 ^{131}I 推定値への寄与の割合を計算した。

1. 土壌試料採取および試料調製

本研究では ^{129}I および放射性セシウムの測定に用いる土壌試料を、畑地や水田等の農地において採取する。農地は一般に数百 m^2 以上の範囲に渡り土地利用が均一で多くの場合は平坦地であり、また市街地や林地等と比較すると建築物や被覆物による影響が小さく、地域における放射性核種の沈着状況を代表する試料を得ることができる。茨城県における観測例では、福島原子力発電所事故由来の ^{131}I について、農地土壌における沈着量は近傍における大気降水量とほぼ同等であったことが示されている²⁾。また土壌試料は、土壌の表面付近だけではなく比較的深部も含めて採取することとする。従来この種の研究では地表部分の5cm深さまでの土壌のみ検討対象とされていたが、土壌の質や経過時間によっては5cm以深まで ^{129}I や放射性セシウムの移行があり得る。

平成30年度は、避難指示の対象外の地域で現地調査および土壌試料採取を進める計画であり、調査地を確保するため福島県内の各市町村に調査への協力を依頼し、さらに農業委員会や地権者を訪問して業務内容を説明した。その結果、9市町村に協力を承諾いただき、計12ヶ所の農地において30年11月までに現地調査を実施した(図II-1)。これら農地は事故時あるいは事故以前から休耕状態にあり、耕起にともなう土壌の攪乱は無い。農地内の調査地点は周縁部や畦道付近を避け、繁茂した植物が障害となり進入が困難な場合を除いて、なるべく中心部寄りに定めた。地点を確定後、地表に堆積する枯草や落葉、落枝等(リター)を30×30cm範囲で採取した。本研究による調査の対象は土壌であるが、 ^{129}I および放射性セシウムの一部が土壌から植生へ移行している可能性も考えられるので、今後の検討のため、このように植生試料も収集することとした。枯草等を採取後、幅・深さ・奥行きが各0.5m程度の土壌試坑を掘削した。この坑内の特定の壁面について厚さ5cm単位の複数の層を設定の上、地表から順次下方へ向かって深さ25~35cmまで層毎に土壌を採取した。採取にはステンレス製の円筒コア(全長5cm、容積100mL)を用い、一つの層につき0.5×0.5m程度の水平範囲から無作為に3点を選択しコアを打ち込んだ。これらコア内の土壌を混合して300mL相当量の土壌試料を得た。一つの層について採取を終了する度に、採取済みの層の0.5×0.5m程度の範囲を削って除去し、未採取の下層の表面が平坦になるように整えた。この際に、上層の土壌が下層へ混入しないよう細心の注意を払った。土壌を深さ毎に分け採取するため一般には、長さ20~30cm程度の金属円筒を鉛直方向に差し込んで柱状の土壌を採取後、深さ毎に切り分ける方法が多用される。しかし、そうした方法では円筒差し込み時の摩擦や振動によって上部の土壌の一部が下部へ混入する。また差し込み時に内容物が圧縮されるため、その後の深さ毎の分割は不正確である。本研究ではこうした問題を回避できるよう採取方法について考慮し、慎重に採取作業を進めた。

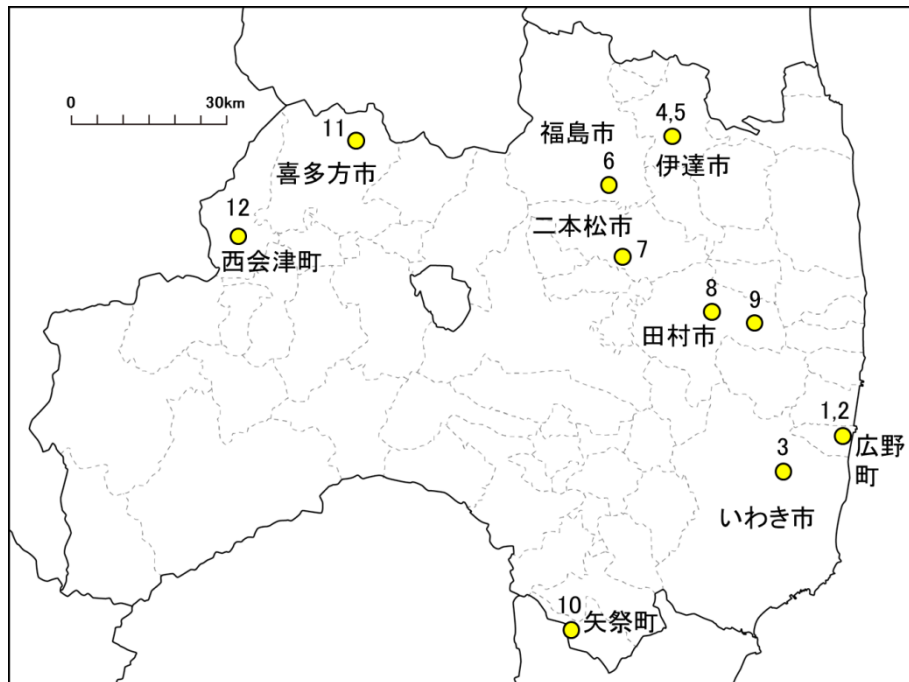


図 II-1 平成 30 年度の調査地（図中の番号は以後の図表の地点番号に対応）

採取した土壌試料は実験室へ持ち帰り、バットの底部に広げて自然乾燥させた。乾燥後に磁製乳鉢を用い土塊を砕いて、全量を目開き 2mm の円孔ふるいを通し風乾土壌試料とした。この試料の一部を 105℃乾燥による水分測定に供し、水分値、風乾土壌試料全重および採取体積（300mL）から土壌の仮比重を計算した。また風乾土壌試料から約 10 g を取り分けてメノウ乳鉢により微粉碎し ^{129}I 測定用とした。この微粉碎試料の一部を 105℃乾燥による水分測定に供して、 ^{129}I 測定データ換算用の水分値を得た。

2. 試料分析

放射性セシウム（ ^{134}Cs 、 ^{137}Cs ）測定のため、風乾土壌試料をプラスチック容器に充填しゲルマニウム半導体放射線検出器によるガンマ線分析に供した。測定時間は一律に 5,000 秒とした。 ^{134}Cs では 605keV、 ^{137}Cs では 662keV のガンマ線ピークから計測値を得て、計測誤差の 3 倍以上の計測値が得られた場合に検出と判断した。両核種の定量分析結果についてガンマ線の自己吸収を補正した。また ^{134}Cs についてサム効果を補正した。測定値は乾土重量あたり濃度として求めた。

一方、 ^{129}I 測定は加速器質量分析（AMS）により進めた。AMS 測定のため、試料からヨウ素を抽出しヨウ化銀の形で調製する必要がある。このヨウ素抽出には試料燃焼装置（三菱化学アナリテック QF-02）を使用した。微粉碎試料 0.5～2.5 g、同量の五酸化バナジウムおよびヨウ素担体（ヨウ素 5mg 相当量、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比 3×10^{-13} ）を、最高温度 900℃の条件で熱加水分解した。分解処理によりガス化したヨウ素をアルカリ液（水酸化カリウム 5%、亜硫酸カリウム 0.5%）に吸収させて回収し、その後、有機溶媒を用いる抽出-逆抽出法により精製ヨウ素を含む抽出液を得た。このヨウ素抽出液に硝酸銀水溶液を加え、ヨウ化銀の沈殿を回収した。 ^{129}I 測定のため、日本原子

力研究開発機構の施設供用利用制度により、同機構青森研究開発センター大湊施設のタンデトロ
ン AMS を使用した。測定値は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比として得られ、この測定値、ヨウ素担体の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$
原子数比および添加ヨウ素量から ^{129}I 濃度を計算した。さらに乾土重量あたり ^{129}I 濃度および事
故由来の放出物における $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 原子数比 (20.5)²⁾に基づいて、事故時の ^{131}I 濃度を推定した。

以上の手順により、土壌中の ^{129}I 、 ^{131}I および放射性セシウムの濃度データを得た。また、これ
ら核種の深さ 20cm までの土層毎の濃度および仮比重から、各調査地における土地面積あたり蓄積
量データを得た。なお、本研究における ^{131}I および放射性セシウムの放射能値の減衰補正基準は、
一律に原子炉停止時 (2011 年 3 月 11 日 15 時) とした。

3. 先行事例とのデータ比較

本研究の結果を検証するため、文部科学省および原子力規制庁が実施した事業「福島第一原子
力発電所事故に伴う放射性物質の長期的影響把握手法の確立 (平成 23~25 年)」による、 ^{129}I デー
タセット³⁾を使用した。このデータセットより、本研究の調査地点から 3km 以内の地点の ^{129}I 蓄
積量データを抽出し平均値をとり、本研究による地点毎の ^{129}I 蓄積量との対応関係を調べた。な
お 3km 以内に対照可能な地点が存在しない場合、その地点データは比較から除外することとした。
さらに、農地土壌の特徴を利用するバックグラウンド ^{129}I 推定方法²⁾を適用し、各地点における
 ^{129}I 蓄積量へのバックグラウンド成分の寄与率を計算した。一定の係数 ($^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 原子数比) を参
照して ^{129}I を ^{131}I へ換算するので、この寄与率は ^{131}I 蓄積量推定値にもそのまま当てはまる。

(倫理面への配慮)

本研究では遺伝子組換え実験や、生命倫理に係る実験 (動物や人を対象とする実験) を実施し
なかった。研究を進めるにあたり、法令を遵守し倫理面の問題に十分配慮した。

III. 研究結果

本研究における調査結果の整理および検討の進め方として、まず土壌中の放射性セシウム (^{134}Cs 、 ^{137}Cs) および ^{129}I の濃度データを濃度鉛直プロファイルとして整理し、これら核種の土壌中における分布状態を把握した。次に ^{129}I の濃度データ等から計算した ^{129}I 蓄積量を過去の事業による ^{129}I 蓄積量と比較し、整合性を確認した。最後に、農地土壌の特徴を利用するバックグラウンド ^{129}I 推定方法²⁾の適用結果について検討し、福島原子力発電所事故に由来しない ^{129}I による寄与がどの程度あるかを明らかにした。

1. 土壌中の放射性セシウムおよび ^{129}I の鉛直分布

福島県内 12 地点における農地土壌中の放射性セシウムおよび ^{129}I の濃度鉛直プロファイルを図 III-1 に示した。福島原子力発電所事故以前の農地では、耕起される毎に土壌が攪拌され、地表から深さ 20cm 程度までの範囲（作土層）の土壌中 ^{129}I 濃度は均一化されていたと考えられる。このような状態で事故放出物の沈着があれば、土壌の表面部分にその影響が表れる一方、作土層の下方部分では沈着以前の ^{129}I 水準が維持される。農地としての利用が事故時、あるいはそれ以前に停止され、その後攪乱のない地点であれば、以上の分布傾向をもとに下方部分から作土層のバックグラウンド ^{129}I 水準を把握でき、それを差し引くことによって事故由来 ^{129}I の濃度や蓄積量を求めることができる²⁾。ただし、事故時の沈着 ^{129}I が時間の経過に伴って下方まで移動している可能性がある場合は、事故由来 ^{129}I とバックグラウンド ^{129}I の識別が困難になり本方法の適用は難しい。

今回の結果から、半数の地点では ^{134}Cs が深さ 15cm 以下まで分布しており、事故による影響が土壌の深部へ及んでいる可能性が示唆された。こうした地点について、バックグラウンド ^{129}I 水準の把握は不可能と判断された。広野町（地点番号 1）、田村市（同 8）、矢祭町（同 10）および喜多方市（同 11）では ^{134}Cs が 15cm 以深の土壌から検出されず、また土壌の下方部分で ^{129}I 濃度の変動が小さいことから、これら地点について、深さ 15~20cm 範囲の土壌の ^{129}I 濃度を作土層におけるバックグラウンド ^{129}I 水準と見なした。この水準が深さ 0~20cm 範囲において均一との前提で、表土中 ^{129}I 濃度および ^{129}I 蓄積量への、バックグラウンド ^{129}I による寄与の割合を計算した（表 III-1）。以上の 4 地点におけるバックグラウンド ^{129}I 濃度の平均は 0.13mBq/kg であり、これを事故放出物の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 原子数比(20.5)²⁾に基づいて ^{131}I 濃度へ換算すると 4.5kBq/kg となる。また ^{131}I 蓄積量推定値へのバックグラウンド ^{129}I の寄与は、平均 0.74MBq/m² となる。土壌中 ^{129}I から ^{131}I の濃度や沈着量を補正せず直接求めたとすると、バックグラウンド相当分が過剰に見積もられる形となる。事故時の ^{129}I 沈着量が小さいほど、バックグラウンド ^{129}I による寄与の割合は相対的に大きく表れると考えられ、矢祭町および喜多方市では全 ^{129}I 蓄積量の約 80%に達した。

一方 ^{137}Cs についても、過去の核実験等に由来するバックグラウンド成分の影響が考えられたため、 ^{129}I と同様の手順によりバックグラウンド ^{137}Cs による寄与の割合を計算した（表 III-2）。その結果、4 地点におけるバックグラウンド ^{137}Cs の濃度の平均は 11.9Bq/kg、蓄積量の平均は 1.8kBq/m² となった。 ^{137}Cs の全蓄積量に対するバックグラウンド成分の寄与の割合は ^{129}I の場合より小さく表れたが、喜多方市では約 70%と比較的に大きい値となっていた。

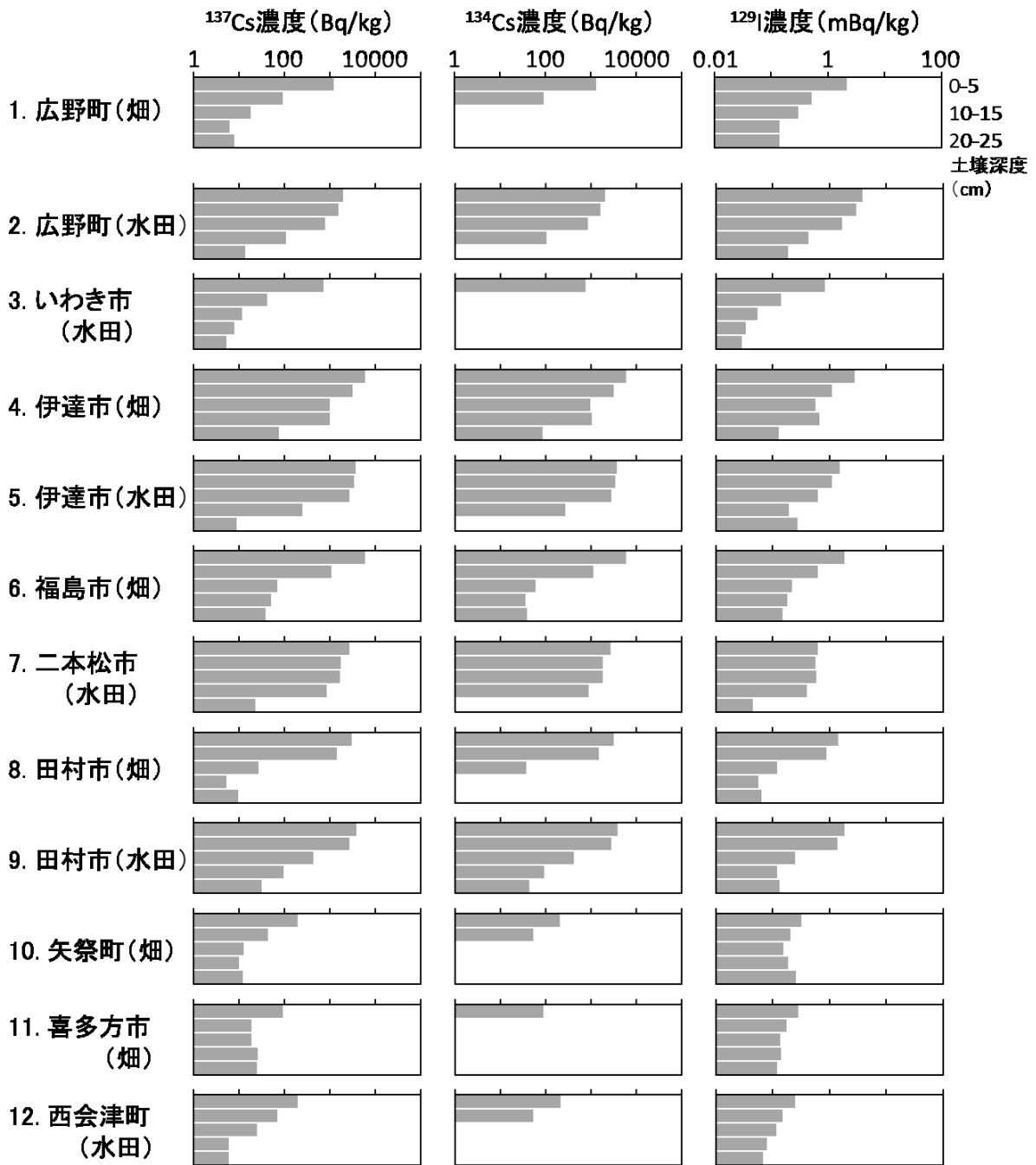


図 III-1 土壤中の放射性セシウムおよび ^{129}I の濃度鉛直分布
濃度は対数表示で、減衰補正基準は一律に 2011 年 3 月 11 日 15 時とした

表 III-1 土壤中 ^{129}I の濃度および蓄積量へのバックグラウンド成分の寄与

調査地 (地点番号)	^{129}I 濃度 (mBq/kg)		^{129}I 蓄積量 (mBq/m ²)		バックグラウンド ^{129}I 寄与率	
	表土 (深さ0~5cm)	バックグラウンド値 (深さ15~20cm)	全量 (深さ0~20cm)	バックグラウンド 相当量	表土濃度	蓄積量
広野町(1)	2.16	0.14	149	29	6.5%	19.3%
田村市(8)	1.44	0.06	113	13	3.9%	11.2%
矢祭町(10)	0.32	0.18	31	26	57.2%	83.5%
喜多方市(11)	0.28	0.14	22	17	50.3%	79.7%
平均		0.13		21		
		^{131}I 換算値として 4.5kBq/kg		^{131}I 換算値として 0.74MBq/m ²		

^{131}I 換算値の減衰補正基準は 2011 年 3 月 11 日 15 時とした

表 III-2 土壤中 ^{137}Cs の濃度および蓄積量へのバックグラウンド成分の寄与

調査地 (地点番号)	^{137}Cs 濃度 (Bq/kg)		^{137}Cs 蓄積量 (kBq/m ²)		バックグラウンド ^{137}Cs 寄与率	
	表土 (深さ0~5cm)	バックグラウンド (深さ15~20cm)	全量 (深さ0~20cm)	バックグラウンド 相当量	表土濃度	蓄積量
広野町(1)	1241	6.3	63	1.3	0.5%	2.0%
田村市(8)	3044	5.3	196	1.2	0.2%	0.6%
矢祭町(10)	197	10.0	10	1.4	5.1%	14.3%
喜多方市(11)	93	26.2	4.4	3.2	28.2%	73.3%
平均		11.9		1.8		

減衰補正基準は一律に 2011 年 3 月 11 日 15 時とした

2. 先行事例との ^{129}I 蓄積量データ比較

本研究による平成 29 年度および 30 年度の調査から得られた ^{129}I 蓄積量データと、「福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の長期的影響把握手法の確立(平成 23~25 年)」事業による ^{129}I 蓄積量データの関係を図 III-2 に示した。ここでの本研究による ^{129}I 蓄積量データは、深さ 0~20cm 範囲の ^{129}I 濃度および土壌の仮比重から求めた値で、バックグラウンド ^{129}I の寄与は補正されていない。一方、過去の事業による ^{129}I 蓄積量データは、事故の数ヶ月後に採取された深さ 0~5cm 範囲の表土試料の ^{129}I 濃度から換算された値である。事故直後の時点では、沈着した放射性ヨウ素の 9 割以上が表土に留まっていたとされ⁴⁾、5cm 以深への ^{129}I の移行は小さかったと考えられる。また土壌中のバックグラウンド ^{129}I の鉛直分布は土地利用等の条件により変動すると考えられ、過去の調査において、調査地に蓄積されていたバックグラウンド ^{129}I のうち、どの程度が深さ 0~5cm 範囲へ分配されていたかは不明である。このように評価の条件は異なるが、以上 2 つの ^{129}I 蓄積量データは密接な関係を示し、線形の関係とした場合の相関係数は 0.83 であった。

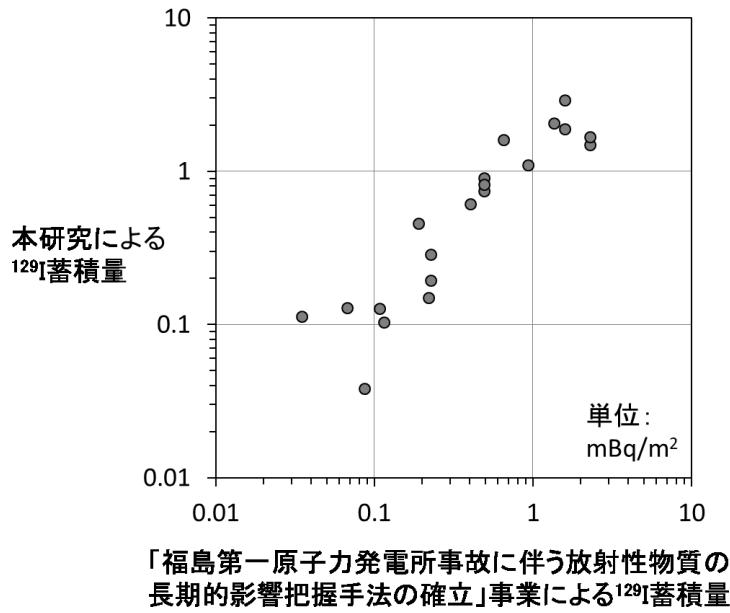


図 III-2 本研究および先行事例による ^{129}I 蓄積量データの関係

3. バックグラウンド成分寄与率および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比

本研究により求められた ^{129}I と ^{137}Cs の蓄積量、 ^{131}I の蓄積量推定値、バックグラウンド成分の寄与率、および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を表 III-3 に要約した。前述のように広野町（地点番号 1）、田村市（同 8）、矢祭町（同 10）および喜多方市（同 11）については、これら地点における ^{129}I および ^{137}Cs の濃度鉛直分布からバックグラウンド成分の水準を把握し、それによる全蓄積量への寄与率を計算した（表 III-1、表 III-2）。他の地点ではバックグラウンド水準が不明であるので、以上の 4 地点におけるバックグラウンド相当分蓄積量の平均値（ ^{129}I : $21\text{mBq}/\text{m}^2$ 、 ^{137}Cs : $1.8\text{kBq}/\text{m}^2$ ）を代表値とみなし、平均値を各地点の全蓄積量で除して寄与率を求めた。なお「II. 研究方法」で示したように、一定の換算係数を使用するため、バックグラウンド ^{129}I の寄与率は ^{131}I 蓄積量推定値にも適用される。 ^{129}I 蓄積量（および ^{131}I 蓄積量推定値）に対するバックグラウンド ^{129}I の寄与は、事故時に放射性核種の沈着が少なかった福島県の西部や南部で約 60%～約 80%、帰還困難区域で 1～3%、他では 5%～約 20%と見積もられた。 ^{137}Cs 蓄積量に対するバックグラウンド ^{137}Cs の寄与率も、福島県の西部や南部で大きい傾向となっていたが、 ^{129}I の場合に比べると全般に寄与は小さかった。

バックグラウンド成分、特にバックグラウンド ^{129}I は、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の計算にも影響する。この影響を軽減させるため、本研究では、バックグラウンド寄与分を全蓄積量から減算することにより補正し $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を求めた。福島原子力発電所事故由来 ^{129}I の蓄積量が小さい地点では、このバックグラウンド補正の有無による比の異なりが大きかった。補正した $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比について、福島原子力発電所の西南西～南方向の地点（大熊町、富岡町、広野町、いわき市）では 22～68 と、他より高い傾向が認められた。喜多方市の地点における $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、バックグラウンド補正を適用した場合でも 131 と例外的に高くなったが、この地点では福島原子力発電所事故による影響

が極めて微弱で、バックグラウンド成分に対し事故由来成分が微量であることから、補正後の比も正確ではない可能性がある。しかし会津地方においては土壌における $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の地点間差が大きく、一部の場所では比が高いとする報告例もある⁵⁾。

表 III-3 土壌中の放射性核種の蓄積量

調査地 (地点番号)	地目	蓄積量			バックグラウンド成分の 寄与率		$^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比 (バックグラウンド補正の有無)	
		^{129}I Bq/m ²	^{131}I 推定値 MBq/m ²	^{137}Cs MBq/m ²	^{129}I (^{131}I 推定値)	^{137}Cs	補正なし	両核種を補正
飯舘村	畑	0.74	25.7	1.8	2.9%	0.1%	14	14
飯舘村	畑	0.61	21.3	1.7	3.5%	0.1%	13	12
飯舘村	畑	0.90	31.4	2.6	2.4%	0.1%	12	12
飯舘村	畑	0.81	28.4	2.5	2.6%	0.1%	11	11
浪江町	畑	1.89	65.8	4.3	1.1%	0.04%	15	15
浪江町	水田	2.90	101.3	7.1	0.7%	0.03%	14	14
大熊町	草地	1.10	38.3	1.7	1.9%	0.1%	23	22
大熊町	水田	2.05	71.4	3.1	1.0%	0.1%	23	23
富岡町	畑	1.49	51.9	1.6	1.4%	0.1%	33	32
富岡町	畑	1.66	58.0	2.2	1.3%	0.1%	26	26
広野町(1)	畑	0.15	5.2	0.1	19.3%	2.0%	82	68
広野町(2)	水田	0.45	15.9	0.2	4.7%	0.8%	71	68
いわき市(3)	水田	0.04	1.3	0.03	55.6%	6.7%	50	24
伊達市(4)	畑	0.29	10.0	0.6	7.4%	0.3%	16	15
伊達市(5)	水田	0.19	6.7	0.6	11.0%	0.3%	12	10
福島市(6)	畑	0.13	4.4	0.3	16.7%	0.6%	15	12
二本松市(7)	水田	0.10	3.6	0.3	20.5%	0.5%	11	9
田村市(8)	畑	0.11	3.9	0.2	11.2%	0.6%	20	18
田村市(9)	水田	0.13	4.5	0.2	16.5%	0.7%	18	15
矢祭町(10)	畑	0.03	1.1	0.01	83.5%	14.3%	109	21
喜多方市(11)	畑	0.02	0.8	0.004	79.7%	73.3%	172	131
西会津町(12)	水田	0.03	0.9	0.01	82.2%	15.3%	77	16

- ・ 飯舘村、浪江町、大熊町および富岡町のデータは平成 29 年度研究の結果である
- ・ 減衰補正基準は一律に 2011 年 3 月 11 日 15 時とした
- ・ 蓄積量についてはバックグラウンドを補正しない土壌深さ 0~20cm 範囲の全量を示した
- ・ 広野町(1)、田村市(8)、矢祭町(10) および喜多方市(11) のバックグラウンド寄与率は、これら調査地における ^{129}I および ^{137}Cs の濃度鉛直分布より推定し、他の各地点については、以上の 4 地点におけるバックグラウンド蓄積量の平均値(表 III-1、表 III-2)を各地点の蓄積量で除して寄与率とした
- ・ $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比については、全蓄積量の比である無補正值および、バックグラウンド寄与分を全蓄積量から減算して求めた補正值を示した

IV. 考察

平成 30 年度は避難指示の対象範囲に属さない 12 地点を選定し、土壌中の ^{129}I および放射性セシウムの鉛直分布を調査した。その結果から前年度の避難指示区域における調査結果と同様の下方移行傾向が認められ、福島原子力発電所事故後の 7 年間に、深さ 5cm 以下の下方土壌へ事故由来 ^{129}I が移動したと示唆された。従って現状では深さ 0~5cm 範囲の表土中 ^{129}I のみからの ^{131}I 推定は困難であり、前年度と同様に、深さ 0~20cm 範囲から ^{129}I 蓄積量を求めることが妥当と判断した。本研究による ^{129}I 蓄積量データと先行事例による ^{129}I 蓄積量データの間に密接な関係が示されたことから、事故から 6~7 年経過後でも ^{129}I による ^{131}I の遡及推定は可能と認められた。本研究では内部被ばく評価のための基礎資料の精緻化として、バックグラウンド ^{129}I による影響を考慮しながら ^{131}I 沈着を遡及推定した。その結果、 ^{129}I 蓄積量（および ^{131}I 蓄積量推定値）に対するバックグラウンド ^{129}I の寄与は、事故時に放射性核種の沈着が少なかった福島県の西部や南部で約 60%~約 80%、帰還困難区域で 1~3%、他では 5%~約 20%と見積もられた。このことから、事故時に環境 ^{131}I の水準が高かった地域について、バックグラウンド ^{129}I による ^{131}I 遡及推定への影響は極めて小さいと判断した。

V. 結論

^{131}I による健康影響への対応に関しては、事故時における環境 ^{131}I の水準が高く、それによる被ばくが危惧となり得る地域について、十分信頼できる ^{131}I データを確保することが重要である。本研究では、 ^{129}I による環境 ^{131}I の遡及的な推定方法、および同方法に基づき得られる ^{131}I 推定値の妥当性について検討した。前年度および 30 年度の研究結果から、事故後なるべく早い時期に試料を得ておくことが望ましいが、数年が経過した後でも遡及推定は可能であることが示された。また避難指示区域等における ^{131}I 推定値へのバックグラウンド ^{129}I の影響は、無視できる程度であることが確かめられた。

VI. 次年度以降の計画

放射性セシウムは大気から地表への沈着後、速やかに粘土鉱物へ固定され、また ^{129}I は有機物中に捕捉されるため、これら核種は数年経過後も表土に留まり続けていると予想された。しかし本研究による調査結果から、土壌下方へ移行している実態が明らかになった。今後は、これら核種の下方移行メカニズムや移行に関係する要因の解明に取り組む。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

該当なし

VIII. 参考文献

- 1) 放射線医学総合研究所. 平成 24 年度原子力災害影響調査等事業「事故初期のヨウ素等短半減期による内部被ばくの線量評価調査」成果報告書. 2013 年. P87-88.
http://clearinghouse.main.jp/web/env_0016.pdf
- 2) Fujiwara H. Observation of radioactive iodine (^{131}I , ^{129}I) in cropland soil after the Fukushima nuclear accident. *Sci Total Environ* 2016;566-567:1432-1439.
- 3) 日本原子力研究開発機構. 放射性物質モニタリングデータの情報公開サイト「放射性物質の分布状況等調査によるヨウ素の放射能濃度分析」.
<https://emdb.jaea.go.jp/emdb/portals/b1020311/>
- 4) 日本原子力研究開発機構. 平成 24 年度放射能測定調査委託事業「福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の長期的影響把握手法の確立」成果報告書. 2013 年. P272-280.
<https://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/entry05.html>
- 5) 文部科学省. 「東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果:放射線量等分布マップの作成等に関する報告書(第1編)」. 2012 年. P65-72.
<https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5235/view.html>

Estimation of radioiodine deposition at the time of the Fukushima Daiichi NPP accident based on residual radionuclide in cropland soil

Hideshi Fujiwara

Institute for Agro-Environmental Sciences, NARO

Key words : radioiodine, deposition, ^{129}I

Abstract

Among the radionuclides emitted during a nuclear power plant (NPP) accident, radioiodine (^{131}I) is the most harmful because of the causal relationship between ^{131}I exposure and thyroid cancer in children. Therefore, the activity of ^{131}I in the environment and its impact on public health at the time of an accident must be investigated. However, detailed evaluation of environmental ^{131}I is usually difficult because of its short half-life, causing it to be barely detectable after several months. Therefore, the method of using long-lived radioactive iodine (^{129}I) to reconstruct ^{131}I deposition has been applied to understand the dispersion and distribution of ^{131}I released by an NPP accident. In this study, the deposition of ^{131}I derived from the Fukushima Daiichi NPP accident was estimated based on the ^{129}I concentration in cropland soil 6–7 years after the accident. Although ^{131}I and ^{129}I were deposited on the ground and considered to be distributed in the topmost soil (0–5 cm depth) at the time of the accident, some of the deposited ^{129}I appeared to have moved to deep soil beneath 5 cm over the years since the accident. Therefore, the accumulated amount of ^{129}I was calculated from the ^{129}I concentration at a soil depth of 0–20 cm. A good correlation was found between the accumulation of ^{129}I determined from this study and that determined from previous studies using topmost soil obtained in the months immediately following the accident. This result suggests that it is possible to estimate the accumulation of ^{131}I based on ^{129}I in soil several years after an accident. Furthermore, the accumulated background ^{129}I originating mainly from nuclear fuel reprocessing was estimated from ^{129}I concentration in the subsurface soil (15–20 cm depth). In the western and southern regions of the Fukushima Prefecture, where the impact of the accident was small, the accumulation of background ^{129}I corresponded to 60–80% of the total accumulation of ^{129}I in the soil. By contrast, in the evacuation zone near the Fukushima Daiichi NPP, the percentage was low.

1-6 大規模放射線災害に対応できる複数の生物学的指標を組み合わせた

線量推定システムの技術基盤構築

主任研究者：盛武敬（産業医科大学産業生態科学研究所放射線健康医学教室 准教授）

分担研究者：志村勉（国立保健医療科学院生活環境研究部 上席主任研究官）

分担研究者：中村麻子（茨城大学理学部 教授）

研究要旨

大規模放射線災害の発生時には、生物学的指標による線量推定(バイオドシメトリ)が不可欠である。対策の頑強性を保ち、線量推定結果への信頼性を高めるため、複数の手法を組み合わせた線量推定システムを確立する必要がある。

研究代表者と研究分担者は、被ばく後早期(数分～数日)の生体応答をそれぞれ異なる観点から研究してきた。本研究では、各々の研究をバイオドシメトリ手法に昇華させ、さらにそれらを組み合わせることによって、感度と精度が担保された、簡便性・迅速性・経済性に優れたバイオドシメトリシステムの技術基盤構築を目指す。具体的には、①血液抗酸化能、ミトコンドリア損傷、DNA 損傷、テロメア損傷について被ばく後の変化パターンとメカニズムを明らかにする ②これら生物学的指標を測定する簡便かつ迅速な手法の開発を行う ③これら生物学的指標を組み合わせたバイオドシメトリシステムを社会実装するための提案を行う。

本年度は、被ばく後の血液抗酸化能の変化パターンをマウス実験によって詳細に調べた。また、細胞実験により被ばく後のミトコンドリア損傷やテロメア損傷を定量した。さらに、DNA 損傷評価(γ H2AX 染色)を迅速化するデバイスの開発やミトコンドリア損傷を定量するシステムの構築を行った。

キーワード

放射線災害、バイオドシメトリ、レドックス、ミトコンドリア、DNA 損傷、テロメア

研究協力者

孫略（筑波大学医学医療系）

千田浩一（東北大学災害科学国際研究所）

河合秀彦（広島大学・大学院医歯薬保健学研究院）

鈴木孝明（群馬大学大学院理工学府知能機械創製部門）

I. 研究目的

放射線事故/災害発生時には、主に2つの被ばくパターンが考えられる。

1つは、一瞬にしてたくさんの放射線を浴びる急性被ばくである。1999年のJCO臨界事故の際には、急性被ばくにより2名が死亡した。近年、核や放射線(ダーティボム)がテロに使用される危険性が高まっており、予期せぬ放射線被ばくが様々な場面で発生する可能性がある。このような場合、被ばく線量を推定して緊急被ばく医療の必要性を判断し、治療優先順位を決める(トリアージする)必要がある。様々なトリアージ手法が報告されているが、物理的な手法(例えば、個人線量計やサーベイメーターの測定値から推定)の場合、被ばく時にそれらを携帯している必要があるため、多くの一般市民が被ばくするような大規模放射線災害には適応できない。そこで、被ばく後に、生物学的な痕跡から線量を推定するバイオドシメトリが必要となる。その際、個人差や環境誤差、測定誤差を排除するためには、複数の手法を組み合わせることも必要である。バイオドシメトリのゴールドスタンダードとして、細胞遺伝学的手法(リンパ球の染色体異常を検査する方法)が知られているが、この手法は熟練した手技が必要となる上、一度に処理できるサンプル数も少ない。多くの対象者に、短時間で、過度の侵襲を与えずに、1Gy以上の放射線被ばくの有無を検査する方法は、未だに確立していない¹⁾。

もう1つの被ばくパターンは、長期間かけて被ばくする慢性被ばくである。東京電力福島第一原発(以後福島原発)やチェルノブイリ原発の事故では、環境中に大量の放射性物質が飛散したことで慢性被ばくのリスクが上昇し、周辺住民が転居を余儀なくされた。現在、福島では除染が進み、徐々に帰還が進んでいる。幸いにも、福島原発事故では「今後も放射線被ばくによって何らかの疾病のリスクが高まることも可能性としては小さいと考えられる²⁾」との結論が得られつつあるようだが、住民の放射線被ばくへの不安は十分に解消されたとは言えない。それは、上記結論の大前提である被ばく線量の推定が、主にシミュレーションや空間線量率測定などの結果から求められたものであり、不確かさが大きいこと、県民健康調査「基本調査」以外の多くの推定で各個人の実際の被ばく線量を推定していないこと、などが考えられるからである。多くの慢性被ばく者は、将来的に何らかの疾病リスクが高まることを恐れている。ゆえに、各個人の線量評価と同時に、放射線誘発疾患の発症につながるバイオインディケーターや初期症状を同定することが重要である³⁾。

以上の2点を総合すると、急性被ばく、慢性被ばくの両方に対応できる生物学的線量推定が複数必要であるということが言える。そしてそれらは、多数の対象者へ対して実施できる、すなわち「簡便に実施でき、安価で再現性が高い」必要がある。さらに、そこから将来の放射線誘発疾患の発症リスクを算出できればなお良いと考える。

そこで本研究では、血液抗酸化能・ミトコンドリア損傷・DNA損傷・テロメア損傷を指標とした新規バイオドシメトリの実現可能性を動物実験により評価し、さらにこれらの手法を組み合わせるシステムの概念提唱を目指している。今年度(1年目)は、①動物実験または細胞実験により、個々のパラメータの線量推定精度に関して検討を行なった ②個々のパラメータを簡便かつ迅速に測定・評価するための検討を行なった ③複数の指標を組み合わせるシステム理論について考察を行なった。

II. 研究方法

本研究は 3 研究機関の共同研究であり、本年度は各機関で着目する指標について個別に検討を行なったため、その詳細を研究機関ごとに記載する。

1. 産業医科大学<バイオドシメトリ指標としての血液抗酸化能の有用性の検討>

① マウスの飼育

6 週齢のオスの C57BL/6J マウスを日本 SLC 社より購入した。マウスは 1 ケージに 4 匹、12 時間の明暗サイクル(明期 7:00-19:00)、自由摂食・給水瓶方式下で、アイソレータ内にて飼育した。ケージは床敷を使用し、週に 1 回滅菌洗浄ケージに交換した。餌はオリエンタル酵母工業(株)の MF をオートクレーブにて滅菌したものを使用した。水も餌同様、滅菌したものを使用した。アイソレータ内で 7 日間飼育した後、X 線照射した。

② X 線照射

マウスを小動物実験用簡易吸入麻酔装置(NARCOBIT-E ; 夏目製作所)に入れ、セボフルラン(富士フィルム和光純薬)を用いて麻酔した。ガス濃度は、導入 5%、維持 3%。眠らせたマウスを照射専用容器に入れ、X 線照射装置(MBR-1520R-3 ; 日立パワーソリューションズ)にて、線量率 0.69Gy/min, 焦点~テーブル面距離 550mm, 管電圧 150kV, 電流 20mA, フィルター : 0.2mmCu および 0.5mmAl の条件下で、回転させながら照射した。

③ i-Strap 法(正式名称 : i-Strap W.B.: 同仁グローバル社製)による血液抗酸化能測定

a) 採血

X 線照射後 30 分および 1, 2, 4, 6, 9, 16, 24, 50 日のマウスから採血した。(図 II-1)

照射時と同様に麻酔をして眠らせたマウスの右頬に、アニマルランセット(5MM ; goldenrod)を穿刺し、1.5mL のマイクロチューブ(BIO-BIK)に採血した。抗凝固剤として 2000U のヘパリンナトリウム(和光純薬) 20 μ L を使用し、採血後は氷中保存した。

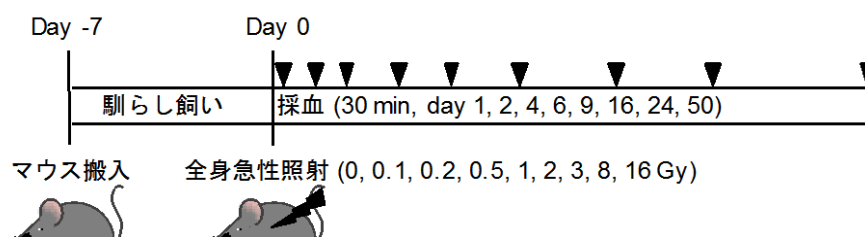


図 II-1 採血日程

b) i-Strap ステップ 1 《反応》

Reaction tube (キット同梱)に、常温に戻した Solution A(tert-butyl hydroperoxide (tBuOOH) ; キット同梱)を各 20 μ L 分注し、生理食塩水を 100 μ L 加えてボルテックスで攪拌したのち、サンプル(全血)を 100 μ L 加え、さらにボルテックスで攪拌した。そこへ、常温に戻した Solution B (2-diphenylphosphinoyl-2-methyl-3,4-dihydro-2H-pyrrole N-oxide (DPhPMPO) ; キット同梱)を 20 μ L ずつ、各チューブ 10 秒間隔で加え、ボルテックスで攪拌した。全てのチューブに添加後、さらにボル

テックスで攪拌した。1 本目のチューブへの SolutionB 添加時点から 30 分間、常温で静置した。

c) i-Strap ステップ 2 《抽出》

30 分間の静置後、Reaction tube にクロロホルム/メタノール(2 : 1)溶液を 1000 μ L ずつ、各チューブ 10 秒間隔で添加(揮発性溶媒のため、マイクロピペット内のエアを十分に置換してから、リバースピペッティング法にて添加)し、1 本目のチューブへのクロロホルム/メタノール溶液添加時点から 10 分間、ボルテックスで振とうした。10 分間の振とう後、予め 4 $^{\circ}$ C に冷却した冷却遠心機(KUBOTA)に Reaction tube をセットし、チューブ内の温度が 4 $^{\circ}$ C となるように 5 分間予冷却した。その後、4 $^{\circ}$ C 3000G で 10 分間遠心し、遠心終了冷却後、上層(水層)をマイクロピペットで吸引して廃棄した。続いて、下層(クロロホルム/メタノール層)をマイクロピペットで分取し、Dehydration tube(キット同梱。乾燥剤として、硫酸ナトリウム 0.3g が入っている)に入れて軽く振とうし、氷中で 15 分間冷却した後、-80 $^{\circ}$ C で保存した。

d) i-Strap ステップ 3 《ESR 測定》

解凍して常温に戻した各サンプル 160 μ L を石英フラットセル(RST-LC09F ; Flashpoint)に引き入れ、X バンド ESR 分光法(JES-TE200 ; 日本電子)によって測定した。ESR 条件は以下の通り。マイクロ波周波数 : 9.423719000GHz, マイクロ波出力 : 2.00000mW, フィールドセンター : 332.000mT, スweep幅 : 0.3000 mT, 掃引時間 : 4.0 分, 時定数 0.3 秒。また、DPhPMPO スピン付加物強度のシグナルは、左から 2 本目のマンガンマーカ(Mn²⁺)強度によって補正された。

e) i-Strap の抗酸化能測定原理に関する説明

tBuOOH と血液中のヘモグロビンが反応し、tBuOO \cdot (tert-butylperoxyl radicals)が生成される。tBuOO \cdot はさらに血中の物質と相互作用し、tBuO \cdot (tert-butylloxy radicals)や tBu \cdot (tert-butyl radicals)が発生する。これらのラジカルは、血液中の抗酸化剤または DPhPMPO と競合的に反応する。したがって、血液に含まれる抗酸化剤の量が少ない(血中抗酸化剤能力が低い)と、DPhPMPO によって捕捉されるラジカルが増え、高い ESR シグナルが観察される。

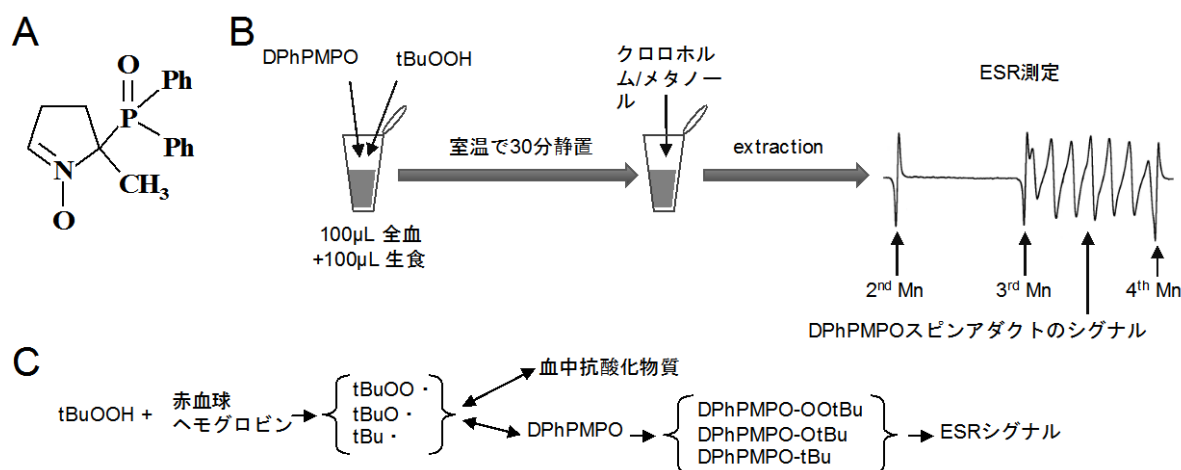


図 II -2 i-Strap の実験工程と原理 (A) DPhPMPO の化学構造式 (B)実験工程 (C)測定原理

④ 赤血球中のグルタチオン量の測定

マウスを小動物実験用簡易吸入麻酔装置に入れ、セボフルランを用いて麻酔した。ガス濃度は、

導入 5%, 維持 3%。眠らせたマウスの右頬にアニマルランセットを穿刺し、1.5mL のマイクロチューブに採血した。必要採血量は 50 μ L。抗凝固剤として 2000U のヘパリンナトリウム 20 μ L を使用し、採血後は水中保存した。採取した全血を、予め 4 $^{\circ}$ C に冷却した冷却遠心機にて、4 $^{\circ}$ C 1000G で 10 分間遠心した。遠心終了冷却後、上層部の血漿をマイクロピペットで吸引して廃棄した。新しい 1.5mL のマイクロチューブに 5% の 5-Sulfosalicylic Acid Dihydrate (SSA ; 東京化成工業) 200 μ L を入れ、下層部である赤血球を 50 μ L 加えて直ちにボルテックスで攪拌した。溶血していることを確認し、冷却遠心機にて、4 $^{\circ}$ C 3000G で 10 分間遠心した。遠心終了冷却後、上清をマイクロピペットで 100 μ L 吸引し、新しい 1.5mL のマイクロチューブに分取した。そこへ milliQ を 100 μ L 加えて攪拌し、-80 $^{\circ}$ C で保存、これをサンプルとした。

次に、GSSG/GSH Quantification kit (同仁化学研究所)を用いて、サンプル中の総グルタチオンと GSSG(酸化型グルタチオン)を定量し、その差から GSH(還元型グルタチオン)量を求めた。具体的手順は次の通り。解凍した保存サンプルを milliQ で 10 倍希釈し、96well プレート (FALCON) に 40 μ L ずつ、各 2well 入れ、一方を総グルタチオン用、もう一方を GSSG 用とした。GSSG 用の well にはのみ Masking solution (キット同梱) 1 μ L を添加したのち、全ての well に Buffer solution (キット同梱) 60 μ L を加え、37 $^{\circ}$ C で 1 時間インキュベートした。その後、全ての well に Substrate working solution (キット同梱) 60 μ L を加え、続けて Enzyme/coenzyme working solution (キット同梱) 60 μ L を加えた。室温にて 10 分間静置したのち、マイクロプレートリーダー (Varioskan LUX ; Thermo Fisher) で 412nm のフィルターを使い、それぞれの吸光度を測定した。測定後、標準曲線によって吸光度から濃度に変換し、GSH 量を以下の式により求めた。:

$$\text{GSH 量} = \text{総グルタチオン量} - (\text{GSSG 量} \times 2)$$

⑤ 赤血球中のグルタチオンペルオキシダーゼ (GPx) 活性の測定

0, 1, 3Gy を全身照射したマウスに、2 日後、小動物実験用簡易吸入麻酔装置にてセボフルランを用いて麻酔した。ガス濃度は、導入 5%, 維持 3%。2000U のヘパリンナトリウム 20 μ L が入った 1mL シリンジ (26G \times 1/2", TERUMO) で心臓採血し、1.5mL のマイクロチューブに血液を回収した。採血後は、水中保存。採取した全血を、予め 4 $^{\circ}$ C に冷却した冷却遠心機にて、4 $^{\circ}$ C 1000G で 10 分間遠心した。遠心終了冷却後、上層部の血漿をマイクロピペットで吸引して廃棄、赤血球のみを回収した。回収した赤血球 10 μ L に milliQ 40 μ L を加えてボルテックスで攪拌したのち、Assay buffer (キット同梱) で 100 倍希釈し、-80 $^{\circ}$ C で保存、これをサンプルとした。

試薬および測定サンプルの調製にはグルタチオンペルオキシダーゼ (GPx) 測定キット (日研ザイル株式会社 日本老化制御研究所) を使用し、測定にはマイクロプレートリーダーを使用した。詳細は次の通り。96well プレートに、解凍したサンプル 50 μ L/well または Assay buffer (キット同梱) 50 μ L/well を入れた。次に、NADPH 試薬 (キット同梱) 1 本を NADPH 溶解液 (キット同梱) 6mL で溶解し、すべての well に 50 μ L/well 入れた。続いて、Assay buffer で 10,403 倍希釈した H₂O₂ 試薬 (キット同梱) を 50 μ L/well 入れ、直ちに 340nm のフィルターで吸光度を測定 (カイネティックループ 20 秒 \times 10 回) した。経時的に取得した吸光度をプロットして回帰直線を作成し、その傾きを GPx 活性とした。

⑥ 赤血球中のグルタチオンレダクターゼ(GR)活性の測定

0, 1, 3Gy を全身照射したマウスに、2 日後、小動物実験用簡易吸入麻酔装置にてセボフルランを用いて麻酔した。ガス濃度は、導入 5%, 維持 3%。2000U のヘパリンナトリウム 20 μ L が入った 1mL シリンジで心臓採血し、1.5mL のマイクロチューブに血液を回収した。採血後は、水中保存。採取した全血を、予め 4 $^{\circ}$ C に冷却した冷却遠心機にて、4 $^{\circ}$ C 1000G で 10 分間遠心した。遠心終了冷却後、上層部の血漿をマイクロピペットで吸引して廃棄、赤血球のみを回収した。回収した赤血球 250 μ L に冷却した milliQ 1mL を加えてボルテックスで攪拌し、4 $^{\circ}$ C 10000xg で 10 分間遠心したのち、マイクロピペットを用いて上清を回収し、-80 $^{\circ}$ C で保存、これをサンプルとした。

試薬および測定サンプルの調製には Glutathione Reductase Assay Kit (CELL BIOLABS, INC.) を使用し、測定にはマイクロプレートリーダーを使用した。詳細は次の通り。まず、5 \times Assay Buffer (キット同梱) を milli Q で 5 倍希釈し、1 \times Assay Buffer を調製した。96well プレートに、1 \times Assay Buffer で 50 倍希釈した NADPH (キット同梱) 25 μ L/well を入れた後、調製したスタンダード (キット同梱) 100 μ L/well または 1 \times Assay Buffer で 70 倍希釈したサンプル 100 μ L/well を入れた。続いて、すべての well に、1 \times Assay Buffer で 15 倍希釈した Chromogen (キット同梱) 50 μ L/well と、Glutathione Disulfide (GSSG) (キット同梱) 25 μ L/well を加え、直ちに 405nm のフィルターで吸光度を測定(カインティックループ 1 分 \times 10 回)した。経時的に取得した吸光度をプロットして回帰直線を作成し、傾きを GR 活性とした。

⑦ 赤血球のスーパーオキシドディスムターゼ(SOD)様活性の測定

0, 1, 3Gy を全身照射したマウスに、2 日後、小動物実験用簡易吸入麻酔装置にてセボフルランを用いて麻酔した。ガス濃度は、導入 5%, 維持 3%。2000U のヘパリンナトリウム 20 μ L が入った 1mL シリンジで心臓採血し、1.5mL のマイクロチューブに血液を回収した。採血後は、水中保存。採取した全血を、予め 4 $^{\circ}$ C に冷却した冷却遠心機にて、4 $^{\circ}$ C 1000G で 10 分間遠心した。遠心終了冷却後、上層部の血漿をマイクロピペットで吸引して廃棄、赤血球のみを回収した。回収した赤血球 50 μ L に milliQ 1mL を加えてボルテックスで攪拌したのち、エタノール 250 μ L とクロロホルム 150 μ L を加え、さらに 15 分間ボルテックスで振とうした。それを 4 $^{\circ}$ C 600xg で 10 分間遠心し、マイクロピペットを用いて水/エタノール層を 50 μ L 吸引し、1.5mL のマイクロチューブに回収した。これに milliQ 350 μ L を加えて希釈し、-80 $^{\circ}$ C で保存、これをサンプルとした。

試薬および測定サンプルの調製には、SOD Assay Kit-WST (同仁化学研究所) を使用した。詳細は次の通り。96well プレートに、Dilution buffer (キット同梱) で 5 倍希釈したサンプル 20 μ L/well または milliQ 20 μ L/well を入れた (sample-well ①, ② / milliQ-well ①, ②) 後、すべての well に、Buffer solution (キット同梱) で 20 倍希釈した WST solution (キット同梱) 200 μ L/well を入れた。次に、sample-well ① および milliQ-well ① には Dilution buffer (キット同梱) 20 μ L/well を、sample-well ② および milliQ-well ② には Enzyme working solution (Enzyme solution (キット同梱) 24 μ L を Dilution buffer (キット同梱) 4mL で希釈) 20 μ L/well を入れた。10 分静置後、マイクロプレートリーダーにて、450nm のフィルターを使って吸光度を測定した。

⑧ 血球中の過酸化脂質の測定

マウスを小動物実験用簡易吸入麻酔装置に入れ、セボフルランを用いて麻酔した。ガス濃度は、導入 5%, 維持 3%。眠らせたマウスの右頬にアニマルランセットを穿刺し、1.5mL のマイクロ

チューブに採血した。必要採血量は 20 μ L。抗凝固剤として 2000U のヘパリンナトリウム 20 μ L を使用した。RPMI-1640(Wako) 0.5mL を加えてタッピングしたのち、Liperfluo(同仁化学研究所) 2 μ L を加え、37 $^{\circ}$ C で 30 分間インキュベートし、FACS 解析した。FACS 解析には、セルアナライザー (EC800 ; ソニー) を用いた。488nm@25mW の半導体レーザーにより励起して 535/30BP(FL3) フィルターを通過した蛍光量を測定し、10,000 個の細胞の平均蛍光強度により相対過酸化脂質量を求めた。

⑨ 化合物

アスコルビン酸(小林製薬)および N-アセチルシステイン(NAC ; LKT Laboratories)を食塩水に溶解した。トロロックス(東京化成工業)をジメチルスルホキシド(DMS ; 和光純薬)に溶解した。

⑩ 統計学的解析

各データ点について、平均および標準偏差(SD)を計算した。ウェルチの t 検定を使用し、グループ間の差の統計的有意性を分析した。また、ピアソンの相関係数検定を使用し、相関係数の有意性を分析した。P<0.05 の値は、両方の試験について統計的有意性を示すと考えられた。

ROC 曲線および AUC(Area Under ROC Curve)は、Graphpad Prism 7(エムデーエフ ; 日本国内販売代理店)を用いて計算した。

2. 国立保健医療科学院<バイオドシメトリ指標としてのミトコンドリア損傷の有用性の検討> 研究分担者(志村)の報告書を参照。
3. 茨城大学<バイオドシメトリ指標としての γ H2AX 染色とテロメア損傷の有用性の検討> 研究分担者(中村)の報告書を参照。

(倫理面への配慮)

本研究における動物実験は、産業医科大学の動物実験倫理委員会の許可を得て実施した(承認番号 AE-15009、研究課題名「放射線暴露後の血中抗酸化能変化およびそれに付随する影響に関する研究」)。

本研究におけるヒト由来リンパ球を利用した実験は、茨城大学生命倫理規定に基づいた申請書を作成し、審査委員会による承認を受けているものである(承認番号 150401、研究課題名「新規放射線誘発 DNA 損傷モニタリングシステムの開発」)。

III. 研究結果

産業医科大学<バイオドシメトリ指標としての血液抗酸化能の有用性の検討>

1. i-STrap の特性解析

まず、i-STrap の特性を評価した。i-STrap における ESR のシグナル強度は、反応系における DPhPMPO の量が増加すると増加し(図 III-1A)、血液/食塩水比が増加すると減少した(図 III-1B)。この結果は、i-STrap が、血液中の抗酸化剤または DPhPMPO と tert-ブチルヒドロペルオキシド (tBuOOH)誘導ラジカル(主に tBuOO・)との競合反応に基づいていることを示している。

次に、12 匹のマウスから採血し、i-STrap における ESR のシグナル強度と白血球数および赤血球数との相関関係を評価した。その結果、赤血球数が増加するにつれてシグナル強度が減少することを見出した(図 III-1C)。しかしながら、白血球数との間には相関が見られなかった(図 III-1C)。

さらに、2 匹のマウスから採取した血液を混合し、遠心分離によって血漿と赤血球を分取したのち、血漿と赤血球を任意の比率で再混合し、異なる数の赤血球を含む 12 個の再混合血液サンプルを作成した(図 III-1D)。これらのサンプルに対し i-STrap を実施したところ、赤血球数が増加するにつれてシグナル強度が減少することを見出した(図 III-1D)。この結果は、赤血球またはそれらの構成成分がシグナル強度に強く影響することを示唆していた。

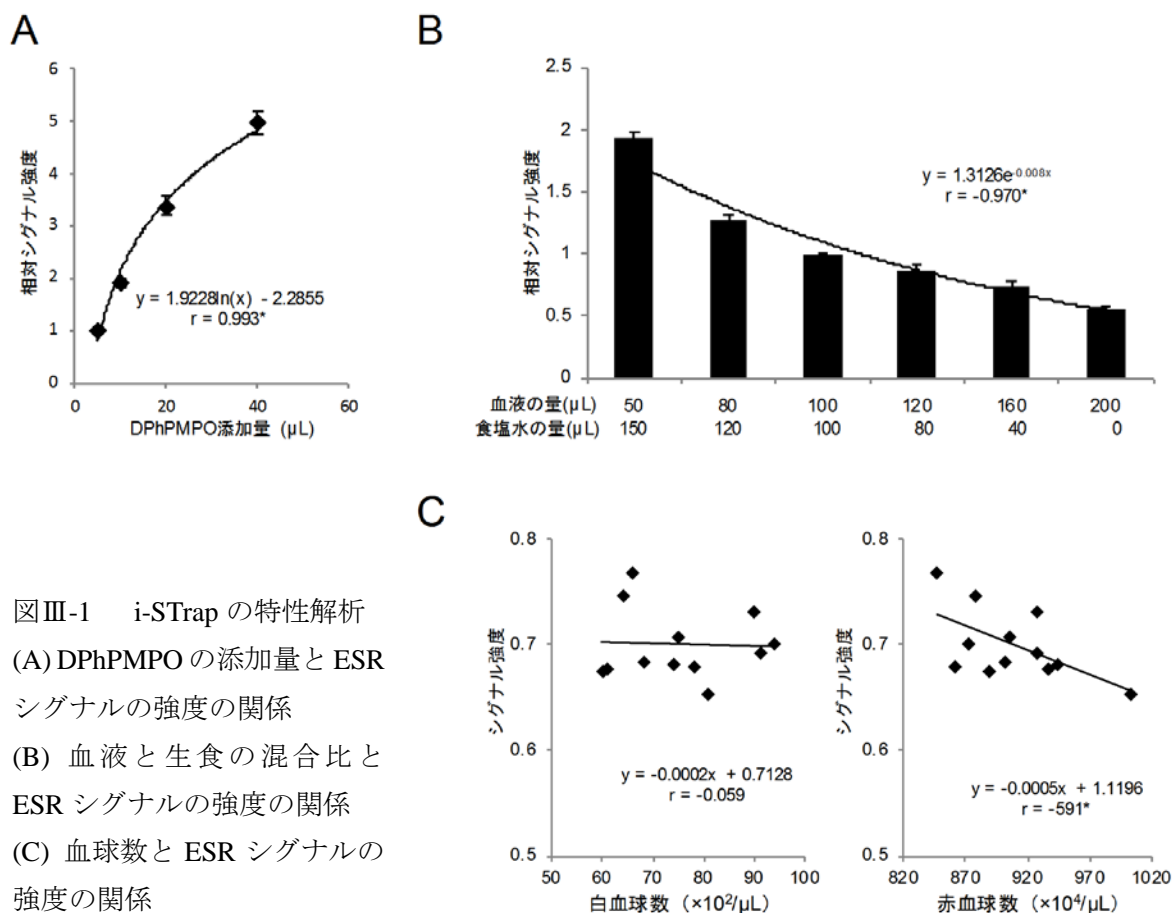
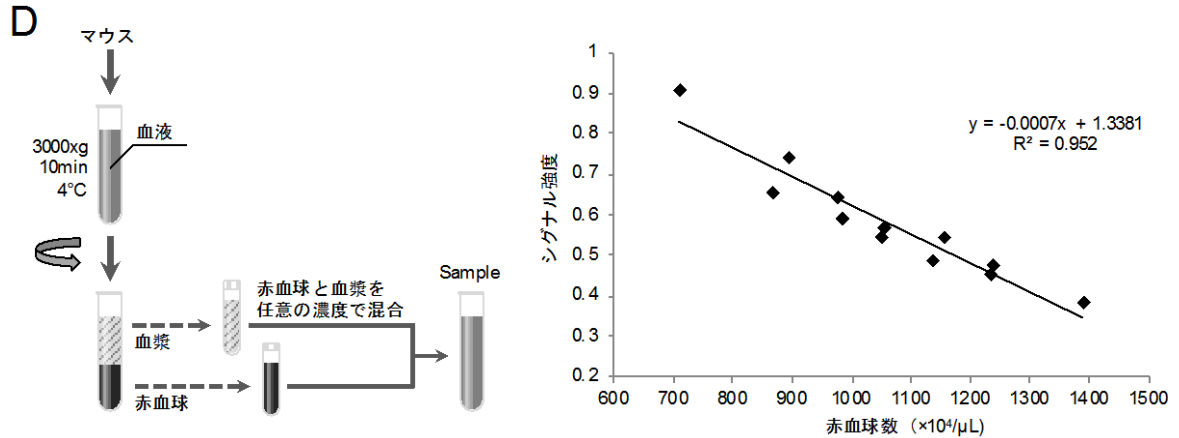


図 III-1 i-STrap の特性解析
(A) DPhPMPO の添加量と ESR シグナルの強度の関係
(B) 血液と生食の混合比と ESR シグナルの強度の関係
(C) 血球数と ESR シグナルの強度の関係

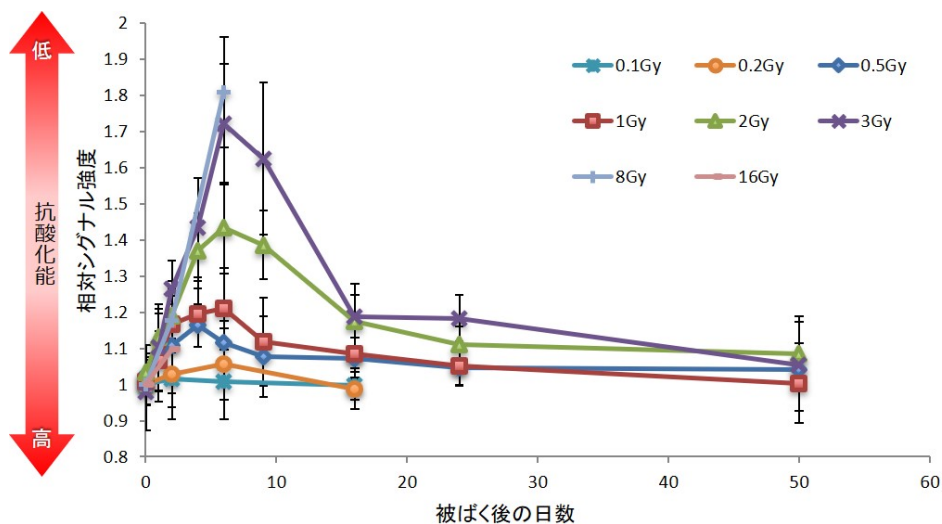


図Ⅲ-1 (つづき) i-Strap の特性解析 (D) 任意赤血球濃度での ESR シグナルの強度

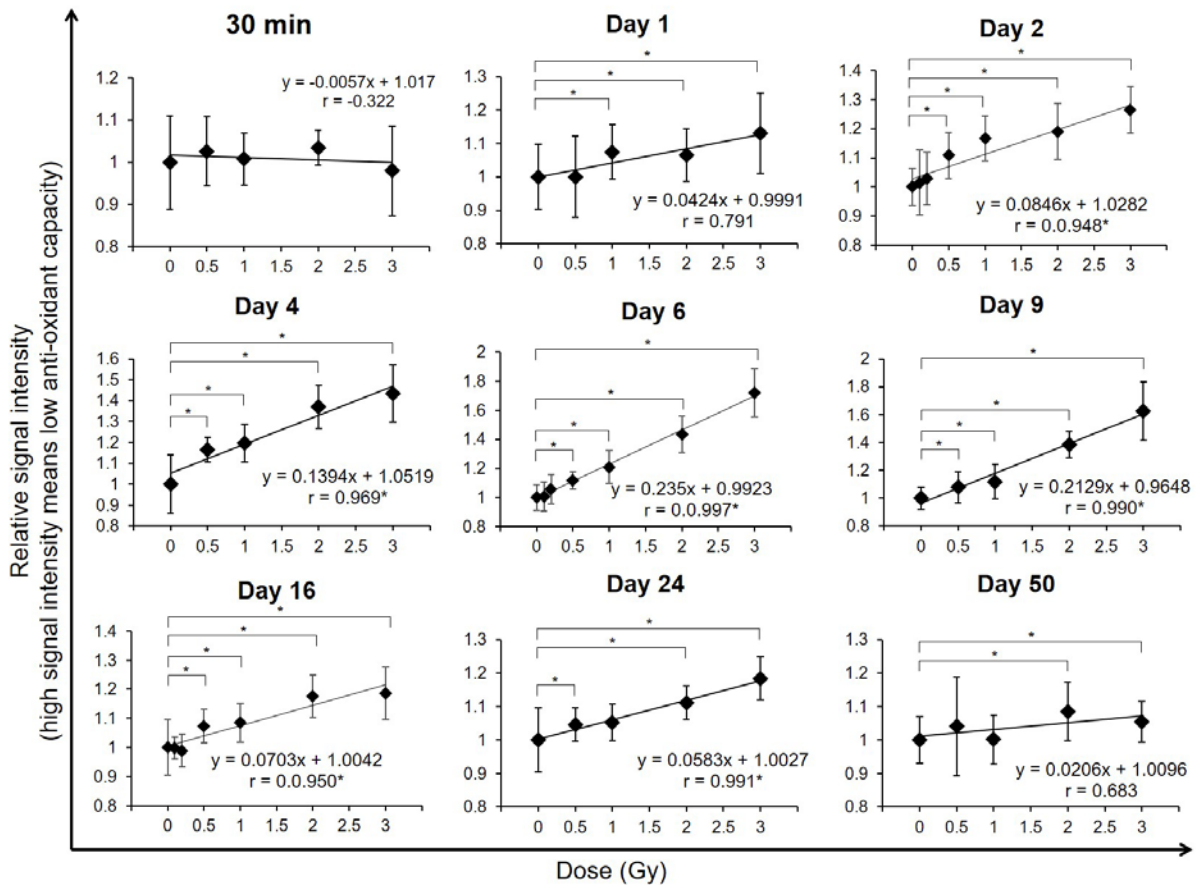
2. 急性被ばく後の血液抗酸化能の変化

マウスに 0.1~16 Gy を照射し、照射後 30 分~50 日の全血の抗酸化能を i-Strap によって調べた。その結果(図Ⅲ-2)、0.1 および 0.2 Gy の照射群では抗酸化能低下は認められなかった。0.5 および 1 Gy の照射群では照射直後~2 日目まで抗酸化能が低下し、そのまま 6 日目までこの低い抗酸化能を維持した後、徐々に回復し、24 日目でコントロール(非照射)レベルまで回復した。2 および 3 Gy の照射群では、6 日目まで抗酸化能の低下を示し、その後回復し始めたが、50 日目においてもコントロール(非照射)レベルには達しなかった。8 Gy の照射群では照射後 7~8 日目、16 Gy の照射群では照射後 4~5 日目にマウスが死亡したが、死亡前までの解析では、3 Gy 照射群と同じような変化を示した。

これらの結果により、0.3 Gy において、抗酸化能の低下量と照射線量とは非常に高い相関を示し(相関係数、 $r > 0.9$; $P < 0.05$)、血液抗酸化能の新規バイオバイオメトリーマーカーとしての使用の可能性を示唆した(図Ⅲ-3)。



図Ⅲ-2 被ばく後の血液抗酸化能の変化

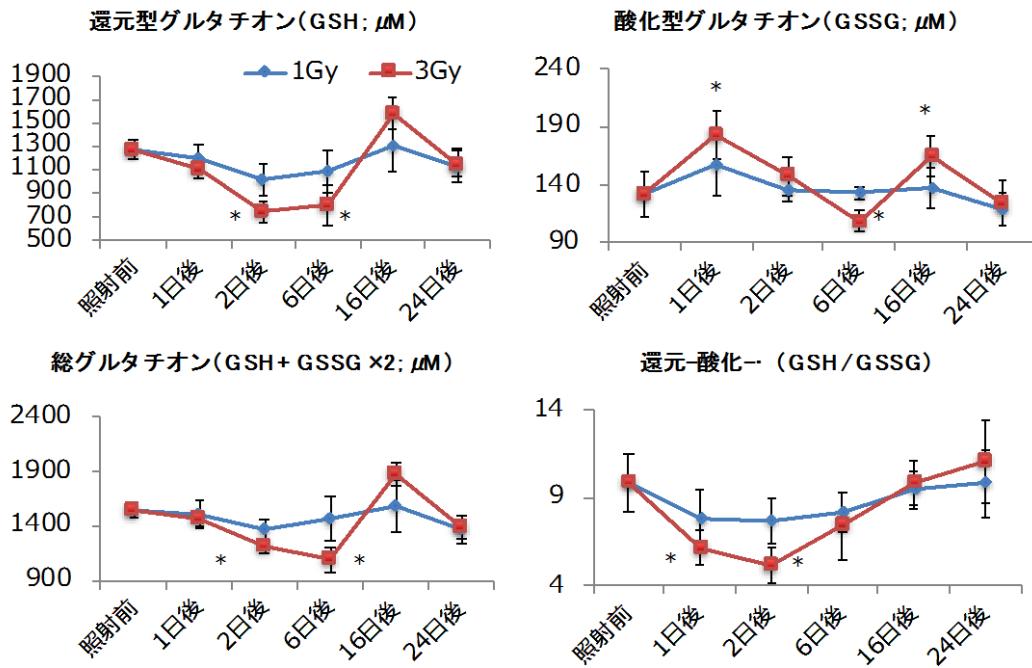


図Ⅲ-3 被ばく後の血液抗酸化能の変化 *: P<0.05 v.s. 0 Gy

3. 被ばく後の赤血球グルタチオンレベルの変化

GSHは、低分子量チオール化合物で、赤血球の中に最も豊富に含まれるレドックス関連分子である。本研究では、照射後の赤血球中の総グルタチオン量、GSH量、GSSG量およびGSH/GSSG比の変化を調べた(図Ⅲ-4)。GSH量：被ばく後2~6日をピークに線量依存的に低下した。GSSG量：3Gy被ばく群では被ばく後1日で上昇、6日で低下、16日で再上昇と波打つように変化した。総グルタチオン量：被ばく後6日をピークに線量依存的に低下し、3Gy被ばく群では被ばく後16日で増加した。GSH/GSSG比(細胞のレドックスバランスの指標の1つ)：被ばく後2日をピークに線量依存的に低下し、被ばく後16日には被ばく前のレベルに戻っていた。

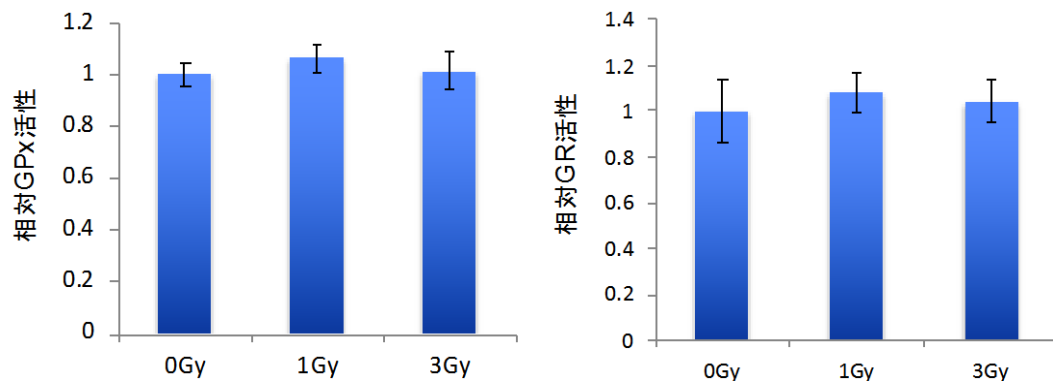
なお、本研究では酸化還元プローブを利用したグルタチオン測定を実施しており、高速液体クロマトグラフ(high performance liquid chromatography; HPLC)や質量分析装置(mass spectrometry; MS)による化合物の直接測定とは異なることに留意すべきである。



図III-4 被ばく後のグルタチオン量の変化 青線：1Gy群 赤線：3Gy群 *: P<0.05 v.s. 0 Gy

4. 被ばく後の赤血球 GPx および GR 活性の変化

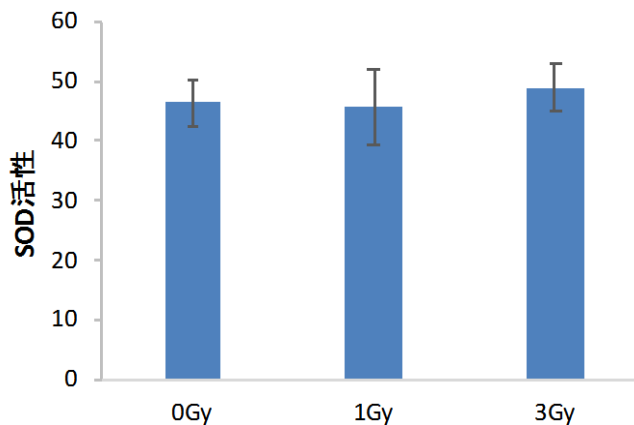
GSHは、活性中心にセレンを有する酵素 グルタチオンペルオキシダーゼ(glutathione peroxidase: GPx)とともに、過酸化水素(H_2O_2)や過酸化脂質(LOOH)を還元し、自身はGSSGへと酸化される。一方、GSSGは、グルタチオンレダクターゼ(glutathione reductase: GR)という酵素と還元型ニコチンアミドアデニンジヌクレオチドリン酸(NADPH)の存在下で、GSHへと還元される。つまり、GPxとGRの両酵素は、GSHとGSSGの相互変換において重要な役割を示す。本研究では、被ばく後の赤血球グルタチオン低下のメカニズムを明らかにすることを目的として、この2つの酵素活性の測定を行なった。その結果、GPx活性、GR活性ともに、被ばく後2日目に採血した赤血球中では変化していなかった(図III-5)。この「被ばく後2日目」という、極めて顕著なGSH量の低下が観察されるタイミングであるにも関わらず、である。



図III-5 被ばく2日後の赤血球GPx活性とGR活性 *: P<0.05 v.s. 0 Gy

5. 被ばく後の赤血球 SOD 様活性の変化

SOD は、活性酸素の一種であるスーパーオキシド(O₂⁻)を特異的に消去する酵素であり、活性中心と局在が異なる 3 種類の存在が知られている。本研究では、被ばく後の赤血球のスーパーオキシド消去活性(SOD 様活性)を調べた。その結果、被ばく後 2 日目に採血した赤血球では、非照射群と比較して、SOD 様活性に変化がないことが明らかとなった(図Ⅲ-6)。



図Ⅲ-6 被ばく 2 日後の赤血球 SOD 活性

*: P<0.05 v.s. 0 Gy

6. 被ばく後の血球中の過酸化脂質の量の変化

血球中の過酸化脂質の量を Liperfluo の蛍光強度を指標に評価した。その結果、被ばく後 2 日目に採血した血球中の過酸化脂質の量は、非照射群と比較して、変化がないことが明らかになった。

7. 全血抗酸化能測定または赤血球中グルタチオン量測定による被ばく推定精度の検討

上記 1~6 の結果により、「i-STrap による全血抗酸化能測定」または「GSSG/GSH Quantification Kit によるグルタチオン量測定」により、事後に被ばく線量を推定できることが示唆された。そこで、ROC 曲線による診断能の評価を実施し、次の結果(表Ⅲ-1 および表Ⅲ-2)を得た。i-STrap による推定では、1Gy の被ばく後 2~6 日で AUC が 0.95 程度あり、かなり高い精度で線量を推定できることがわかった。また、2Gy での比較では、i-STrap は既存の他のバイオドシメトリと同等の診断能を有していた(表Ⅲ-3)。

表Ⅲ-1 i-STrapの被ばくの診断能

AUC (vs 0Gy)	0.5Gy	1Gy	2Gy	3Gy
day0.04	0.617	0.537	0.690	0.532
day1	0.736	0.747	0.890	0.761
day2	0.849	0.945	0.946	0.993
day4	0.968	0.950	0.999	0.998
day6	0.896	0.948	0.998	1.000
day9	0.736	0.796	1.000	0.997
day16	0.808	0.829	0.969	0.959
day24	0.718	0.728	0.914	0.977
day50	0.600	0.521	0.795	0.742

表Ⅲ-2 グルタチオン還元酸化比の被ばくの診断能

AUC (vs 0Gy)	1Gy	3Gy
day1	0.803	0.973
day2	0.905	1.000
day6	0.734	0.791
day16	0.565	0.517
day24	0.531	0.616

表Ⅲ-3 既知のバイオドシメトリの診断能の被ばくの診断能

AUC (vs 0Gy)	2Gy
歯のEPR	0.997
Dicentric	0.998
qPCR	0.991

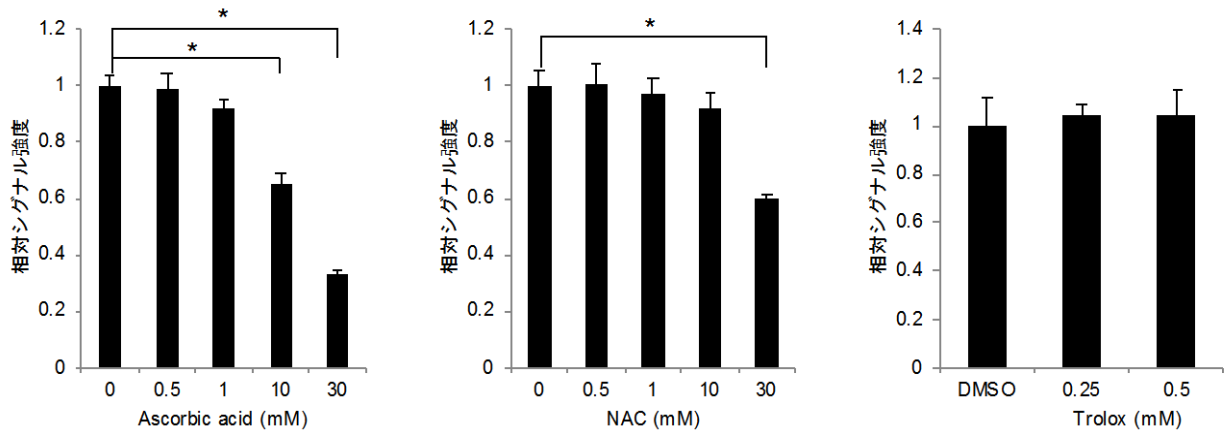
Radiation Protection Dosimetry (2016), Vol. 172,
No. 1-3, pp. 145-151より引用

8. i-STrap による全血抗酸化能に影響を与える交絡因子の検討

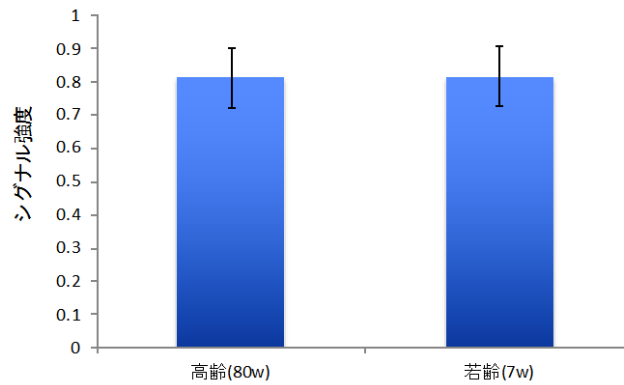
上記 1~6 の結果により、i-STrap による全血抗酸化能測定は、高い精度で 1Gy の被ばくの有無を検出することが明らかとなった。しかし、ヒトへの適応を考えた場合、様々な交絡因子が存在する可能性がある。ここでは、交絡因子となりそうなくつかの因子を評価した。

まず、抗酸化物質の存在が i-STrap の結果に与える影響を検討した。アスコルビン酸、NAC、トロロックスを任意の濃度で全血に配合し、i-STrap で影響の程度を評価した。その結果、これら 3 種類の抗酸化物質は、よほどの高濃度でない限り、i-STrap の結果に全く影響を与えないことが明らかとなった(図Ⅲ-7)(マウス血漿中の正常範囲:アスコルビン酸 40~60 μ M、システイン 20~30 μ M、ビタミン E 6~8 μ M)。なお、一部の病院で行われている、がんに対する高濃度ビタミン C 治療の直後では、血中のアスコルビン酸濃度は 16mM 程度となると報告がある⁴⁾。

次に、加齢による影響を検討するため、8 週齢のマウスと 80 週齢のマウスの i-STrap の結果を比較したところ、有意差はなかった(図Ⅲ-8)。



図III-7 抗酸化物質(アスコルビン酸、NAC、トロロックス)の存在が i-STrap の結果に与える影響
*: P<0.05 v.s. 0 Gy



図III-8 老化と血液抗酸化能の変化。*: P<0.05 v.s. 0 Gy

国立保健医療科学院<バイオドシメトリ指標としてのミトコンドリア損傷の有用性の検討>

これまでに、ミトコンドリア損傷は ①X 線急性照射 24 時間では 1Gy 以上で誘導される ②慢性照射や分割照射では急性照射と比べてより低い累積線量(0.4Gy)で誘発される ③DNA の損傷応答に重要な働きを持つ DNA 損傷のセンサーである ATM を欠損した細胞では、放射線誘発 parkin フォーカスは形成されない、ことを明らかにした。

また、既存の抗体が製造中止となったため、複数の抗体をスクリーニングし、より免疫染色に適した抗体を探索し、画像解析装置による parkin フォーカスの自動解析に着手した。

茨城大学<バイオドシメトリ指標としての γ H2AX 染色とテロメア損傷の有用性の検討>

新規 γ H2AX 検出システム(新規マイクロ流路チップ)を開発し、実験室レベルの検証実験を成功させた。現在、チップの知財化に向けて特許申請準備中である。

培養ヒトリンパ芽球細胞に放射線を照射後、テロメア FISH 法を用いて、テロメア長の変化について解析したところ、線量依存的なテロメア長の短縮が検出された。このことから、照射後経過時間に関わらず、事後に被ばく線量を知ることができる線量評価指標となりうる事が期待された。

IV. 考察

<被ばく後の血液抗酸化能の低下に関する生物学的考察>

生体内の酸化還元バランスは、好気性生物にとって非常に重要である。適切なレベルの活性酸素(ROS)は、細胞の生存や生理的機能において重要な役割を果たすが、ROSの増加や抗酸化システムの低下は酸化ストレスを引き起こし、様々な病気の原因になる⁵⁾。一方、放射線は、DNA成分の直接電離またはDNA付近のH₂Oの電離を引き起こし、その際に産生されるROSによりDNAに損傷を与える。さらに、放射線照射後はミトコンドリアのROS産生が増加し、酸化ストレスが増加する。この放射線誘発性の遅延性酸化ストレスは、アポトーシス、細胞老化、突然変異に対し、部分的に寄与する⁶⁻⁸⁾。しかし、「放射線が生体の酸化還元状態にどのような影響を与えるか」を調べた論文は、わずかである。

血液は、細胞成分(主に赤血球)と非細胞成分(血漿、血清)からなる。しかし、ほとんどの研究が非細胞成分にのみ焦点を当てており、赤血球に着目した研究は少ない。最近、柳田らの研究グループが、液体クロマトグラフィー質量分析(LC-MS)によってヒトの赤血球と血漿の代謝物を定量し、14種の年齢関連代謝物のうち、酸化還元関連代謝産物である酸化型グルタチオン、NAD⁺、NADP⁺を含む6種が、赤血球に豊富に含まれていることを示した(9)。この事は、赤血球の酸化還元状態が、健康状態および体調の重要なマーカーであることを示唆している。

そこで本研究では、i-Strapという新しいESRスピントラップ法を用い、放射線被ばく後の血液抗酸化能の変化をマウス実験により解析した。さらに、被ばく後の赤血球グルタチオン量、赤血球GPx活性、赤血球GR活性、赤血球SOD様活性、血球過酸化脂質量をマウス実験により調べた。

まず、i-Strapによる血液抗酸化能の解析により、我々は、0.5Gy以上の急性被ばく後に一過性の血液抗酸化能低下が観察されることを、世界で初めて明らかにした。また、0.5~3Gyでは線量依存的な抗酸化能低下、3Gy以上では3Gyと同等の抗酸化能低下が観察された。血液抗酸化能低下のピークは被ばく後1週間程度のところにあり、被ばく直後は血液抗酸化能低下が観察されなかった。つまり、被ばく後の血液抗酸化能低下は、放射線によって産生されたROSが寄与したものではなく、被ばくによる2次的な生物学的作用が引き起こしたものと考えられる。さらに、2Gy以上の被ばくでは、抗酸化能の低下が少なくとも50日以上持続することを発見した。放射線の晩期影響のほとんどが酸化ストレスと密生に関連していることから、これは非常に興味深い現象である¹⁰⁻¹²⁾。いくつかの先行研究では、ミトコンドリアの電子伝達系の機能増強とミトコンドリアのROS産生を介して、細胞の酸化ストレスが放射線照射後数時間~数日間誘導される、と報告されており¹³⁻¹⁴⁾、ROS増加のメカニズムの1つとして、DNA損傷のセンサー遺伝子であるATMの関与が指摘されている。しかし、被ばく線量が1~3Gyならば、DNA損傷応答は被ばく後24~48時間程度でほぼ完了するため、これらの先行研究は、我々が見出した現象を完全には説明できない。

次に我々は、哺乳動物における典型的な抗酸化剤であるグルタチオンに着目した。赤血球は血漿よりも約100倍高いレベルのグルタチオンを含んでおり¹⁵⁾、RBCグルタチオンレベルは、健康な成人よりも高齢者¹⁶⁾や鎌状赤血球症患者の方が低く¹⁵⁾、スキーマラソンの18時間後に増加する¹⁷⁾。これは、RBCグルタチオンレベルが、健康・老化・体調の重要な指標であることを示唆し

ている。そこで我々は、赤血球中の ①GSH が被ばく 1~2 日後をピークに低下すること ②総グルタチオン量は被ばく後 6 日をピークに低下すること ③還元型/酸化型比が被ばく後 1~2 日をピークに低下すること ④GPx 活性と GR 活性は変化しないことを明らかにした。「細胞はグルタチオンをそのまま取り込めない、つまり一旦分解して取り込み、細胞内で再合成する」、「赤血球は GSSG を排出するが、GSH は排出しない」と言われていることから、被ばく後、まずは酸化ストレス(放射線による直接的なものではなく、生体反応による 2 次的なもの)が発生し、GSH→GSSG への変換が促進され、GSSG 排出により GSH の枯渇が生じると考えられる。この現象をさらに理解するには、グルタチオンやその部品となる化合物の網羅的解析が必要となる。

<バイオドシメトリ手法として血液抗酸化能測定の利用に関する考察>

生物学的線量測定(バイオドシメトリ)は、大規模な放射線事故や原子力事故の際、事後に電離放射線被ばくを推定するために不可欠であり、適切な医療を受ける人(急性被ばくの場合は 1~2Gy 以上の被ばく者)を被ばく後 2~3 日以内に特定するためにも使用される¹⁸⁾。また、放射線の健康リスクに関する長期的な研究においても、重要な役割を果たしている¹⁹⁾。バイオドシメトリには、放射線に反応するいくつかのバイオマーカーが同定されており、蛍光 *in situ* ハイブリダイゼーション(ISH)によるリンパ球の染色体異常頻度の検査や、電子スピン共鳴(ESR)を用いた歯のエナメル質中のラジカルの測定は、バイオドシメトリのゴールドスタンダードと考えられている(19)。しかし、これらの手法は、熟練した手技が必要な上、結果が出るまでに時間がかかる、大量の対象者に対して適応できない、汎用性の極めて低い専用装置が必要、災害現場で実施できない、など多くの問題を抱えている。個人差を排除し、信頼性を高めるという観点からも、複数の手法を組み合わせ合わせた生物学的線量測定が適切である。

本研究では、マウス実験から得られた結果から、i-Strap と還元型/酸化型グルタチオン比をバイオドシメトリの指標として使用した場合の診断能を AUC(Area Under ROC Curve)により定量した。還元型/酸化型グルタチオン比によると、被ばく後 2 日が AUC のピークであったが、それでも 1Gy の被ばくで 0.905 であった。i-Strap による推定では、1Gy の被ばく後 2~6 日で AUC が 0.95 程度あり、かなり高い精度で線量を推定できることがわかった。また、2Gy での比較では、i-Strap は既存の他のバイオドシメトリと同等の診断能を有していた。

i-Strap の結果に影響を与える可能性が考えられる交絡因子(抗酸化剤摂取、老化)について解析したところ、抗酸化剤摂取(アスコルビン酸、NAC、トロロックス)の場合、かなりの高濃度(血中濃度の 100 倍程度)にならなければ、i-Strap の結果に影響を与えることはないことが明らかとなった。また、7 週の若齢マウスと 80 週の老齢マウスを比較したところ、i-Strap の結果に違いはなかった。ひとまずはこれら因子に大きく左右されないという結果が出たが、今後様々な可能性をマウスレベルで検討しなければならぬ。ヒトの場合、マウスとは比べものにならないほど個人差(遺伝的要因・環境的要因)が大きいいため、可能な限り早期に、ヒトサンプルでも実験する必要がある。

なお、i-Strap は ①溶血に影響されない ②サンプル量は全血 100 μ L(血液 4 滴)であり、指先採血で対応可能 ③技術開発なしに全行程全自動化が可能、な手法であり、実施上の優位性がある。

<複合バイオドシメトリの理論に関する考察>

研究分担者の志村と中村が実施した実験結果に関する考察は、各研究分担者の報告書をご参照いただきたい。ここでは、本研究班が目指す複数のバイオドシメトリを組み合わせた《複合バイオドシメトリ》の理論を考察する。

現在のバイオドシメトリのゴールドスタンダードと考えられている染色体異常法や歯のエナメル質のラジカルを計測する方法は、放射線の物理化学作用によってできた痕跡を評価している。それに対し、本研究で提案する指標(血液抗酸化能、ミトコンドリア損傷、DNA 損傷、テロメア損傷)のうち、血液抗酸化能とミトコンドリア損傷は、放射線被ばくによる生体反応を観測するものである。また、DNA 損傷は、その修復カインेटィクスを評価することにより、(DNA 修復能という)生体反応を観測することができる。これはすなわち、我々が本研究で提案する方法は、個人差に影響されやすく、被ばく「物理線量」の推定を目的とした場合、既存法より精度が劣ると考えられる。しかし、放射線による人の死亡閾線量は 1.5Gy 程度、全致死線量は 8Gy 程度と言われており、同じ線量でも影響の出方は人それぞれである。ゆえに、個人差を勘案した被ばく「影響」の推定が目的ならば、本研究で提案する指標の方が有用であると考えられる。

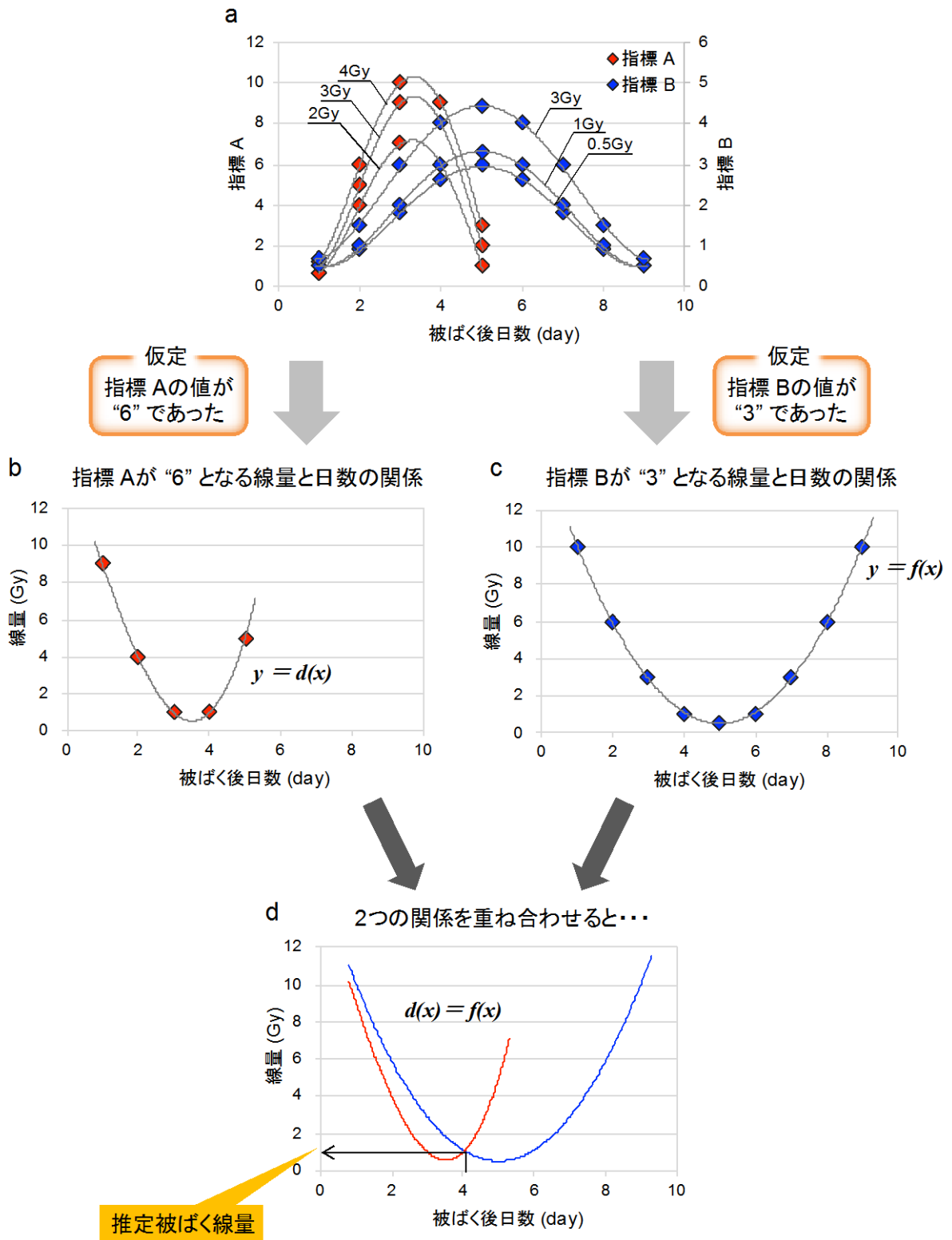
また、平成 29 年 3 月 31 日に国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所放射線リスク・防護研究基盤準備委員会が中心となってまとめた『放射線リスク・防護研究基盤準備委員会報告書』には、「放射線により誘導されると考えられる疾患について、将来的にその疾患の発症に繋がるバイオインディケーターや初期症状を同定することが重要である。」とある(3)。本研究で提案する指標は、がんの晩発影響である発がん、白内障、動脈硬化などとの関連が指摘されていることから、バイオインディケーターとしても有望な候補であると考えられる。

本研究で提案する指標は、被ばく後、測定のコイミングによって診断能が異なることが特徴である。言い換えれば、指標ごとに最適な測定のコイミングがあるということである。DNA 損傷は、被ばく直後にピークがあり、24h 前後までは十分な診断能がある。ミトコンドリア損傷は、被ばく後数時間～数日に十分な診断能が期待され、血液抗酸化能は、被ばく後 2 日～1 週間に十分な診断能がある。また、テロメア損傷は、半永久的な診断能が期待される。被ばくからの経過時間によりこれらの手法を使い分ける(評価する時の重み付けを変える)ことで、シームレスな線量推定が実現可能となる。さらに、複数の指標を組み合わせることは、検出精度を向上させることが可能(図IV-1)である。図IV-1 では 2 種類の指標の組み合わせを示しているが、3 種類 4 種類と指標を増やし、被ばくからの経過時間により評価の重みづけを行うことで、さらに精度が高くなる。

《複合バイオドシメトリ》の理論

線量と被ばく後日数に依存的な指標 A(例えば γ H2AX)と指標 B(例えば抗酸化能)があり(図IV-1a)、採取した血液データから指標 A=6、指標 B=3 という数値が得られたとすると、指標 A=6 を取り得る線量(y)と被ばく後日数(x)との関係は $y=d(x)$ 線上の全てとなる(図IV-1b)。同様に、指標 B=3 を取り得る線量(y)と被ばく後日数(x)との関係は $y=f(x)$ 線上の全てとなる(図IV-1c)。同じ人から同一日時に採血しているので、 $y=d(x)=f(x)$ となり、 $(x, y)=(\text{day1}, 11\text{Gy}), (\text{day4}, 1\text{Gy})$ という 2 つの解を取り得る(図IV-1d)。どちらがより適当であるかは他の状況を考慮して判断することになるが、例えば、被ばく後少なくとも 2 日は経過していることが明らかであれば、前者(day1, 11Gy)は除外できる。指標 A, B 以外にもさらに指標 C, D, E と多くの指標を投入することで、個人

差や測定ミスによる外れ値を除外でき、より確からしい線量と被ばく後日数を推定することが可能となる。



図IV-1 《複合バイオドシメトリ》の理論

しかし、指標を増やすほど、採血量が増えて侵襲性が増す。様々な装置が必要となったり、平

行して様々な処理が必要となったりして、実施困難性が高まる。また、複数メーカーの装置を組み合わせて1つのシステムとする場合、汎用性・更新性を担保するために、接続インターフェースの標準化が必要となる。そこで、我々が取り組んでいるのが、ものづくりによる実施実現性の向上である。例えば、中村らは、たった7 μ Lの全血から必要数のリンパ球を分離し、固定・染色・観察までの全行程を行える、 γ H2AX専用の染色チップを開発中である。このチップは、その仕様をわずかに変更するだけで、志村らが実施するミトコンドリア損傷の染色やテロメア損傷の染色をも実施できる可能性がある。また、志村らは、ミトコンドリア損傷の染色の自動計測を実現するため、プロトコルの最適化を実施しており、この成果は、 γ H2AXやテロメアのカウントにも応用できる可能性がある。本研究班が実施しているi-Strapは、実験室レベルでは完成された実験系であり、開発要素なしに全自動化ができる。しかし、全自動化装置を作るのには数億円もの費用がかかる。全自動化に向けて費用対効果を見出すための研究を行うのか、より安価な代替法を探す研究を行うのか、今後のi-Strap研究には2通りの戦略が考えられる。

いずれにしても、染色チップ・自動計測システム・i-Strapのすべてにおいて、実用化へ向けて、魔の川(Devil River)・死の谷(Valley of Death)・ダーウィンの海(Darwinian Sea)を超える必要がある。

V. 結論

本研究は、大規模放射線災害に対応できる、複数の生物学的指標を組み合わせた線量推定システムの技術基盤構築を目指している。これまでのバイオドシメトリ法とは異なり、放射線に対する生体反応を指標とすることで、被ばく線量の推定のみならず、被ばく影響の予測をも期待している。具体的には、血液抗酸化能・ミトコンドリア損傷・DNA損傷・テロメア損傷を指標とした新規バイオドシメトリの実現可能性を動物実験により評価し、さらに、これらの手法を組み合わせたシステムの概念提唱を目指している。

本年度(初年度)は、マウス実験を行い、急性被ばく後の血液抗酸化能の変化をi-Strapにより解析し、診断能をROC解析により定量した。また、交絡因子も評価した。さらに、細胞レベルで、ミトコンドリア損傷とテロメア損傷のバイオドシメトリ指標としての実現可能性を評価し、 γ H2AXの染色チップとミトコンドリア損傷自動解析システムの開発を行った。

VI. 次年度以降の計画

次年度以降は、それぞれの指標が慢性被ばくによってどの程度変化するかを明らかにし、ROC曲線解析により評価する。ミトコンドリア損傷とテロメア損傷は、細胞実験から順次動物実験へと移行させ、サンプルの共有により、組み合わせ理論を実践する。血液抗酸化能は、より簡便な測定法を探索する。 γ H2AXの染色チップとミトコンドリア損傷自動解析システムの開発に関しては、このまま継続する。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり

1) Tsutomu Shimura, Mao Koyama, Daiki Aono, Naoki Kunugita Epicatechin as a Promising Agent to Countermeasure Radiation Exposure by Mitigating Mitochondrial Damage in Human Fibroblasts and Mouse Hematopoietic Cells The FASEB J in press

B. 論文：査読なし

なし

C. 国内学会発表

1) 高橋健太, 田村隆大, 鈴木孝明, 中村麻子, PDMS マイクロ流路チップを用いた DNA 損傷評価システムの開発, 日本放射線影響学会第 61 回大会, Nov 7-9, 2018, 長崎

2) 孫略, 坪井康次, 盛武敬: スピントラップ法による血液抗酸化能測定を指標とした被ばく線量推定, 第 71 回日本酸化ストレス学会・第 18 回日本 NO 学会合同学術集会、京都ホテルオークラ、京都府京都市、2018 年 5 月 17 日～18 日

3) 孫略, 坪井康次, 盛武敬: 被ばくによる生体レドックス状態の変化、日本放射線影響学会第 61 回大会、長崎ブリックホール、長崎県長崎市、2018 年 11 月 7 日～9 日

D. 国際学会発表

1) Nakamura AJ, Monitoring DNA damage levels using γ -H2AX detection in vivo-future application of the assessment of biological effect of radiation exposure-. 3rd International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University, May 30-Jun 2, 2018, Ibaraki, Japan.

2) Kenta T. Development of novel DNA damage monitoring system using PDMS micro fluidic chip-. The 14th International Student Conference in Ibaraki, December 1 - 2, 2018, Ibaraki, Japan.

E. 著書

1) 孫略: ESR による放射線影響の測定電子スピンスイエンズ Vol.16, Autumn Issue (2018) 通号 31 号 p98-103 2018 年

F. 講演

1) 盛武敬, 孫略, 稲葉洋平, 千田浩一: 急性放射線被曝評価への iStrap 応用、第 57 回電子スピンスイエンズ学会年会、北海道大学学術交流会館、北海道札幌市、2018 年 11 月 1 日～3 日

2) 孫略: 血液抗酸化能を指標とした大規模放射線災害における被ばく線量推定法の開発、第 45 回日本放射線技術学会秋季学術大会、仙台国際センター、宮城県仙台市、2018 年 10 月 4 日～5 日

3) 盛武敬: 大規模放射線災害への備え: 複数の生物学的指標を組み合わせた線量推定システムの構築、第 2 回九州トランスレーショナル ESR 研究会、宮崎県延岡市日向市、2019 年 2 月 10 日～11 日

4) 孫略: 放射線と i-Strap、第 2 回九州トランスレーショナル ESR 研究会、宮崎県延岡市日向市、2019 年 2 月 10 日～11 日

G. 主催した研究集会

なし

H. 特許出願・取得

なし

I. その他

なし

VIII. 参考文献

- 1) 樺田尚樹、労災疾病臨床研究事業費補助金、緊急被ばく医療が必要とされるような事故発生時におけるトリアージのための線量評価手法の確立に関する研究、総合研究報告書、2018年3月
- 2) 東京電力福島第一原子力発電所事故に伴う住民の健康管理のあり方に関する専門家会議、中間とりまとめ、2014年12月
- 3) 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構放射線医学総合研究所放射線リスク・防護研究基盤準備委員会、放射線リスク・防護研究基盤準備委員会報告書、2017年3月31日
- 4) Casciari, J. J., et al. "Cytotoxicity of ascorbate, lipoic acid, and other antioxidants in hollow fibre in vitro tumours." *British journal of cancer* 84.11 (2001): 1544.
- 5) Karakawa, Tomohiro, et al. "Applicability of new spin trap agent, 2-diphenylphosphinoyl-2-methyl-3,4-dihydro-2H-pyrrole N-oxide, in biological system." *Biochemical and biophysical research communications* 370.1 (2008): 93-97.
- 6) Kobashigawa, Shinko, et al. "Ionizing radiation-induced cell death is partly caused by increase of mitochondrial reactive oxygen species in normal human fibroblast cells." *Radiation research* 183.4 (2015): 455-464.
- 7) Ogura, Aki, et al. "Redox regulation in radiation-induced cytochrome c release from mitochondria of human lung carcinoma A549 cells." *Cancer letters* 277.1 (2009): 64-71.
- 8) Tominaga, Hideyuki, et al. "Involvement of reactive oxygen species (ROS) in the induction of genetic instability by radiation." *Journal of radiation research* 45.2 (2004): 181-188.
- 9) Chaleckis, Romanas, et al. "Individual variability in human blood metabolites identifies age-related differences." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113.16 (2016): 4252-4259.
- 10) Furukawa, Shigetada, et al. "Increased oxidative stress in obesity and its impact on metabolic syndrome." *The Journal of clinical investigation* 114.12 (2017): 1752-1761.
- 11) Liu, Xiu - Fen, et al. "Nrf2 as a target for prevention of age - related and diabetic cataracts by against oxidative stress." *Aging cell* 16.5 (2017): 934-942.
- 12) Sosa, Venus, et al. "Oxidative stress and cancer: an overview." *Ageing research reviews* 12.1 (2013): 376-390.
- 13) Kobashigawa, Shinko, et al. "Relief of delayed oxidative stress by ascorbic acid can suppress radiation-

induced cellular senescence in mammalian fibroblast cells." *Mechanisms of ageing and development* 146 (2015): 65-71.

- 14) Yamamori, Tohru, et al. "Ionizing radiation induces mitochondrial reactive oxygen species production accompanied by upregulation of mitochondrial electron transport chain function and mitochondrial content under control of the cell cycle checkpoint." *Free Radical Biology and Medicine* 53.2 (2012): 260-270.
- 15) Morris, Claudia R., et al. "Erythrocyte glutamine depletion, altered redox environment, and pulmonary hypertension in sickle cell disease." *Blood* 111.1 (2008): 402-410.
- 16) Lang, Calvin A., et al. "Low blood glutathione levels in healthy aging adults." *The Journal of laboratory and clinical medicine* 120.5 (1992): 720-725.
- 17) Unt, Eve, et al. "Red blood cell and whole blood glutathione redox status in endurance-trained men following a ski marathon." *Journal of sports science & medicine* 7.3 (2008): 344.
- 18) Paul, Sunirmal, and Sally A. Amundson. "Development of gene expression signatures for practical radiation biodosimetry." *International Journal of Radiation Oncology* Biology* Physics* 71.4 (2008): 1236-1244.
- 19) Simon, Steven L., André Bouville, and Ruth Kleinerman. "Current use and future needs of biodosimetry in studies of long-term health risk following radiation exposure." *Health physics* 98.2 (2010): 109.

Construction of a technological platform for a dosimetry system combining biological indices applicable in the event of a large-scale radiation disaster

Takashi Moritake¹, Tsutomu Shimura², Asako J. Nakamura³

¹Department of Radiological Health Science, Institute of Industrial Ecological Sciences, University of Occupational and Environmental Health, Japan.

²Department of Environmental Health, National Institute of Public Health.

³Department of Biological Sciences, College of Science, Ibaraki University.

Key word : Radiation disaster, biodosimetry, redox, mitochondria, DNA damage, telomeres

Abstract

Dosimetry based on biological indices (biodosimetry) is essential in the event of a large-scale disaster. To maintain a robust response to a radiation disaster and to increase the reliability of dosimetry readings, biodosimetric methods involving multiple techniques must be devised. The principal investigator and co-investigators have previously studied body responses soon (several minutes to several days) after radiation exposure from different perspectives. One aim of the current study is to translate those findings into biodosimetric techniques. A second aim of this study is to combine those techniques to construct a technological platform for a biodosimetric system with assured sensitivity and accuracy and exceptional simplicity, rapidity, and economic viability.

In specific terms, this study will: 1) ascertain patterns of changes in and mechanisms of the anti-oxidative capacity of blood, mitochondrial damage, deoxyribonucleic acid (DNA) damage, and telomeric damage after radiation exposure; 2) develop simple, rapid techniques to measure these biological indices; and 3) propose a biodosimetric system combining the identified biological indices for widespread implementation.

This year, the current authors used experiments with mice to examine patterns of changes in the anti-oxidative capacity of blood after radiation exposure in detail. Mitochondrial and telomeric damage were assayed after radiation exposure in experiments with cells. In addition, a device was developed to more rapidly assess DNA damage (γ H2AX staining) and a system was constructed to assay mitochondrial damage. Advantages of combining multiple techniques have also been considered.

1-6-a 大規模放射線災害に対応できる複数の生物学的指標を組み合わせた

た線量推定システムの技術基盤構築

(分担) 新たな生物学的評価法の指標としてのミトコンドリア損傷の検討

分担研究者 志村 勉 (国立保健医療科学院)

研究要旨

放射線による DNA 二重鎖切断は、染色体異常、細胞死の誘導など、放射線による悪影響の主因である。被ばく線量を放射線の生物学的標的である DNA の損傷量で評価するヒストンリン酸化 (γ -H2AX) の解析は高感度で線量評価の有用な指標の一つとして考えられ、本研究の分担研究者である茨城大学中村教授らにより解析を行う予定である。しかし、DNA 損傷の指標は DNA が修復されると消失し、被ばく後の時間経過とともに減少する。このため、線量評価が可能な期間を延ばすには、いくつかの生物学的指標を組み合わせることが重要であると考えられる。主任研究者の産業医科大学 盛武准教授は、放射線による酸化ストレスの影響について抗酸化力を測定して検出し、被ばく後期の線量評価に取り組む。本研究では、活性酸素によるミトコンドリア損傷に着目して解析を行う。エネルギー生産を制御する細胞小器官ミトコンドリアは、独自のミトコンドリア DNA (mtDNA) を持つ。ミトコンドリアは放射線の主な標的器官で、核 DNA と同様に、mtDNA は損傷する。核 DNA と比べて、mtDNA の修復効率は低いことから、低線量放射線の影響はミトコンドリアに顕著に現れることが予想される。さらに、ミトコンドリアから発生する活性酸素は、放射線による酸化ストレスの原因となる。これまでヒト培養細胞を用いた我々の解析から、X 線照射 3 時間後からミトコンドリアから発生する活性酸素が増加し、その後にミトコンドリアが酸化損傷を受けることを明らかにした。本研究では、ヒト培養細胞、マウス個体、ヒトリンパ球を用いて、被ばく線量評価のための新たな指標としてミトコンドリア損傷の解析が有効であるかどうかを明らかにし、抗酸化能 (盛武) と DNA 損傷 (中村) の他の被ばく指標と組み合わせて高精度の放射線の線量評価法の確立に取り組む。

キーワード

生物学的指標、ミトコンドリア、活性酸素

研究協力者

河合秀彦 (広島大学・大学院医歯薬保健学研究院)

I. 研究目的

本研究では、いくつかの生物学的指標を組み合わせ、信頼性の高い線量評価手法の確立を研究目的とする。生物学的指標の一つとして放射線による酸化ストレスに着目し、活性酸素によるミトコンドリアの酸化損傷について、ヒト正常線維芽細胞や動物モデルマウスを用いて検討する。ミトコンドリアは、エネルギー代謝を制御するだけでなくストレス応答に関与し、細胞の恒常性の維持に重要な働きを持つ。放射線照射後に DNA 損傷応答に必要なエネルギーを供給するため、ミトコンドリアのエネルギー生産が活性化し、その過程で副産物として発生する活性酸素は酸化ストレスを誘導する。ミトコンドリア DNA (mtDNA) の構造は核 DNA とは異なり、ヌクレオソーム構造を持たない。また、mtDNA の修復効率は核 DNA と比べて低いことから、DNA 損傷が残存することが考えられる。これらのミトコンドリアの特性から放射線影響が顕著に現れることが示唆され、被ばく線量評価の指標として適していると考えた。本研究では、被ばく初期を核の DNA 損傷 (分担研究者 中村) で、被ばく後期をミトコンドリア損傷 (分担研究 志村) と抗酸化力 (主任研究者 盛武) を指標として、これらを組み合わせ、放射線の被ばく線量を評価する方法を確立する。

ミトコンドリアが損傷し膜電位の低下した機能不全のミトコンドリアは、パーキンソン病原因遺伝子 parkin と phosphatase and tensin homolog (PTEN)-induced putative kinase 1 (PINK1) の働きにより認識され、ミトコンドリアのオートファジー(マイトファジー) を介して選択的に分解される。このため、parkin の抗体を用いた蛍光免疫染色法により、ミトコンドリアへの parkin の集積性を測定してミトコンドリア損傷を評価する。本年度は、主に、ヒト培養細胞を用いた解析により、放射線の被ばく線量とミトコンドリア損傷の線量効果関係と parkin 陽性細胞の客観的評価法の確立について検討をした。

本研究により、多くの被ばく指標を用いることで、より精度の高い線量評価法の確立が期待される。核 DNA 損傷とミトコンドリア損傷は、1つの試料で同時に検出を行うことが出来るため、染色に必要な数時間でこれらの指標の評価が可能であり、より迅速な評価法の確立が期待される。線量評価法の確立は早急に検討が必要な課題であり、本研究で得られた成果に対する社会への貢献は大きい。

II. 研究方法

1. 細胞培養と照射方法

ヒト胎児肺由来正常二倍体線維芽細胞 MRC-5、TIG-3 は、財団法人ヒューマンサイエンス振興財団より購入し、細胞培養用 T25 フラスコ内で、10%ウシ胎児血清と抗生物質を添加した α -minimum essential medium (MEM) 培養液を用いて、37°C、5%CO₂ の条件で培養した。細胞に X 線照射装置 (日立、MBR-1505R2) を用いて、線量率 0.6Gy/分で、総線量 0.1~10Gy の急性照射と、1 回当たり 0.01 または 0.05Gy の分割照射を 1 日 2 回、週 5 日で 1 か月間のスケジュールで長期分割照射 (総線量 0.46 または、2.6Gy) を行った。

2. ミトコンドリアの染色とミトコンドリア損傷の検出

カバーガラス上で細胞を培養し、以下の染色を行った。膜電位が正常なミトコンドリアを、ミトコンドリアの膜電位に依存する塩基性蛍光色素 MitoTracker Deep Red (サーモフィッシャー社)を用いて、キットのプロトコールに従い標識した (赤色)。カバーガラス上の細胞を 4%パラホルムアルデヒドで室温 10 分固定した後、0.5%トライトンで膜透過の処理を行った。5%ウシ胎児アルブミンで室温 15 分間ブロッキングを行った後、1 次抗体、蛍光標識された 2 次抗体を用いて、抗体反応を行った。ミトコンドリアタンパク質 Tom20 の抗体と parkin の二重染色で、ミトコンドリアへの parkin の集積性によりミトコンドリア損傷を検討した。細胞核はヘキストで染色した。蛍光免疫染色したスライドガラスは、キーエンス社 蛍光顕微鏡 Keyence BZ-X700 で 100 個以上の細胞を観察し、parkin で染色される陽性細胞の頻度を求めた (目視による計測)。さらに、CCD カメラで 1 つのスライドに対して無作為に蛍光画像を 5 枚取得した後、解析ソフト Hybrid Cell Count software を用いて、画像解析を行った。ミトコンドリアタンパク質 Tom20 で染色されるミトコンドリア領域の選択とヘキストを用いた細胞核の染色で細胞数を求める解析条件を設定した後、自動でミトコンドリアに局在する parkin の輝度の総量を計測した。

3. スーパーオキシドディスムターゼ (SOD) 活性の測定

放射線による酸化ストレスについて、活性酸素の除去する機能をもつ酵素スーパーオキシドディスムターゼ (SOD) に着目して解析を行った。市販の SOD 測定キット (同人堂) のプロトコールに従い、細胞膜をホモジナイザーで壊した後、上清を測定試料として、細胞内の SOD 活性を測定した。

4. 統計処理

エラーバーは標準偏差を示す。全ての実験は、少なくとも 3 回以上の独立した試料を用いて繰り返し実験を行った。エクセル統計 2012 解析ソフトを用いて、一元配置 ANOVA 後に、Dunnett 法を用いて、多重比較検定を行った。

(倫理面への配慮)

本申請研究では市販のヒト培養細胞を用いての解析であり、倫理委員会の審査は必要としない。

III. 研究結果

1. ヒト培養細胞を用いた放射線によるミトコンドリア損傷の検出 目視による parkin 陽性細胞の計測

ヒト胎児肺由来正常二倍体線維芽細胞 MRC-5、TIG-3 に 0.1~10Gy の X 線を照射し、照射 24 時間後に parkin 抗体を用いてミトコンドリアの損傷を検出した。図 III-1 に示すように、X 線 1Gy を照射した MRC 細胞では MitoTracker deepRed (赤色) で染色される膜電位が正常なミトコンドリアとは異なる場所にドット状の parkin のフォーカスが形成されることを明らかにした。100 個以上の細胞を観察し、parkin フォーカスを持つ細胞の頻度を求めた。MRC-5、TIG-3 のどちらの細胞においても、非照射細胞と比べて、1Gy 以上の照射で統計的に優位に parkin 陽性細胞が増加することを明らかにした。一方、0.1、0.5Gy の照射では、放射線による parkin のフォーカス形成は誘導されなかった。放射線で parkin のフォーカス形成の誘導は確認できるものの、蛍光顕微鏡を用いた目視での parkin の陰性、陽性の判断は主観的な評価であるため、測定者間で parkin 陽性細胞の頻度のばらつきが観察された。

これまでの解析から放射線誘発 parkin フォーカス形成に関して、以下の 3 つのことを明らかにした¹⁻²⁾。1. X 線急性照射 24 時間では、1Gy 以上で誘導される。2. 慢性照射や分割照射では、急性照射と比べてより低い累積線量(0.4Gy)で誘発される。3. DNA の損傷応答に重要な働きを持つ DNA 損傷のセンサーである ATM を欠損した細胞では、放射線誘発 parkin フォーカスは形成されない。

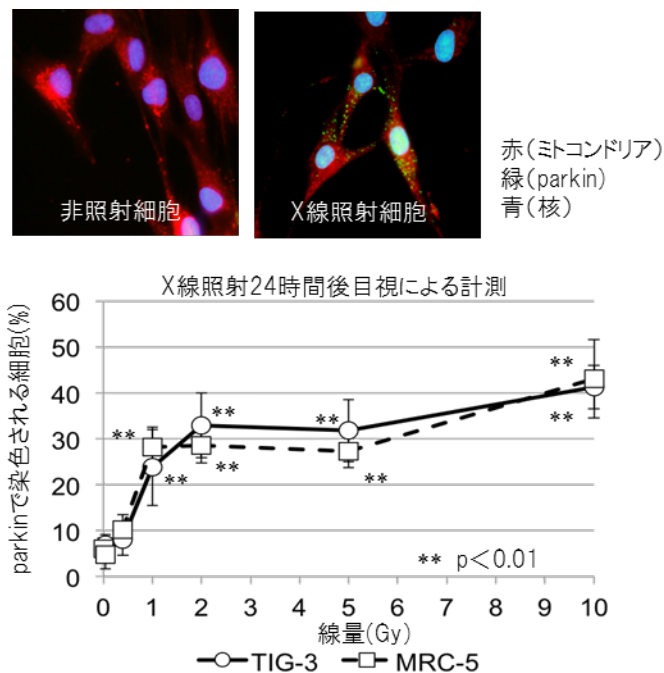


図 III-1 放射線による parkin の誘導 (顕微鏡下での目視による計測)

2. parkin の輝度の数値化によるミトコンドリア損傷の評価

ミトコンドリア損傷の客観的に評価法について検討した。習得した画像を解析ソフト Hybrid

Cell Count software を用いて自動解析を行い、1 細胞当たりのミトコンドリアに局在する parkin の輝度の総量を計測した (図 III-2)。非照射コントロールと比べ、5Gy 以上の放射線照射 24 時間後に、有意に parkin はミトコンドリアに集積することを明らかにした。

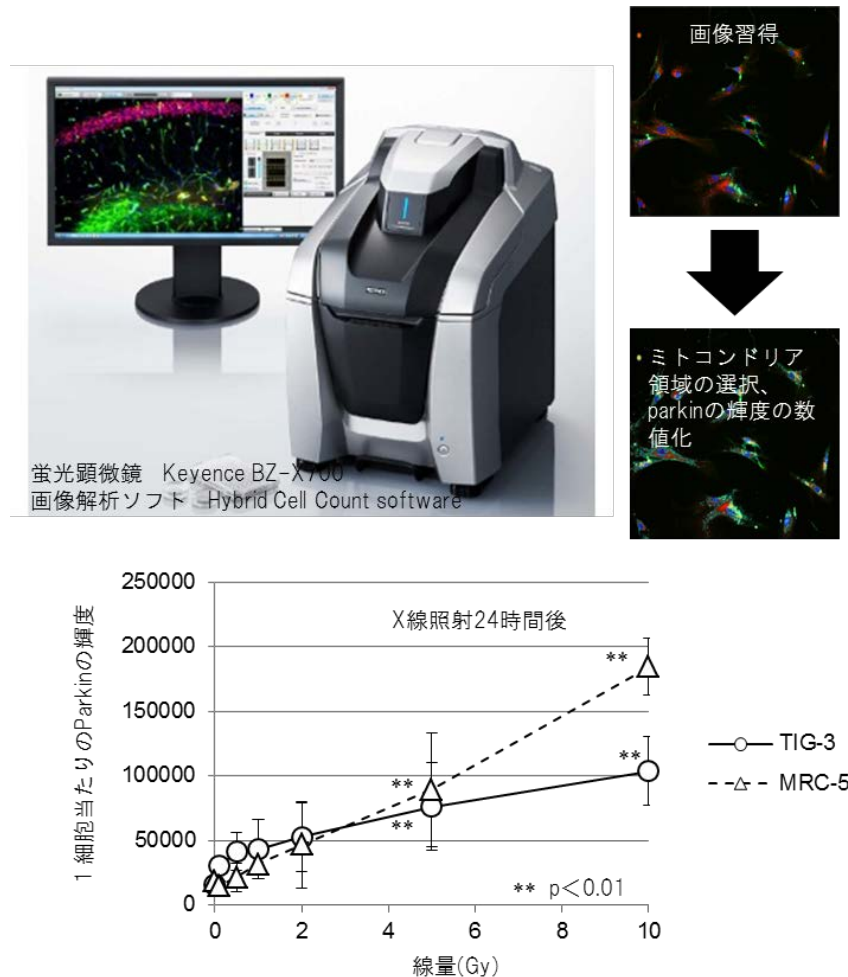


図 III-2 放射線誘発 parkin の画像解析

3. parkin 抗体の検討

これまで蛍光免疫染色に用いていた SantaCruz 社のウサギモノクローナル parkin 抗体は販売中止で使用不可となったため、市販の parkin 抗体を購入し、蛍光免疫染色に使用可能かどうかの検討を行った。表に示す数種類の抗体のうち、proteintech 社の parkin 抗体が、MRC-5, TIG-3 細胞を用いた parkin の蛍光免疫染色において、良好な結果を得られることを明らかにした。

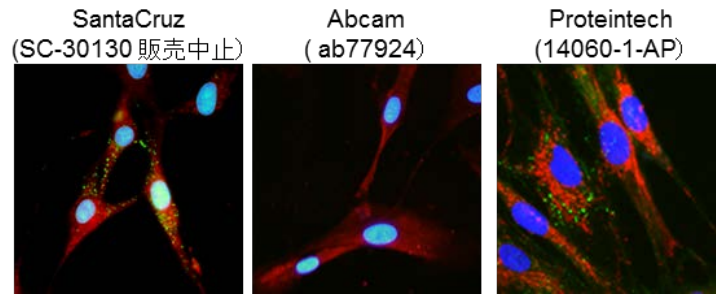


図 III-3 parkin 抗体の検討

表 III-1 本研究に使用した parkin 抗体のリスト

	クローン名	カタログ番号	蛍光免疫染色の結果
SantaCruz (販売中止)	H-300	SC-30130	良
代替品			
SantaCruz	PRK8	SC-32282	不良
Abcam	PRK8	ab77924	不良
proteintech		66671-1-Ig	不良
proteintech		14060-1-AP	良

4. SOD 活性の測定

放射線による酸化・還元制御への影響を解析するため、活性酸素の無毒化に関わる SOD の活性を測定した。ヒト正常線維芽細胞では、放射線照射 24 時間後に、SOD の活性が減少することを明らかにした。

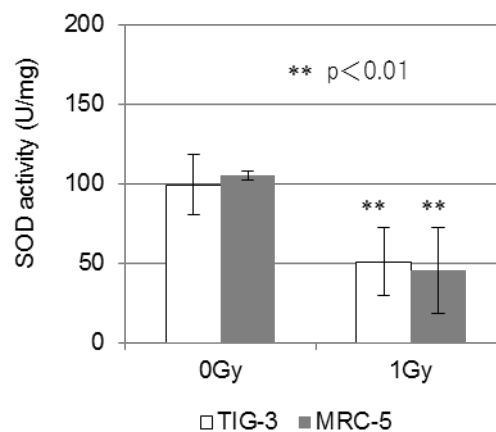


図 III-4 SOD 活性の解析

IV. 考察

膜電位の低下した異常なミトコンドリアはミトコンドリアのオートファジーであるマイトファジーで選択的に分解され、ミトコンドリアの質が保たれる。PINK1 は parkin をリン酸化して、parkin の膜電位の低下した異常なミトコンドリアへの結合を促進する。本研究では、parkin のミトコンドリアへの集積性を指標として、損傷を持つ異常なミトコンドリアを検出した。ヒト胎児肺由来正常二倍体線維芽細胞 MRC-5、TIG-3 を用いた解析により、1Gy 以上の放射線照射でミトコンドリア損傷を誘導することを明らかにした。放射線によるミトコンドリアの酸化損傷は、活性酸素が原因である³⁾。活性酸素は、放射線応答に必要なエネルギーを供給するため、ミトコンドリアが活性化し、副産物をして発生する。図 III-4 に示すように放射線照射 24 時間後に SOD の活性が低下する。このことから、活性酸素が除去できずに蓄積し、発生源のミトコンドリアに損傷を誘導することが考えられる。慢性照射や分割照射では、急性照射と比べてより低い累積線量(0.4Gy)で活性酸素が蓄積し、ミトコンドリア損傷が誘発されると考える。目視による parkin 陽性細胞の評価では、parkin 陽性細胞の判断基準が問題となる。フォーカス形成などの parkin の染色パターンを考慮して非特異性の染色と区別し、判断基準を標準化することが必要である。一方、画像解析ソフトを用いた解析では、放射線誘発 parkin は、高線量の 5Gy 以上で統計学的に優位に増加が観察された。ミトコンドリアに局在する parkin の蛍光の強度のみを評価しているため、1Gy, 2Gy の照射で有意差を検出できないことが考えられる。蛍光量とともに、フォーカスの数や染色パターンなど詳細に解析することで、検出限界を下げる事が可能であると考えられる。今後は、放射線誘発ミトコンドリア損傷の再現性を確認し、低線量の放射線を照射して検出感度について詳細に検討する。

V. 次年度以降の計画

細胞を用いた解析では、ミトコンドリア損傷に加え、酸化ストレス応答を Nrf2 の核内における発現で検出し、放射線被ばくの指標として有効かどうかを検討する。さらに、放射線感受性とミトコンドリアの放射線影響について、DNA 修復や細胞死に関わる分子の阻害剤と放射線を併用して投与し検討する。さらに、生体内でのミトコンドリア損傷の評価するため、マウスの血液を用いた検出系の確立に取り組む予定である。

VI. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 論文：査読あり

- 1) Tsutomu Shimura, Mao Koyama, Daiki Aono, Naoki Kunugita Epicatchin as a Promising Agent to Countermeasure Radiation Exposure by Mitigating Mitochondrial Damage in Human Fibroblasts and Mouse Hematopoietic Cells The FASEB J in press

VII. 参考文献

- 1) Shimura, T, Sasatani, M, Kawai, H, et al. ATM-mediated mitochondrial damage response triggered by nuclear DNA damage in normal human lung fibroblasts. *Cell Cycle*. 2017; 16(24): 2345-54.
- 2) Shimura, T, Kobayashi, J, Komatsu, K, et al. Severe mitochondrial damage associated with low-dose radiation sensitivity in ATM- and NBS1-deficient cells. *Cell Cycle*. 2016; 15(8): 1099-107.
- 3) Shimura, T, Sasatani, M, Kawai, H, et al. A comparison of radiation-induced mitochondrial damage between neural progenitor stem cells and differentiated cells. *Cell Cycle*. 2017; 16(6): 565-73.

Title Analysis of mitochondrial damage as a potential biological marker of radiation exposure

Author Tsutomu Shimura

Affiliation1 Department of Environmental Health; National Institute of Public Health

Key word : Biological marker, mitochondria, ROS

Abstract

Ionizing radiation (IR) induces DNA double strand breaks (DSBs) trigger chromosomal aberrations and induction of apoptosis in irradiated cells, and its deleterious effect is the main biological concern. Monitoring DSBs using the marker γ -H2AX is considered to be a powerful tool for radiation dosimetry. However, γ -H2AX is disappeared after the completion of DNA repair. In order to extend timing for dose assessment, it is required to identify the other biological markers. Mitochondria are ubiquitous intracellular organelles that generate adenosine triphosphate via oxidative phosphorylation (OXPHOS). Mitochondria harbor their own mitochondrial DNA (mtDNA), which can be directly damaged by IR along with nuclear DNA (nDNA). Because mtDNA lacks histone protection and the efficient DNA repair system of nDNA, IR-induced mtDNA damage is thought to be more extensive and persistent over time than nDNA damage. Furthermore, mtDNA is located at the inner mitochondrial membrane close to the sites of ROS production and has a high mutation rate due to its chronic exposure to mitochondrial ROS. IR stimulates mitochondrial OXPHOS and generates ROS. Excess mitochondrial ROS resulted in mitochondrial damage that was in turn recognized by Parkin, leading to mitochondrial autophagy (mitophagy) to protect the quality of mitochondria. Here we investigated IR-induced mitochondrial damage in normal human fibroblasts. We immunostained irradiated cells with an antibody specific for the E3 ubiquitin ligase, parkin, which recognizes damaged mitochondria with low membrane potential. The goal of this study is to establish biological dosimetry systems in combination with several biological markers such as DSBs (Dr. Nakamura), mitochondrial damage (this study) and antioxidants capacity (Dr. Moritake).

1-6-b 大規模放射線災害に対応できる複数の生物学的指標を組

み合わせた線量推定システムの技術基盤構築

(分担) DNA 損傷レベルおよびテロメア長測定による放射線被ばく 線量評価 —放射線の痕跡から辿る—

分担研究者：中村 麻子（茨城大学 理学部 教授）

研究要旨

現代社会において懸念されている放射線被ばくの影響を正確に知るためには、被ばく後の迅速かつ経時的な DNA 損傷レベルの評価が重要であることは疑う余地がない。高感度かつ簡便に DNA 損傷レベルをモニタリングする方法としてリン酸化 H2AX (γ -H2AX) の検出方法が挙げられるが、 γ -H2AX モニタリングを『現場』で行うための簡便かつ小型な汎用性の高いシステム開発はこれまでにないとなされておらず、これまで以上に簡便なサンプリング、長期的かつ安定的なサンプルの保存、そして γ -H2AX レベルの迅速な解析を可能とするアクセシビリティの開発が求められている。そこで、本研究では γ -H2AX による DNA 損傷のモニタリングという分子学的技法と、ナノマイクロデバイス技術を結びつけることで、これまでにない放射線被ばく管理のための新規 DNA 損傷モニタリングシステムを開発する。またその一方で、DNA 損傷の指標である γ -H2AX は DNA が修復されると消失し、被ばく後の時間経過とともに減少する。線量評価が可能な期間を被ばく後より長く、高精度の線量評価を確立するためには、いくつかの生物学的指標を組み合わせることが重要であると考えられる。放射線は生体内に酸化ストレスを誘導することから、ミトコンドリアの酸化損傷レベルに加え、グアニン塩基が豊富な染色体末端構造であるテロメアの酸化損傷（酸化による短縮や構造異常）も線量評価のための生物学的指標としての可能性を有している。

本研究では、放射線被ばくを現場で評価するための新規 γ -H2AX 検出システムの開発および、ヒト培養細胞、マウス個体、ヒトリンパ球を用いて、被ばく線量評価のための新たな指標としてテロメア損傷の解析が有効であるかどうかを明らかにし、簡易的かつ効果的な被ばく線量測定システムを確立する。

キーワード

H2AX、DNA 損傷、線量評価、MEMS、テロメア

研究協力者

鈴木孝明（群馬大学 教授）

I. 研究目的

原子力規制委員会「原子力災害対策指針」(平成 29 年 3 月 22 日全部改正)に基づき緊急被ばく医療体制の整備が進められる中で、検討課題として迅速な線量評価手法の確立が求められている。放射線の線量を測定する方法はさまざまあり、一般的な方法としてガイガー・ミュラー・カウンタ(GM カウンタ)やガラスバッチがある。しかし、事前にそれらの線量評価機器を携行・装着しておくことが必須であり、事故などによる予期せぬ被ばく時には個人が受けた放射線量を計測することができない。また、これらが測定するのは物理的な線量であり、放射線被ばくした人の生物学的影響を知ることは難しい。放射線被ばくによる健康影響を正しく評価するために生物学的指標を用いた生物影響評価が重要なことは間違いない。そこで本研究では生物学的影響の指標として放射線誘発の DNA 二本鎖切断(double-strand break: DSB)に着目し、DNA DSB のバイオマーカーとして γ -H2AX を用いた。DNA 損傷のバイオマーカーである γ -H2AX は、1.2mGy 相当の低線量放射線の線量評価が可能であるほどに高感度であるとともに、染色体異常解析などの線量評価法と比較して簡便に検出が可能である。しかしながら、 γ -H2AX の検出は実験室ベースで行われているのが現状であり、緊急被ばく時に迅速な線量評価を行うためには、 γ -H2AX の検出を現場で行うための新規システムの開発が必要となる。そこで本研究では γ -H2AX の検出を迅速かつ簡便に「現場」で行うことを可能とするマイクロデバイスの開発を行う。

その一方で、 γ -H2AX の検出は DNA 損傷修復に伴い時間経過とともに消失していくことから、被ばく後時間が経過した後でも信頼性のある線量評価そしてリスク管理を行うためには、細胞の代謝によって消失することのない、「放射線被ばく痕跡」となる生物学的指標が必要となる。そこで、本研究では放射線被ばくの長期的な線量評価指標としてテロメア損傷についてその有効性を検討する。本研究開発により、DNA 損傷だけでなく、ミトコンドリア損傷(分担研究 志村)や抗酸化力(主任研究者 盛武)、そしてテロメア損傷などの複数の生物学的指標を組み合わせた新しい、信頼性の高い線量評価手法が確立できると期待される。

II. 研究方法

初年度である平成 30 年度は γ -H2AX 検出のための新規デバイス開発および被ばく線量評価指標としてのテロメア損傷の有効性検討のため以下の実験を行った。

1. PDMS チップでの γ -H2AX 免疫蛍光染色および観察

研究協力者(鈴木孝明・群馬大)が作成した PDMS チップはあらかじめ真空デシケーター内で十分に脱気を行った。PDMS チップに親水性のポリマー溶液を流し込み、流路内の親水処理を行った。親水処理後、再度真空デシケーター内で十分に脱気を行い、PBS を PDMS チップの inlet より滴下し、流路内を PBS で充填した。その後、PBS で希釈したヒト末梢血(あらかじめ X 線を 0, 1, 5Gy ex vivo 照射したサンプル)を 7 マイクロリットル程度流し込み、流路内構造にリンパ球を捕獲した。20%パラホルムアルデヒドを流路に滴下することで細胞固定を行い、洗浄を十分に行った後に、蛍光色素標識された γ -H2AX 抗体をもちいた蛍光免疫染色を行った。染色後は十分に洗浄し、退色防止剤を含む DAPI 溶液を流しこみ封入した。染色した PDMS チップは蛍光顕

微鏡下で観察を行い、蛍光画像を取得後、解析を行った。

2. 放射線照射細胞のテロメア長の測定

ヒトリンパ芽球細胞 TK6 に対し、X 線を 0, 1, 5Gy 照射し、1 時間後に細胞を回収した。細胞は 2%パラホルムアルデヒドで固定し、十分に洗浄を行った。固定した細胞をサイトスピンによってスライドガラスに張り付けた。その後、DAKO 社のテロメア FISH キットのプロトコールに基づいてテロメアプローブのハイブリダイゼーションを行った。テロメアシグナルは蛍光顕微鏡下で観察し、得られた画像からシグナル強度を計測し、テロメア長レベルを評価した。

(倫理面への配慮)

本研究で用いるヒト培養細胞は市販されている培養細胞による解析であり、倫理委員会の審査は必要としない。本研究におけるヒト血液サンプルを用いた実験は、茨城大学生命倫理規定に基づいた申請書を作成し、審査委員会による承認を受けているものである（承認番号 150401、研究課題名「新規放射線誘発 DNA 損傷モニタリングシステムの開発」）。実施にあたっては、倫理指針に則り、調査開始に当たり、本研究の目的・意義・方法・侵襲度・予測される危険性などについて説明し十分な理解を得る。参加は、本人に不利益を被らせることがないように配慮する。また、いつでも自由意志で参加の同意の撤回ができ、途中で参加を中止しても、本人に何ら不利な取り扱いを受けないことを保障する。この様な内容について十分に説明を行い、調査を実施し、情報の漏洩がないように努める。データは被験者が特定できないように、個人情報識別管理者の管理の下で、被験者番号を付けて連絡可能匿名化し分析する。

III. 研究結果

1. γ -H2AX 検出デバイスの開発および線量評価デバイスとしての有効性検討

DNA 損傷を迅速かつ簡便に現場で行うために、新規マイクロ流路チップを開発した。ヒト血液サンプルを用いて十分なリンパ球がチップ上に分離捕獲されるかを検討した結果、流路内に設置した 1000 個の捕獲構造に、60%程度の捕獲効率でリンパ球をトラップすることに成功した（図 III-1）。60%つまり、600 個程度のリンパ球は解析に十分なサンプル数であり、末梢血からリンパ球を安定的に分離することができることを示している。また、流路内に捕獲したリンパ球に対して γ -H2AX に対する蛍光免疫染色を行った結果、一部の細胞で明瞭なフォーカスを検出することができた。このことは、PDMS チップでの蛍光免疫染色が可能であることに加え、 γ -H2AX の特徴である γ -H2AX フォーカス数による DNA 損傷レベルの定量化が可能であることを示す重要な知見である。

このような微量の全血からリンパ球を効率的に分離捕獲し、 γ -H2AX アッセイを連続して行うことができる新規デバイスとしての PDMS チップは世界初であり、現在、チップの知財化に向けて特許申請準備中である。

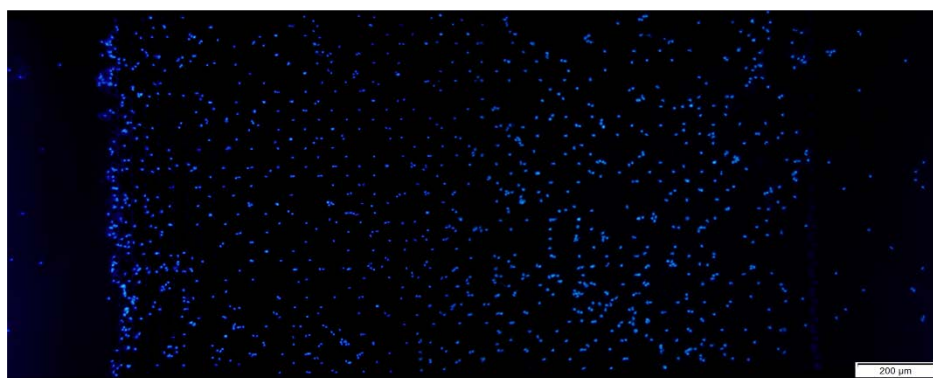


図 III-1 PDMS チップにおけるリンパ球分離捕獲

ヒト末梢血をチップに滴下し、DAPI 染色によってリンパ球の分離捕獲効率を検討した。流路内に配置されているリンパ球捕獲構造に広く均一にリンパ球が存在していることが分かる。再現性良く 60%程度の捕獲構造にリンパ球を捕獲できることを確認した。

2. 放射線被ばく線量評価指標としてのテロメア損傷の有効性検討

培養ヒトリンパ芽球細胞に放射線を照射後、テロメア長の変化についてテロメア FISH 法を用いて解析した。その結果、線量依存的なテロメア長の短縮が検出されたことから、照射後経過時間に関わらず被ばく線量を知ることができる線量評価指標となりうることが期待された。

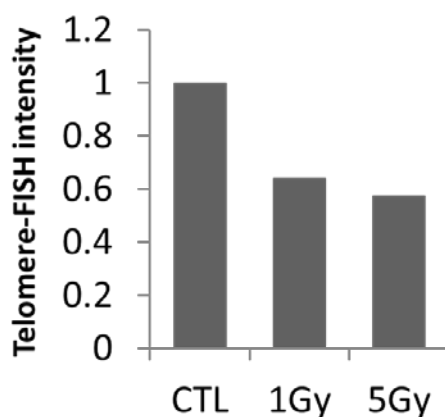


図 III-2 放射線照射によるテロメア短縮

X線照射 1 時間後におけるテロメア長の比較を行った。テロメアの蛍光シグナルの強度でテロメア長を評価している。線量依存的にテロメアシグナルが減少していることから、放射線照射によってテロメア短縮が誘導されたことを確認した。

IV. 考察

現代社会において懸念されている放射線被ばくの影響を正確に知るためには、被ばく後の迅速かつ経時的な DNA 損傷レベルの評価が重要である。高感度かつ簡便に DNA 損傷レベルをモニタリングする方法としてリン酸化 H2AX (γ -H2AX) の検出方法がある。すでに、 γ -H2AX による DNA 損傷評価は福島原発事故後の被災家畜由来のリンパ球で実施されており、幅広い生物の放射線影響を評価するための指標として期待されている¹⁾。一方、 γ -H2AX モニタリングを『現場』で行うための簡便かつ小型な汎用性の高いシステム開発はこれまでになされておらず、これまで以上に簡便なサンプリング、長期的かつ安定的なサンプルの保存、そして γ -H2AX レベルの迅速な解析を可能とするアッセイデバイスの開発が求められている。そこで、本研究では γ -H2AX による DNA 損傷のモニタリングという分子学的技法と、ナノマイクロデバイス技術 [2] を結びつけることで、これまでになかった放射線被ばく管理のための新規 DNA 損傷モニタリングシステムの開発を行った。現時点では、従来の γ -H2AX アッセイと同レベルの精度には達していないものの、現場で利用可能なデバイスとしての可能性を十分に確認することができた。今後、実装化にむけた検討を行っていく。またその一方で、DNA 損傷の指標である γ -H2AX は DNA が修復されると消失し、被ばく後の時間経過とともに減少する。線量評価が可能な期間を被ばく後より長く、高精度の線量評価を確立するためには、いくつかの生物学的指標を組み合わせることが重要であると考えられる。そこで、グアニン塩基が豊富な染色体末端構造であるテロメアの酸化損傷（酸

化による短縮や構造異常)も線量評価のための生物学的指標として有効であると考え、検討をおこなった。その結果、線量依存的なテロメア短縮が検出され、被ばく後長時間経過した際の線量評価指標としての可能性を確認した。

V. 結論

福島第一原発事故のような放射線事故において最も必要なことは、被ばく線量をいち早く評価し、その生物学的リスクを予測・対応することである。そのためには、これまで以上に簡便なサンプリング、長期的かつ安定的なサンプルの保存、そして γ -H2AXを用いたDNA損傷レベルの迅速な解析を可能とするアッセイデバイスの開発は必要である。本研究では現場での γ -H2AXアッセイを可能とする新規デバイスの開発を行い、微量のヒト血液サンプルから迅速かつ簡便にリンパ球を分離捕獲するPDMSチップを作成することに成功した。また、同じチップ上で γ -H2AXフォーカスの検出が可能であることも確認した。このような線量評価デバイスは放射線に対する健康リスクを正確に理解するために非常に有効であると考えられる。また、万が一、迅速な線量評価が不可能であった場合でもいかなるタイムフレームであっても十分な被ばく線量評価が可能な生物学的指標が必要であることから、テロメア長短縮に着目し、放射線被ばくに対するテロメア長評価を行った。その結果、線量依存的なテロメア短縮が検出されたことから、被ばく線量評価指標としての有効性が確認された。

VI. 次年度以降の計画

次年度以降は引き続き γ -H2AXアッセイデバイスの開発を行い、社会実装化にむけたより具体的な検証を行う。またPDMSチップによる γ -H2AXを用いた線量評価が低線量域放射線被ばくに対しても有効であるかを検討する。放射線被ばく線量評価指標としてのテロメア短縮の検証としては、より幅広いタイムフレームあるいは放射線量でのサンプリングを行う。また、テロメア長測定とともにDNA二本鎖切断マーカーである γ -H2AXレベルの測定も同時に行い、線量評価に適した放射線線量域や検出時間域について比較検討を行う。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

A. 国内学会発表

- 1) 高橋健太, 田村隆大, 鈴木孝明, 中村麻子, PDMSマイクロ流路チップを用いたDNA損傷評価システムの開発, 日本放射線影響学会第61回大会, Nov 7-9, 2018, 長崎

B. 国際学会発表

- 1) Nakamura AJ. Monitoring DNA damage levels using γ -H2AX detection in vivo-future application of the assessment of biological effect of radiation exposure-. 3rd International

Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University, May 30-Jun 2, 2018, Ibaraki, Japan.

2) Kenta T. Development of novel DNA damage monitoring system using PDMS micro fluidic chip-. The 14th International Student Conference in Ibaraki, December 1 - 2, 2018, Ibaraki, Japan.

VIII. 参考文献

1) Nakamura AJ, Suzuki M, Redon CE, Kuwahara Y, Yamashiro H, Abe Y, Takahashi S, Fukuda T, Isogai E, Bonner WM, Fukumoto M. The causal relation between DNA damage induction in bovine lymphocytes and the Fukushima nuclear power plant accident. *Radiation Res.* (2017) 187:630-636.

2) Tamura T, Suzuki T. Seamless Fabrication Technique from Micrometer to Millimeter by Combining 3D Printing and Photolithography, *Japanese Journal of Applied Physics*, 2019

Validation of DNA double-strand break and telomere dysfunction as biodosimeter

Kenta Takahashi¹, Takahiro Tamura², Takaaki Suzuki², Asako J. Nakamura¹

¹*Department of Biological Sciences, College of Science, Ibaraki University*

²*School of Science and Technology, Gunma University*

Key word : H2AX, DNA damage, biodosimeter, MEMS, telomere

Abstract

The risk of radiation exposure by space radiation, radiation therapy and unexpected radiation accident are concerned in modern society. To understand the biological effect of ionizing radiation on organisms, it is essential to assess the absorbed dose by exposure. Although the most common methods for biological dose evaluation is dicentric chromosome assay (DCA), it may not be appropriate for the situation needing the result immediately to determine medical care since it takes several days to complete the whole analysis and yield the result. In contrast, DNA damage detection using the phosphorylated histone H2AX (γ -H2AX) is more suitable due to its high sensitivity that detects the DNA damage equivalent to 1.2 mGy radiation dose and, rapidity of obtaining results (less than 24 hour). However, γ -H2AX assay is performed in the laboratory and a few challenges for being performed “on-site” still remain.

Therefore, in this study we developed Polydimethylsiloxane (PDMS) micro fluidic chip (PDMS chip) that isolate lymphocytes from peripheral blood to perform γ -H2AX assay on it. PDMS is one of the silicon gums allowing manufacture of complex high order structure. PDMS chip has a flow path with trap structures, which enable to separate lymphocyte. Furthermore, γ -H2AX assay can be performed directly on the PDMS chip with following drops of fluorescence staining agents. Here, we performed γ -H2AX assay of TK6 cells that were exposed to different dose of X-ray on PDMS chip and showed the dose dependent increase of DNA damage.

Thus, our results strongly suggest that PDMS chip is usable in DNA damage evaluating device and make it possible to assess the biological effects of radiation rapidly on-site.

1-7 効果的な個人被ばく線量管理に資する線量の測定と評価に関する

実践的研究

内藤 航

(国立研究開発法人産業技術総合研究所 安全科学研究部門)

研究要旨

福島における放射線に関わるリスク問題の解決には、その問題解決に資する科学的エビデンスや評価・計測技術を、それらを活用するユーザーが理解しやすいかたちで提供することが重要である。面的除染が終了した避難指示解除区域や今後避難指示解除が検討される区域においては、正確な被ばく線量の把握と汚染状況に応じた効果的な放射線防護対策が求められている。本事業では、避難指示解除区域における放射能汚染に対し、地域や個人の状況に応じた効果的な個人被ばく線量低減対策の検討を支援する放射線計測・評価技術の確立と検証を行う。具体的には、①実態に合う個人被ばく線量の評価手法の開発・検証とツール化および②被ばく低減策の検討や効果の評価を支援する計測・解析技術の確立に関する研究を実施する。平成30年度は、避難指示解除区域等における調査において筆者らが取得した個人被ばく線量の実測値(D-シャトル使用)や空間線量率(周辺線量当量)、さらには生活パターン情報と公表されている様々な空間線量率データ(航空機モニタリング、モニタリングポスト等)、土地利用等との関係についての解析を行い、個人被ばく線量データのばらつきの大さや様々な線量データ間の定量的な関係についての知見を得た。さらに、被ばく低減策の検討や効果の評価を支援する計測・解析技術の確立については、改良型無線通信機能搭載小型個人線量計について、線量計のセンサー基板部の開発とこの基板に無線通信や表示機能を追加した線量計プロトタイプの電気的性能の確認を行った。さらに、土壤放射能濃度測定器について、CsIシンチレータとMPPCとの組み合わせによるコリメート式の測定器、またより広範囲を計測できるプラスチックシンチレータによる測定器での土壤中の放射能測定の実証を行った。

キーワード

個人被ばく線量、D-シャトル、放射線計測、線量推定、土壤放射能濃度測定器、改良型無線通信機能搭載小型線量計

研究協力者

黒澤 忠弘(国立研究開発法人産業技術総合研究所分析計測標準研究部門)

岩瀬 広(大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構)

鈴木 良一(国立研究開発法人産業技術総合研究所分析計測標準研究部門)

金 京淑(国立研究開発法人産業技術総合研究所人工知能研究センター)

高原 省五（国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門安全研究センター）

黒田 佑次郎（福島県立医科大学医学部公衆衛生学講座）

石井 秀樹（福島大学うつくしまふくしま未来支援センター）

I. 研究目的

福島（主に避難地域）における被ばく線量対策は、面的除染が一定の効果を上げて終了した今、今後は、空間線量率から一律に推定される被ばく線量ではなく、汚染状況に応じて、個人の被ばく線量（生活パターンを考慮し空間線量率から推測される値や個人線量計による計測値）に着目した、放射線防護のあり方や効果的な被ばく低減対策を検討していくことが必要である。個人の被ばく線量に着目した放射線の健康影響等に関する不安への対応については、いくつかの国等の施策・方針（例えば、「除染・復興の加速化に向けた国と 4 市の取組 中間報告」平成 26 年 8 月や「被災者生活支援等施策の推進に関する基本的な方針」平成 25 年 10 月）の中で取り上げられてきた。最近では、帰還困難区域の一部に、再び人が住めるように整備する特定復興再生拠点区域（復興拠点）について、個人線量計で被ばく管理することを柱とする放射線防護対策の検討が進められることとなった（原子力規制委員会、平成 30 年 11 月）。被災地において、申請者や自治体がこれまでに実施した個人線量計を用いた個人被ばく線量の調査の結果によれば、個人被ばく線量の計測値は、空間線量率から推定される被ばく線量に比べて低い傾向ではあるものの、個々の住民の生活や行動によってばらつきがあることが確認されている。また、被ばく線量で用いられる防護線量（実効線量と等価線量）や実用量（周辺線量当量や個人線量当量）は、単位は同じシーベルトであるが、これらの違いや関係は複雑で混同されやすい。さらに、防護線量や実用量は「標準人」の線量であるため、体形の異なる集団に対する評価においては注意が必要である。

したがって、避難解除区域や今後避難が解除される区域で生活や仕事を行う住民に対して効果的な被ばく低減対策を検討するためには、個人の生活・行動と被ばく線量との関係の正しい理解と個人の行動に着目した対策の検討に資する放射線計測・評価技術の確立が重要である。本事業では、避難指示解除区域（特に長期目標である年間 1mSv 未達成の区域）に着目し、地域や個人の状況に応じた効果的な線量低減対策に資する放射線計測・評価技術の確立と検証を行う。具体的には、①実態に合う個人被ばく線量の評価手法の開発・検証とツール化および②被ばく低減策の検討や効果の評価を支援する計測・解析技術の確立を目的とする。①については、個人の行動パターンに応じた実態に合う個人被ばく線量の評価に必要なパラメータの精緻化と手法の検証を行い、その結果を反映させた評価ツールを作成して、公開する。この評価ツールは、個人の現在あるいは将来の積算線量を推定するだけでなく、どのような行動や滞在場所が積算線量に対して寄与が高いかを可視化する。さらに利用可能な空間線量率データや個人被ばく線量の評価手法（空間線量率から個人被ばく線量を推定する手法）の違いが評価の結果（実測に基づく積算線量の推定値）にどのように影響するか等について比較検証を行い、個人や地域の状況や目的に応じ

た有効な評価手法のあり方を提案する。②については、指向性放射線計測装置、土壌放射能濃度測定器及び改良型無線通信機能搭載小型線量計の開発と実証を行う。指向性放射線計測装置と土壌放射能濃度測定器は、被ばくを受ける場所における放射線の発生源の特定とその大きさの把握に繋がる装置であり、物理的な線量低減対策の検討の際に有用な情報を提供する。改良型無線通信機能搭載小型線量計は、現場での個人線量の読み取りと場所との突合を可能にするため、積算線量に対して寄与が高い場所や行動をタイムリーに知ることができる。

II. 研究方法

1. 実態に合う個人被ばく線量の評価手法の開発・検証とツール化

本課題については、まず本章において、複数の個人被ばく線量の評価の考え方や解析に用いる線量データの特徴について整理する。

① 個人被ばく線量の評価の考え方とツール化する評価手法について

個人被ばく線量の評価方法には、大別すると個人線量計を用いた測定とモデルによる推計（モデリングアプローチ）がある。避難指示解除区域では個人被ばくの測定データが限られるため、帰還後の生活や生活パターンの変化に伴う個人被ばく線量を知るにはモデリングアプローチが有用である。個人線量計による測定あるいはモデルによる推定データは、行政機関が放射線防護のための方針を決定する基礎データとして使われたり（例えば避難指示区域の設定や解除、住民帰還の判断など）、個人が自分自身の被ばく線量を知り、対応を考えたりするために使われる。個人被ばく線量の評価に求められる精度は使用目的に応じて異なる。モデリングアプローチで必要とされるパラメータの種類や範囲、精度も多様である。そのため、個人被ばく線量の評価では、評価手法やモデルパラメータの特徴や限界を理解し、使用目的に応じて、どのように有効に活用するかを検討することが重要となる。

本研究において個人被ばく線量の評価に用いる基本式は以下のように設定する。

$$E(t_1, t_2) = \int_{t_1}^{t_2} E(t) dt \quad (1)$$

ここで、

$E(t_1, t_2)$: 時間 t_1 から時間 t_2 の期間における実効線量の積算値

$E(t)$: 時間 t における実効線量 ($\mu\text{Sv d}^{-1}$)

である。本研究の推定式では時間 t は基本、日単位とする。時間 t における実効線量($E(t)$)は次の式より算出する。

$$E(t) = E(t_0) \cdot \left[p_{134Cs}(t_0) \cdot \exp\{-\lambda_{134Cs} \cdot t\} + p_{137Cs}(t_0) \cdot \exp\{-\lambda_{137Cs} \cdot t\} \right] \quad (2)$$

ここで、

$E(t_0)$: 基準日(t_0)における実効線量 ($\mu\text{Sv d}^{-1}$)

$p_{134Cs}(t_0)$: 基準日における ^{134}Cs が実効線量に与える寄与率

$p_{137Cs}(t_0)$: 基準日における ^{137}Cs が実効線量に与える寄与率

λ_{134Cs} : ^{134}Cs の物理的減衰定数 $[\text{day}^{-1}]$

λ_{137Cs} : ^{137}Cs の物理的減衰定数 $[\text{day}^{-1}]$

である。セシウム 134 とセシウム 137 の半減期はそれぞれ 2.06 年と 30.17 年とすると、 λ_{134Cs} ($=\ln 2/2.06=0.336$) と λ_{137Cs} ($=\ln 2/30.17=0.023$) は、それぞれ、 $9.2\text{E-}4 \text{ day}^{-1}$ と $6.3\text{E-}5 \text{ day}^{-1}$ となる。基準日における実効線量は以下の式より、生活場所とその場所の滞在時間を考慮して評価する。

$$E(t_0) = \sum c \cdot D(p) \cdot s(p) \cdot t(p) \quad (3)$$

ここで、

$D(p)$: 場所 p における空間線量率や個人線量率 $[\mu\text{Sv h}^{-1}]$

$s(p)$: 場所 p の線量低減係数

$t(p)$: 場所 p における滞在時間

c : 計測される線量から実効線量への換算係数

である。 $D(p)$ の空間線量率は周辺線量当量(Sv/h)や空気吸収線量(Gy/h)に相当する。実効線量への換算係数は空間線量率の種類により異なるので注意が必要である。様々な実用量(周辺線量当量や個人線量当量)と防護量(実効線量)との関係はシミュレーションや実測に基づき係数化されている。個人の生活パターンに伴うそれぞれの場所における空間線量率を把握できれば、そのような係数により、比較的精度高く被ばく線量を推定することは可能だと考えられるが、空間線量率の場所における変化をすべて把握することは困難である。したがって実効線量を空間線量率から推定する場合は、そのような誤差があることを理解し、空間線量率の種類に応じて適切な換算係数を用いて評価することが重要である。低減係数は、屋内の空間線量率が屋外に比べて低くなることを考慮するための係数である。屋外に滞在する場合の評価では基本、低減係数は1と考える。個人線量計を用いた測定では個人線量当量が測定される。個人線量当量から実効線量への換算にも、原則、換算係数は必要であるが、汚染された環境での被ばく条件に近い回転照射(ROT)では、個人線量計の測定値は実効線量に近い値を示すこと⁽¹⁾より、個人線量計による測定値を用いる場合については、換算係数は1と考える。また、本研究では福島原発事故由来の放射性セシウムによる追加被ばく線量の評価を目的としていることから、計測される空間線量率や個人線量率に占める自然放射線の寄与は差し引いて評価を行う。

本研究では、利用可能な線量データの種類に応じて、次に示す 5 通りの評価モデル（図 1）について、既往の文献や実測に基づく推定によりパラメータ値(係数)を決定することとした。式(1)と式(2)はすべての評価モデルに共通である。それぞれの評価モデルの違いは、式(3)に用いる線量率データ ($D(p)$) や換算係数(c)の違いである。

【評価モデル I】 地上実測_周辺線量当量ベースモデル

評価モデルは式（3）で表すことができる。サーベイメータやリアルタイムモニタリングなどの空間線量率（周辺線量当量率）の測定値を基に実効線量を評価する方法である。周辺線量当量を実効線量に換算する線量換算係数は、放射性セシウムの沈着した場においては、成人の実効線量は周辺線量当量のおよそ 60%と評価されている²⁾ことより、0.6 を使用する。0 歳児についてはおよそ 80%と報告されており、子供や乳児に対する評価では 0.8 とする。家屋における低減係数は、木造住宅について除染前と除染後に福島において調査された結果によると、中央値（25 パーセントイル～75 パーセントイル）は、それぞれ 0.43（0.34～0.53）と 0.63（0.50-0.81）であった³⁾。

【評価モデル II】 地上実測_空気吸収線量ベースモデル

評価モデルは式（3）で表すことができる。可搬型モニタリング等の空気吸収線量[Gy/h]の測定値を基に実効線量を評価する方法である。空気吸収線量を実効線量に換算する線量換算係数は、放射性セシウムの沈着した場においては、成人の実効線量は空気吸収線量のおよそ 75%、0 歳児の実効線量はおよそ 98%と評価されている²⁾。家屋における低減係数は評価モデル I と同様の値とする。周辺線量当量率と空気吸収線量率の関係については、シミュレーションや両者を定点で測定し比較した結果によると、放射性セシウムが沈着した地域では、周辺線量当量率に対する空気吸収線量率の比の値はおよそ 1.2～1.25 と報告されている²⁾⁴⁾。

【評価モデル III】 航空機モニタリング（空モニ）ベースモデル

評価モデルは式(4)で表すことができる。航空機モニタリングで得られたその地域の平均的な空間線量率（周辺線量当量）を用いて評価する方法である。

$$E(t_0) = \sum cs(p) \cdot D(p) \cdot t(p) \quad (4)$$

ここで、

$D(p)$: 場所 p における航空機モニタリングに基づく空間線量率[$\mu\text{Sv h}^{-1}$]

$cs(p)$: 場所 p における実効線量への換算係数

$t(p)$: 場所 p における滞在時間

である。航空機モニタリング（空モニ）による空間線量率を実効線量へ換算する係数 ($cs(p)$) の範囲は、筆者らのこれまでの研究⁵⁾⁶⁾において、自宅と屋外についての係数が求められているが、

環境条件等によりどのような係数を選択すればよいかについて提案ができるほどの解析はまだ行われていない（本研究における課題）。係数の算出においては、個人線量計（D-シャトル）で測定された個人線量当量を実効線量の近似と見なして、空モニによる空間線量率と D-シャトルによる測定値の比を自宅滞在時と屋外滞在時に分けて算出し、係数の範囲を求めている。係数を求める際のバックグラウンド値は、空間線量と個人線量に対して、それぞれ $0.04\mu\text{Sv/h}$ と 0.54 mSv/y ($\approx 0.06\mu\text{Sv/h}$) が設定されている。

本研究における個人被ばく線量の測定は個人線量計 D-シャトルを用いた⁷⁾。D-シャトルは、重さ 23 g、最大長約 7cm の半導体方式の小型積算線量計で、検出部に入射してくるガンマ線のパルスのカウントし、それを 1 時間ごとに足し上げ積算線量に変換した線量をメモリーに記録する。日々時間ごとの被ばく記録をパソコンに読み出すことができる。電源は特殊コネクタ加工されたコイン型リチウム電池が使用されており、1 日 2 回の読み取り表示の行った場合、電池寿命は約 1 年である。半導体式の検出部は衝撃などによるノイズを誤検出する可能性があるため、衝撃センサを搭載してノイズを除外する機能も付加されている。つまり、2 秒間のカウントが異常に大きい場合はノイズと判断し、積算線量の計算から除外されるようになっている。測定範囲は $0.1\mu\text{Sv}$ から総積算線量で 99.999mSv で、高線量率になると LED ライトが赤く点滅する機能もある。シリコン素子でできた検出部は 2.7mm 角と小さいため、感度は $0.1\mu\text{Sv/h}$ あたり 10 カウント程度と低い。低線量での 1 時間積算値の統計的ばらつきは約 30% である。エネルギー特性をみると、Co-60 のガンマ線から約 50keV の範囲に対して相対感度が $\pm 30\%$ 以内に入るように設計されている。温度特性としては、JIS Z 4312 では、屋内仕様で $+5\sim 40^\circ\text{C}$ に対して $-13\sim +18\%$ 、屋外仕様で $-10\sim +40^\circ\text{C}$ に対して $-13\sim +18\%$ の指示値範囲にする必要があるが、D-シャトルはその規定範囲に入っている。パソコンに繋ぐ管理者では、いつ、どれくらいの被ばくがあったのかをさかのぼって、1 日ごと 1 時間ごとの値として確認できる。

【評価モデル IV】 個人線量実測ベースモデル

評価モデルは式 (5) で表すことができる。個人線量計の測定値をそのまま用いて評価する方法である。

$$E(t_0) = \sum D(p) \cdot t(p) \quad (5)$$

ここで、

$D(p)$: 場所 p における個人線量計の測定値 [$\mu\text{Sv h}^{-1}$]

$t(p)$: 場所 p における滞在時間

である。時間あたりの個人線量当量を把握できる個人線量計（例えば D-シャトル）があれば、個人被ばく線量の測定値とその測定値が取得された場所と時間をそのまま活用して実効線量を評価することができる。この場合も個人線量計による測定値は実効線量の近似と考える。

【評価モデル V】 ガラスバッジベースモデル

ガラスバッジによる個人被ばく積算線量の測定データがある場合は、その測定データをそのまま活用して、同じ生活パターンが続くと仮定して、将来の実効線量を評価することが可能である。ただし、この方法はいつ、どこで、どれくらいの被ばくが生じているかが検討できないため、被ばく線量の低減対策の検討には不向きである。

各種線量データと本研究で検討する評価モデルの関係を図1に示す。図1に示すように個人被ばく線量を空間線量率より評価する場合、一般的に利用可能な空間線量のデータには、地上での測定に基づく周辺線量当量率や空気吸収線量率と航空機モニタリングによる測定に基づく周辺線量当量率がある。航空機モニタリングは高度 300m程度の上空から数百メートル以上の半径における γ 線の平均的な値を測定しているため、精度の点では地上での測定データにかなわないが、網羅性があり広域な空間線量率分布の概況の把握には適している。航空機モニタリングの測定データは行政による避難指示地域の設定・解除の検討に使われており、地上の測定データがない場合における個人被ばく線量のスクリーニング的な評価にも有効だと考えられる。一方、地上での測定データは詳細な空間線量率の変化の把握は可能だが、個人の行動に沿った空間線量率データを地上測定により把握するにはかなりのリソースが必要となる。利用可能な空間線量率データに基づく個人被ばく線量を評価する上でそれぞれの空間線量率の関係や個人の行動に伴うばらつきの程度を知ることが、実態に合う個人被ばく線量の評価と評価結果の解釈において重要である。

そこで、平成 30 年度は、避難指示解除区域等における調査において筆者らこれまでに取得した個人被ばく線量の実測 (D-シャトル使用)、NaI シンチレーションサーベイメーター (TCS-171、日立アロカメディカル社製) による周辺線量当量の測定データと生活パターン情報と公表されている様々な空間線量率データ (航空機モニタリング、モニタリングポスト等) や土地利用等との関係について解析を行った。さらに、新たに現場にて個人線量 (D-シャトル) とサーベイメーターによる周辺線量当量による測定を行い、航空機モニタリングによる周辺線量当量 (以下、空モニの空間線量率と表す) との関係を検討した。具体的には以下の項目について知見を得るための解析を実施した。

- 個人被ばく線量の測定値のばらつきの検討
利用データ：筆者らが住民の協力を得てこれまでに飯舘村等旧避難指示解除準備地域において取得した個人被ばく線量の測定値
- 空モニの空間線量と地上での空間線量の測定値との関係 (図1の①と②部分)
利用データ：空モニの空間線量率データ、リアルタイムモニタリングデータ、環境モニタリングデータ
- 空モニの空間線量と地上における測定値と D-シャトルの測定値との関係 (図1の③部分)
利用データ：現地でのサーベイメーターによる測定で取得した空間線量率データとシャトルによる個人線量データおよび空モニの空間線量率データ。現場での測定については、平成 30 年度は 6 カ所を実施した。

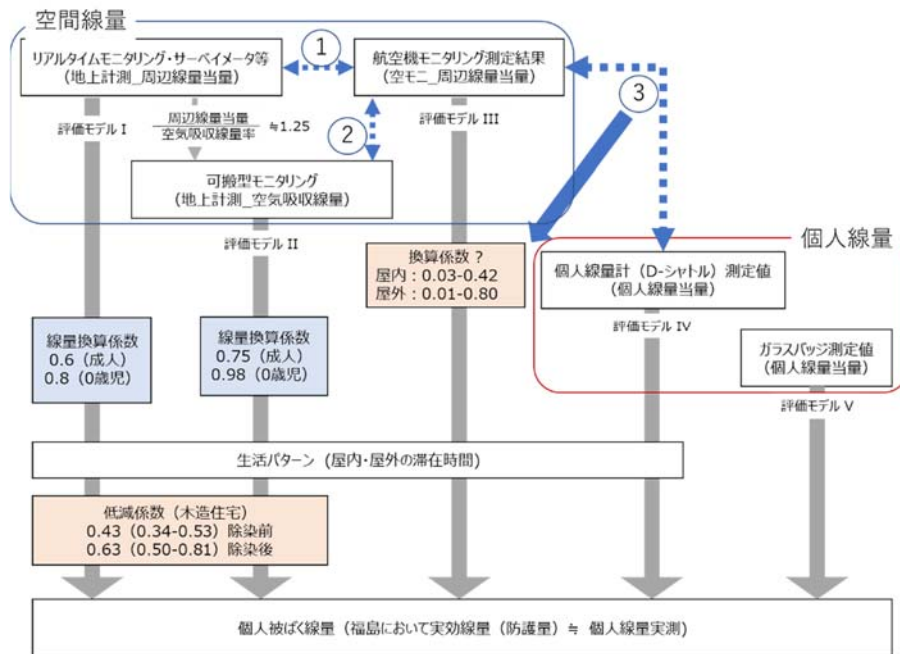


図 1 各種線量データと個人被ばく線量の評価モデルの関係

2. 被ばく低減策の検討や効果の評価を支援する計測・解析技術の確立

住民の被ばく線量を効果的に低減させるためには、どこでどれくらい被ばくしているかを知り、その情報に基づき放射性物質の低減策（除去や遮蔽等）を検討することが重要となる。物理的な対応としては、一様に除染する方法もあるが、効率的・効果的に線量を低減させるためには、個人の被ばく線量に大きく寄与する場所の空間線量の線源を把握することが不可欠である。そこで、本課題では、個人被ばく線量の計測とその位置情報を同時に取得することを可能にする改良型無線通信機能搭載小型個人線量計の開発と、放射性物質の線源や寄与を把握する測定器の開発と実証を行う。改良型無線通信機能搭載小型個人線量計については、試作機の開発・無線通信システムによる校正システムの開発と機能向上を行う。放射性物質の線源や寄与を把握する計測器については、コリメートされた CsI(Tl)シンチレータとそのスペクトル測定、また測定データの解析によって、線量の方向寄与率、また汚染域のおおよその距離が把握できる計測器と土壌中の放射性物質の放射能濃度を、サンプリング無しに現地で測定できる計測器の開発を行う。

平成 30 年度は、改良型無線通信機能搭載小型個人線量計については試作機の開発を行った。土壌放射能濃度測定器について、CsI シンチレータと MPPC との組み合わせによるコリメート式の測定器、またより広範囲を計測できるプラスチックシンチレータによる測定器での土壌中の放射能測定の検証を行った。また CsI 検出器について測定値を解析したパラメータを用いてのフィールドで使用できる測定システム(ソフトウェア)の開発を行った。また測定器を避難指示解除区域等に持ち込み、住民の方々の協力を得て現場での測定を行い、住民の方からの操作性についての意見を伺った。

(倫理面への配慮)

本研究の推進にあたり、地元住民との協力により実施する被ばく線量や現場での線量測定については、国立研究開発法人産業技術総合研究所の人間工学実験委員会への申請・承認を得て実施する。線量の測定に協力いただく住民については、研究内容を事前に十分に説明し、文書にて同意を得たうえで実施する。取得したデータについては個人が特定されないよう十分に配慮し、参加者本人から承諾を得た範囲で使用する。避難指示を受けている地域での調査については事前に自治体の許可を得て実施する。

III. 研究結果

1. 実態に合う個人被ばく線量の評価手法の開発・検証とツール化

1-1 個人被ばく線量の測定値のばらつき

飯舘村内において測定した個人被ばく線量の値を図 2 に、それぞれの調査協力者の測定データの統計値を表 1 に示す。N1 から N38 は Naito et al. (2017)⁶⁾の解析に用いた元データである。N39～N45 のデータは 2016 年度に飯舘村で実施された農作物の実証栽培協力者のデータである（未公表）。また飯舘村内において測定した個人被ばく線量データのうち、自宅滞在時間と屋外活動時間がそれぞれ 10 時間以上ある調査協力者のデータを図 3・表 2 と図 4・表 3 に示す。測定値のばらつきの程度の指標として、ここでは測定データの四分位範囲と 95 パーセンタイル値と 5 パーセンタイル値との比（95：5 比）に着目した。これらの指標は個人被ばく線量の推定において、どの程度のばらつきを考慮すればよいかを検討する際の参考となる。95：5 比の計算は測定データが 20 以上ある調査協力者のみを対象とした。調査協力者における個人被ばく線量の測定値の四分位範囲は、中央値：0.12（最小-最大：0.04-0.43）、平均値：0.13 であった。95：5 比は、中央値：5.69（最小-最大：2.20-17.40）、平均値：5.94 であった。飯舘村内の屋外活動時でみると、調査協力者における個人被ばく線量の測定値の四分位範囲は、中央値：0.08（最小-最大：0.04-0.48）、平均値：0.11 であった。95：5 比は、中央値：4.96（最小-最大：2.28-14.60）、平均値：5.81 であった。村内の自宅滞在時でみると、調査協力者における個人被ばく線量の測定値の四分位範囲は、中央値：0.14（最小-最大：0.05-0.66）、平均値：0.19 であった。95：5 比は、中央値：2.82（最小-最大：2.07-10.67）、平均値：3.88 であった。屋外活動時と自宅滞在時を比較すると、自宅滞在時の 95：5 比の値の方が屋外活動時と比べて有意に小さい（Mann-Whitney U 検定）傾向がみられた。

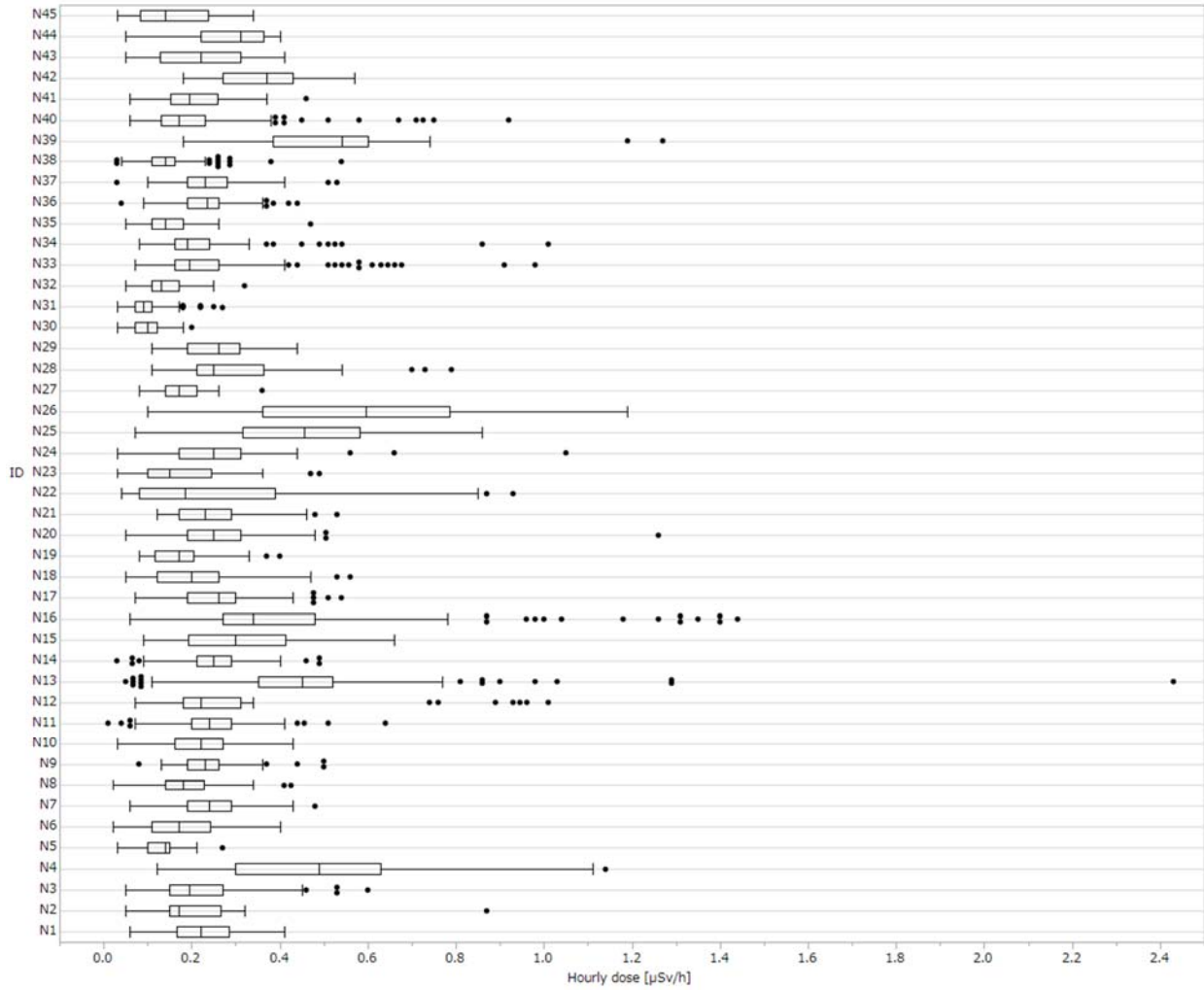


図2 飯舘村の住民等に協力いただき取得した個人被ばく線量の測定値の分布

表1 飯舘村内で取得した個人線量データの統計値

ID	N	平均	中央値	幾何平均	最小値	最大値	四分位範囲	変動係数	95:5比
		μSv/h						%	
N1	29	0.22	0.22	0.20	0.06	0.41	0.12	44	5.79
N2	17	0.22	0.17	0.18	0.05	0.87	0.12	82	-
N3	88	0.23	0.20	0.20	0.05	0.60	0.12	49	5.39
N4	51	0.50	0.49	0.44	0.12	1.14	0.33	53	7.28
N5	39	0.13	0.14	0.12	0.03	0.27	0.05	36	4.20
N6	70	0.18	0.17	0.16	0.02	0.40	0.13	50	6.39
N7	107	0.24	0.24	0.23	0.06	0.48	0.10	32	3.07
N8	60	0.19	0.18	0.17	0.02	0.42	0.09	39	3.75
N9	163	0.23	0.23	0.22	0.08	0.50	0.07	28	2.36
N10	150	0.22	0.22	0.19	0.03	0.43	0.11	41	5.21
N11	115	0.25	0.24	0.22	0.01	0.64	0.09	39	5.74
N12	41	0.33	0.22	0.26	0.07	1.01	0.13	82	7.84
N13	196	0.45	0.45	0.40	0.05	2.43	0.17	53	7.05
N14	155	0.25	0.25	0.23	0.03	0.49	0.08	33	4.24
N15	38	0.31	0.30	0.28	0.09	0.66	0.22	48	6.54
N16	168	0.43	0.34	0.35	0.06	1.44	0.21	66	11.17
N17	73	0.26	0.26	0.25	0.07	0.54	0.11	34	3.27
N18	129	0.20	0.20	0.18	0.05	0.56	0.14	50	5.69
N19	29	0.17	0.17	0.16	0.08	0.40	0.09	47	4.81
N20	73	0.26	0.25	0.23	0.05	1.26	0.12	59	5.79
N21	35	0.25	0.23	0.24	0.12	0.53	0.12	39	3.40
N22	58	0.27	0.19	0.19	0.04	0.93	0.31	87	17.02
N23	41	0.19	0.15	0.16	0.03	0.49	0.15	58	13.50
N24	60	0.26	0.25	0.23	0.03	1.05	0.14	57	6.16
N25	44	0.45	0.46	0.40	0.07	0.86	0.27	42	5.81
N26	44	0.58	0.60	0.50	0.10	1.19	0.43	48	10.54
N27	97	0.17	0.17	0.17	0.08	0.36	0.07	28	2.20
N28	50	0.30	0.25	0.27	0.11	0.79	0.15	49	5.69
N29	56	0.26	0.26	0.25	0.11	0.44	0.12	32	2.93
N30	54	0.10	0.10	0.09	0.03	0.20	0.05	38	4.31
N31	564	0.09	0.09	0.08	0.03	0.27	0.04	37	3.75
N32	116	0.14	0.13	0.13	0.05	0.32	0.06	31	2.63
N33	124	0.25	0.20	0.21	0.07	0.98	0.10	65	6.25
N34	133	0.22	0.19	0.20	0.08	1.01	0.08	55	3.85
N35	162	0.15	0.14	0.14	0.05	0.47	0.07	34	2.86
N36	110	0.23	0.24	0.22	0.04	0.44	0.07	30	2.80
N37	115	0.24	0.23	0.23	0.03	0.53	0.09	31	2.98
N38	392	0.14	0.14	0.13	0.03	0.54	0.05	35	3.14
N39	29	0.53	0.54	0.48	0.18	1.27	0.22	46	6.83
N40	179	0.21	0.17	0.18	0.06	0.92	0.10	63	5.86
N41	24	0.21	0.20	0.19	0.06	0.46	0.11	45	6.73
N42	27	0.35	0.37	0.34	0.18	0.57	0.16	30	3.06
N43	58	0.22	0.22	0.19	0.05	0.41	0.18	48	6.73
N44	22	0.28	0.31	0.26	0.05	0.40	0.14	35	6.90
N45	36	0.16	0.14	0.13	0.03	0.34	0.16	57	8.39

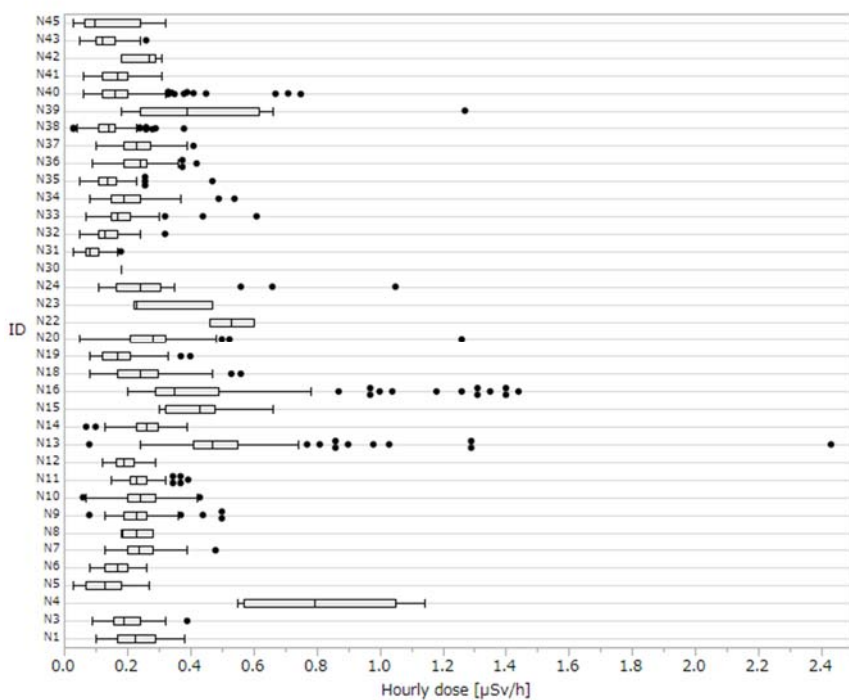


図3 飯舘村における自宅滞在時の個人線量の測定値
測定ポイント数が10以上ある調査対象者を抽出。

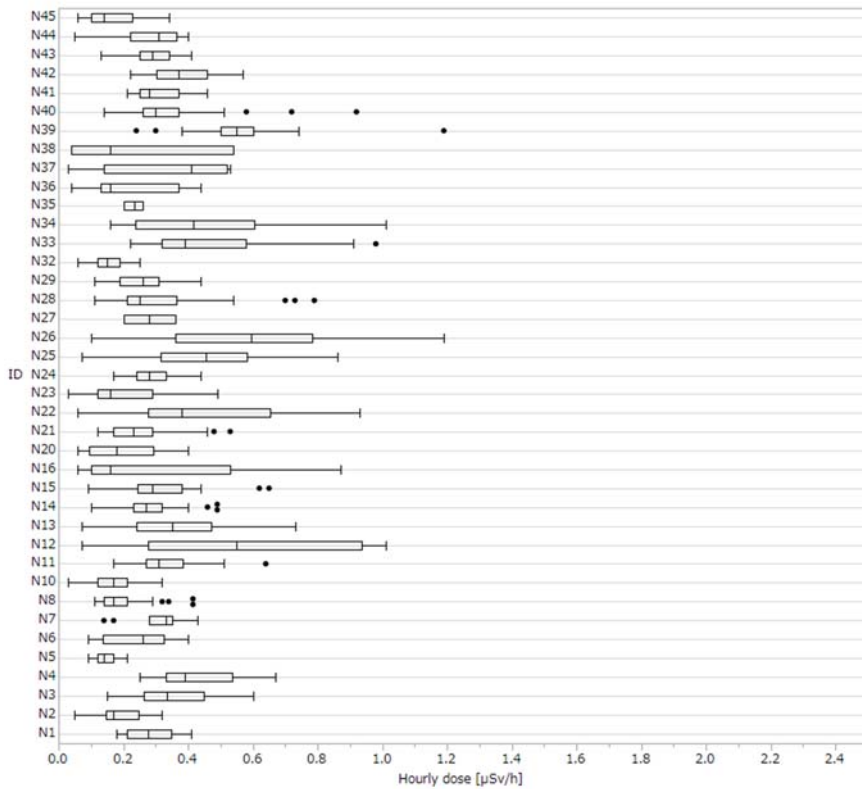


図4 飯舘村における屋外活動時の個人線量の測定値
測定ポイント数が10以上ある調査対象者を抽出。

表2 飯館村内で取得した個人線量データの統計値（自宅滞在10時間以上）

ID	N	μSv/h						変動係数 %	95:5比
		平均	中央値	幾何平均	最小値	最大値	四分位範囲		
N1	14	0.23	0.23	0.22	0.10	0.38	0.12	32	-
N3	57	0.20	0.19	0.19	0.09	0.39	0.09	31	2.61
N4	14	0.83	0.80	0.80	0.55	1.14	0.48	27	-
N6	31	0.17	0.17	0.16	0.08	0.26	0.07	29	2.88
N7	90	0.24	0.24	0.23	0.13	0.48	0.08	26	2.32
N9	163	0.23	0.23	0.22	0.08	0.50	0.07	28	2.36
N10	103	0.25	0.24	0.23	0.06	0.43	0.09	31	4.31
N11	67	0.24	0.23	0.24	0.15	0.39	0.05	21	2.23
N12	25	0.19	0.19	0.19	0.12	0.29	0.06	20	2.26
N13	147	0.51	0.47	0.48	0.08	2.43	0.14	45	2.74
N14	76	0.26	0.26	0.25	0.07	0.39	0.07	23	2.63
N15	10	0.43	0.43	0.42	0.30	0.66	0.16	25	-
N16	139	0.46	0.35	0.40	0.20	1.44	0.20	61	5.73
N18	89	0.24	0.24	0.22	0.08	0.56	0.13	38	4.45
N19	27	0.18	0.17	0.16	0.08	0.40	0.09	45	4.85
N20	55	0.28	0.28	0.26	0.05	1.26	0.11	56	4.11
N24	22	0.29	0.24	0.25	0.11	1.05	0.14	73	8.89
N31	431	0.09	0.08	0.08	0.03	0.18	0.04	33	3.50
N32	99	0.14	0.13	0.13	0.05	0.32	0.06	31	2.63
N33	95	0.18	0.17	0.17	0.07	0.61	0.06	38	2.68
N34	122	0.20	0.19	0.19	0.08	0.54	0.09	34	2.58
N35	158	0.14	0.14	0.14	0.05	0.47	0.06	34	2.75
N36	101	0.23	0.24	0.22	0.09	0.42	0.07	27	2.62
N37	110	0.23	0.23	0.23	0.10	0.41	0.08	25	2.60
N38	389	0.14	0.14	0.13	0.03	0.38	0.05	32	3.07
N39	10	0.49	0.39	0.41	0.18	1.27	0.38	67	-
N40	152	0.18	0.16	0.16	0.06	0.75	0.08	59	5.48
N41	17	0.17	0.17	0.16	0.06	0.31	0.08	36	-
N43	27	0.13	0.12	0.12	0.05	0.26	0.06	41	5.04
N45	16	0.14	0.10	0.11	0.03	0.32	0.18	69	-

表 3 飯館村内で取得した個人線量データの統計値（屋外活動 10 時間以上）

ID	N	μSv/h						変動係数 %	95:5 比
		平均	中央値	幾何平均	最小値	最大値	四分位範囲		
N1	10	0.28	0.28	0.27	0.18	0.41	0.14	28	-
N2	12	0.18	0.17	0.17	0.05	0.32	0.10	41	-
N3	20	0.36	0.34	0.34	0.15	0.60	0.19	34	3.92
N4	24	0.43	0.39	0.41	0.25	0.67	0.21	30	2.62
N5	23	0.14	0.14	0.14	0.09	0.21	0.05	26	2.33
N6	29	0.24	0.26	0.21	0.09	0.40	0.19	43	4.22
N7	11	0.31	0.33	0.29	0.14	0.43	0.07	27	-
N8	36	0.20	0.17	0.18	0.11	0.42	0.07	39	3.47
N10	32	0.17	0.17	0.15	0.03	0.32	0.09	40	5.37
N11	33	0.33	0.31	0.32	0.17	0.64	0.12	29	3.23
N12	12	0.58	0.55	0.45	0.07	1.01	0.66	61	-
N13	35	0.35	0.35	0.31	0.07	0.73	0.23	46	8.13
N14	56	0.27	0.27	0.26	0.10	0.49	0.09	30	3.39
N15	22	0.31	0.29	0.29	0.09	0.65	0.14	43	6.72
N16	23	0.30	0.16	0.21	0.06	0.87	0.43	85	13.65
N20	12	0.20	0.18	0.16	0.06	0.40	0.20	58	-
N21	35	0.25	0.23	0.24	0.12	0.53	0.12	39	3.40
N22	24	0.45	0.38	0.37	0.06	0.93	0.38	55	13.56
N23	27	0.20	0.16	0.17	0.03	0.49	0.17	54	14.60
N24	29	0.29	0.28	0.28	0.17	0.44	0.09	23	2.44
N25	44	0.45	0.46	0.40	0.07	0.86	0.27	42	5.81
N26	44	0.58	0.60	0.50	0.10	1.19	0.43	48	10.54
N28	50	0.30	0.25	0.27	0.11	0.79	0.15	49	5.69
N29	56	0.26	0.26	0.25	0.11	0.44	0.12	32	2.93
N32	16	0.16	0.15	0.15	0.06	0.25	0.07	30	-
N33	29	0.46	0.39	0.43	0.22	0.98	0.26	41	4.20
N34	10	0.46	0.42	0.39	0.16	1.01	0.37	61	-
N39	19	0.55	0.55	0.53	0.24	1.19	0.10	35	-
N40	27	0.34	0.30	0.31	0.14	0.92	0.11	50	5.68
N42	22	0.38	0.37	0.37	0.22	0.57	0.16	26	2.56
N43	31	0.30	0.29	0.29	0.13	0.41	0.09	25	2.56
N44	22	0.28	0.31	0.26	0.05	0.40	0.14	35	6.90
N45	20	0.17	0.14	0.15	0.06	0.34	0.13	49	5.56

自宅滞在と屋外活動における個人線量の測定ポイント数が 10 以上ある調査対象者（N=21）

について、個人線量の測定値を比較した（図5）。個人線量の測定値を自宅滞在時と屋外活動時に分けてMann-Whitney U検定を行ったところ（両側 $p > 0.05$ の有意水準で判定）、15人に有意な差が見られた。15人のうち6人（N4, N10, N13, N15, N16, N20）は、自宅滞在時の測定値が屋外活動時の測定値よりも有意に高かった。それ以外の9人は屋外活動時の測定値の方が自宅滞在時よりも有意に高かった。

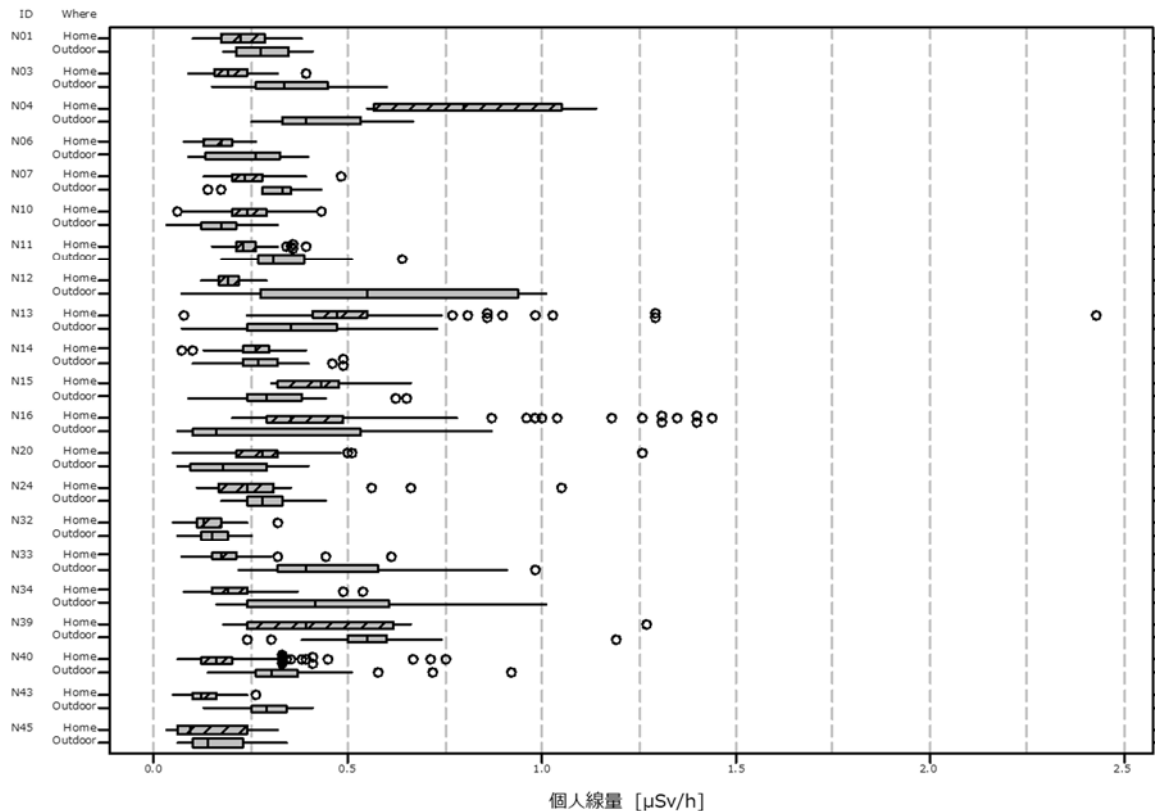


図5 自宅滞在時と屋外活動時における個人線量の測定値の比較

個人線量の測定ポイントが10以上ある個人を対象。N1, N14, N24, N32, N39, N45は有意差なし。

1-2 空モニの空間線量率と地上における測定値（周辺線量当量と空気吸収線量）との関係

航空機モニタリングによる空間線量率（空モニの空間線量率）と地上測定による空間線量率（周辺線量当量あるいは空気吸収線量）との関係および空モニと地上測定との比を図6と図7に示す。空モニの空間線量率は、平成30年9月から11月にかけて実施された航空機モニタリングの結果より得られた平成30年11月15日時点の空間線量率の分布より、地上測定と同じ場所の空間線量率の値を決定した。地上での空間線量率の測定には周辺線量当量率の値[$\mu\text{Sy/h}$]が表示されているリアルタイム線量測定システムと空気吸収線量率の値[$\mu\text{Gy/h}$]が表示されている可搬型モニタリングポストが存在する。本解析では、空モニの空間線量率と周辺線量当量率との関係（図6）および空モニの空間線量率と空気吸収線量率との関係（図7）に分けて表示した。空モニの空間線量率と地上測定による空間線量率の間には相関がみられ（図7はやや弱い）、単回帰分析の傾きは、リアルタイム線量測定システムと可搬型モニタリングで、それぞれ0.5と0.2程度であった。地上測定値に対する空モニの空間線量率の比の値は、リアルタイム線量測定システムでは中央値:0.50、

四分位範囲：0.41-0.62、最小-最大：0.18-1.68、可搬型モニタリングでは、中央値：0.32、四分位範囲：0.23-0.46、最小-最大：0.12-0.54であった。飯館村における地上のモニタリングポストの場所と各場所における地上測定値に対する空モニの空間線量率の比を地図上にプロットした（図8と図9）。その結果、地上測定値に対する空モニの空間線量率の比と地域との間に明確な傾向はみられなかった。

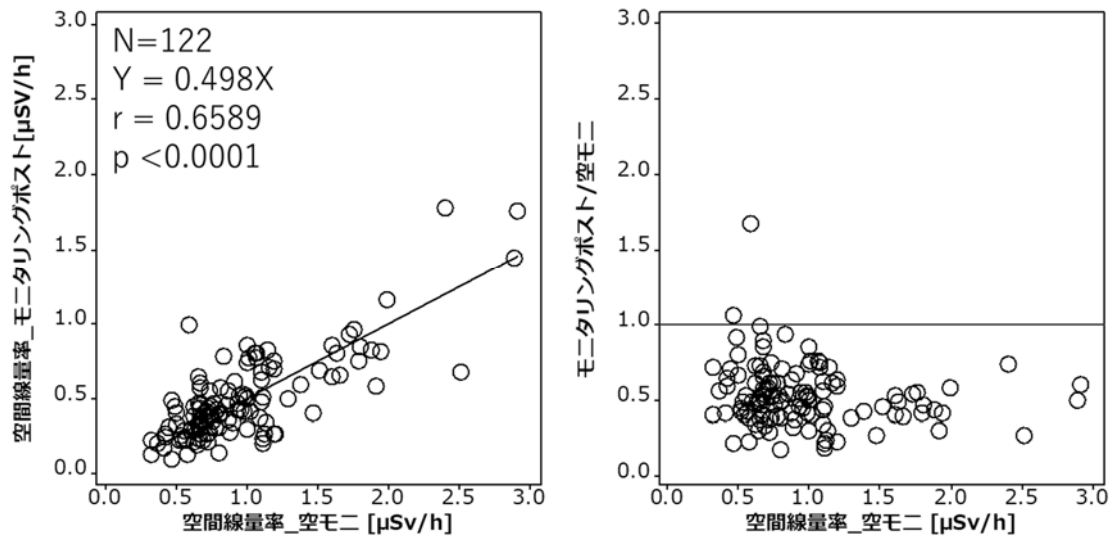


図6 空モニに基づく空間線量率とリアルタイム線量測定システム（飯館村モニタリングポスト含む）による空間線量率の関係

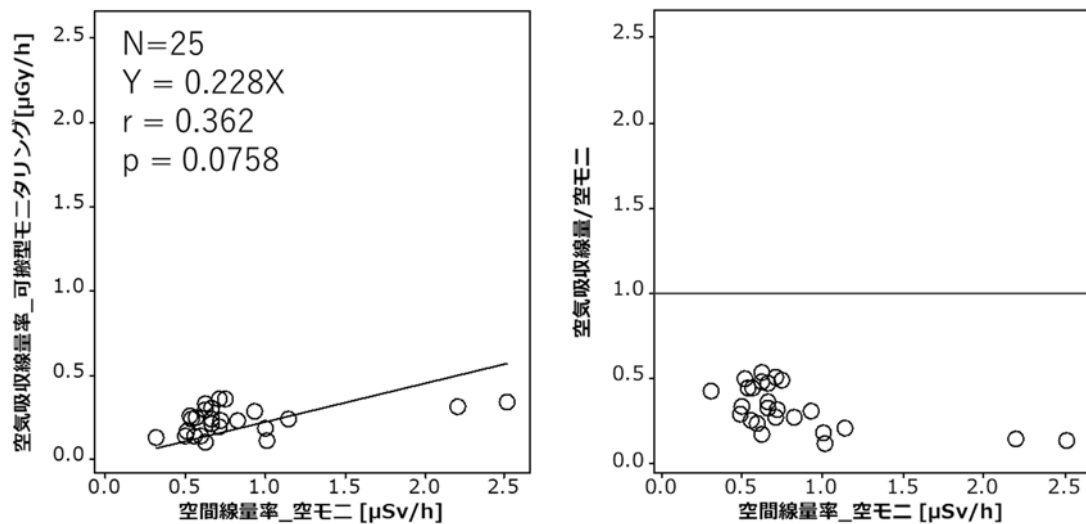


図7 空モニに基づく空間線量率と可搬型モニタリングポストによる空気吸収線量率の関係

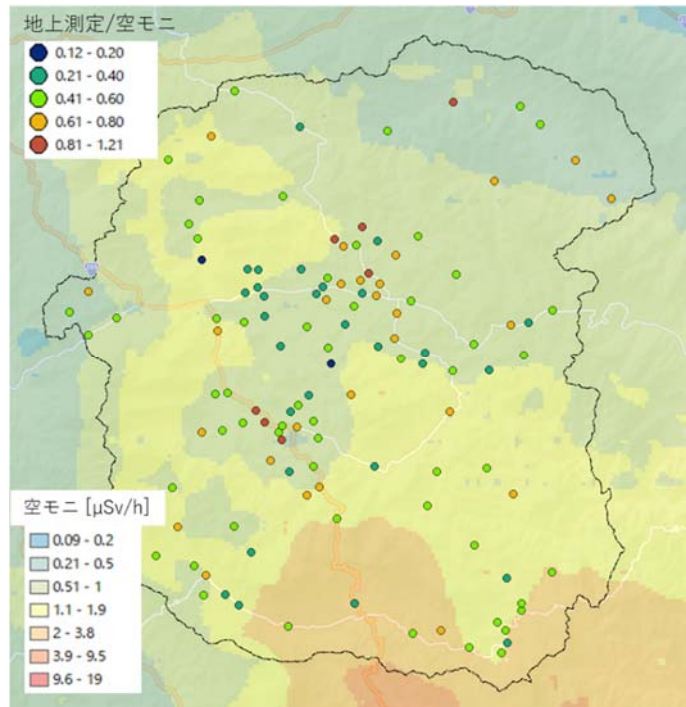


図8 リアルタイム線量測定システムの測定地点と各地点における地上測定値に対する空モニの空間線量率の比

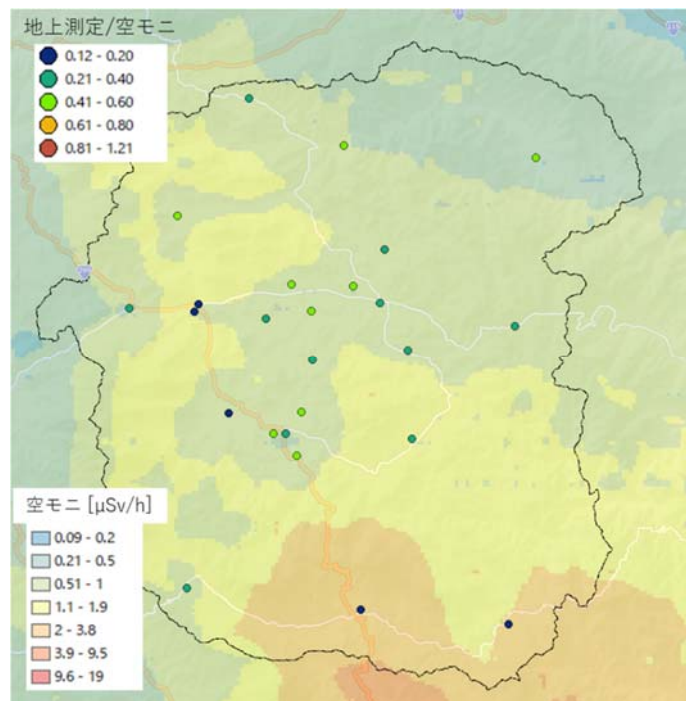


図9 可搬型モニタリングポストの測定地点と各地点における地上測定値に対する空モニの空間線量率の比

1-3 空モニの空間線量と地上における測定値と D-シャトルの測定値との関係

筆者らの飯舘村における個人被ばく線量の調査 (Naito et al. 2017) では、見守り隊や特例宿泊等、日常とは異なる生活パターンであったため、実態の即したモデルパラメータの検討には限界があった。そこで、畑や庭のような個人の通常行動する場所において、サーベイメータによる測定値と D-シャトルの測定値、空モニの空間線量との関係性を評価した。平成 30 年度に調査を実施した場所を表 4 に、その時に取得した線量データを表 4 と図 10 に示す。空モニの空間線量率とサーベイメータによる測定値を比較すると、中央値で見ると、伊達市果樹園以外は、空モニの空間線量率の方がサーベイメータによる測定値よりも高い値であった。D-シャトルの測定値はいずれも空モニの空間線量率の値よりも低かった。D-シャトルの測定値は、サーベイメータによる測定値よりも低い傾向がみられるが、中央値で見ると D-シャトルの測定値の方がサーベイメータによる測定値よりも大きくなるケースも見られた。地上でのサーベイメータによる空間線量率の測定値は、自宅の庭や圃場等比較的狭い範囲であっても、ばらつきが大きくなることが示された。

表 4 同一場所における空モニ空間線量、地上での周辺線量当量測定値と個人線量測定値

ID	調査場所	調査日時	線量 [μSv/h]		
			空モニ [□]	地上測定 ^{□□}	個人線量 ^{□□□}
Ic41	川俣町山木屋市区農地	18.6.21	0.47	0.25 [0.15 – 0.55]	0.28 [0.25 – 0.35]
Ic42	飯舘村比曾住宅庭	18.6.21	1.22	0.28 [0.16 – 0.57]	0.37 [0.35 – 0.40]
Ic43	伊達市果樹園	18.6.22	0.50	0.56 [0.37 – 0.59]	0.34 – 0.50
Ic44	川俣町山木屋地区住宅庭	18.10.31	0.78	0.37 [0.18 – 0.67]	0.32 [0.28 – 0.38]
Ic45	飯舘村住宅庭	18.11.1	1.43	0.76 [0.38 – 1.11]	0.45 [0.42 – 0.59]
Ic46	飯舘村住宅庭	18.11.1	0.68	0.31 [0.14 – 0.75]	0.14 [0.12 – 0.28]
Ic47	飯舘村住宅庭	19.2.5	1.18	0.76 [0.37 – 1.28]	0.63 [0.57 – 0.64]

□空モニ（航空機モニタリング）の空間線量率は調査日に減衰補正した推定値。

□□中央値[最小-最大]。地上測定はサーベイメータ（TCS-171）を用いて住宅周辺や農地全体を地上 1m の高さにて網羅的に測定。

□□□個人線量は D-シャトルによる測定値。なお Ic45 と Ic47 は同一の場所である。

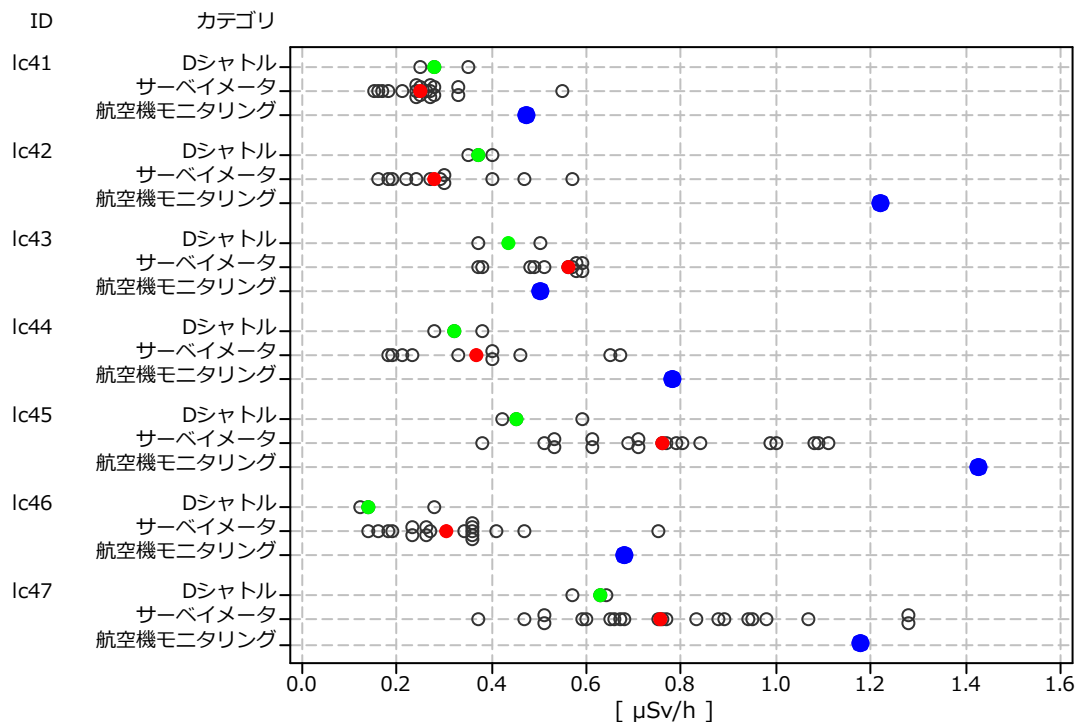


図 10 同一場所における空モニの空間線量、サーベイメータによる地上での周辺線量当量の測定値と D シャトルによる個人線量の測定値の関係
 緑および赤丸は各カテゴリの中央値を表す。

2. 被ばく低減策の検討や効果の評価を支援する計測・解析技術の確立

2-1 改良型無線通信機能搭載小型個人線量計の開発

本課題では、Bluetooth 無線通信に対応し省電力で長時間使用可能な個人線量計の開発を行っている。平成 30 年度は、この線量計のセンサー基板部の開発とこの基板に無線通信や表示機能を追加した線量計プロトタイプ of 電氣的性能の確認を行った。

図 11 に開発を行ったセンサー基板の外観を示す。このセンサー基板は、放射線を検知する放射線センサーと、ユーザーの使用時に衝撃等があると放射線センサーが誤検知することからそれを防ぐ衝撃センサーを搭載しており、マイクロコントローラによって放射線センサーや衝撃センサーの信号を処理し、線量を積算する機能を持つ。このセンサー基板は、基板端の端子から外部のマイクロコントローラとシリアル通信で随時通信が可能である。

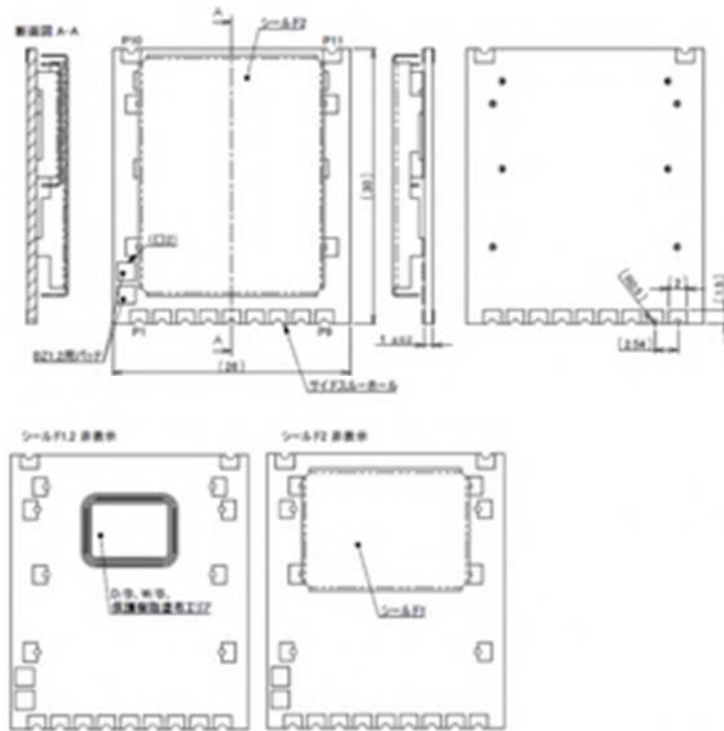


図 11 開発した線量計センサー基板

このセンサー基板と Bluetooth 搭載のマイクロコントローラ及び省電力表示器を組み合わせ、電気的動作確認用線量計プロトタイプを試作した（図 12）。このプロトタイプの電気的特性を評価した結果、定常的な計測時の消費電流は 3V の電池で $40\mu\text{A}$ 以下、Bluetooth 通信時は 5 mA 程度であることを確認した。この結果から、Bluetooth 通信を連続的に行うと電池の消費が激しいが、間欠的に通信を行えば長時間の線量計測ができることがわかった。たとえば、1 時間毎のデータを 1 日 1 回通信する程度であれば、500 mAh の容量の電池で 1 年以上の電池寿命を期待できる。



図 12 線量計プロトタイプ

今回のプロトタイプ機の試作で配線等を改良すべき点も見つかったことから、今後基板等の改良を行い、放射線線量計としての性能を確認する予定である。

2-2 土壤放射能測定器及び指向性線量測定器の開発

住民による放射線測定を可能にするサンプリング不要の土壤放射能測定器の開発を進めた。CsI(Tl)シンチレータと MCCP の組み合わせによる、スペクトル測定ができる機器となっており、放射性物質の大よその深度分布が分かる仕組みとなっている（図 13）。



図 13 開発中の CsI(Tl)検出器を用いた土壤放射能測定器

平成 30 年度は、飯舘村において住宅の庭や田畑の計測を複数点において実施した。その際の課題点として、測定器を設置する場所によって計測結果が大きく異なることが分かった。本測定器は、約 2.5 cm 角の立方体の CsI(Tl)を使用しており、写真でもわかるように周りからの散乱線が検出器に入射しないように設計されている。これは、スペクトル測定により放射性物質の深度分布を推定する際に、土壤中の散乱線成分を明確に測定する必要があるためであった。このコリメータにより、計測しているエリアが非常に小さく、数 cm 位置がずれただけで、計測量が 5 倍程度変化することが分かった。特に放射性物質が一か所に蓄積されたホットスポットと呼ばれる場所で顕著であった。そのため、検出器を設置する位置によって、周辺の平均的な放射能濃度を過小評価する可能性があることが分かった。検出器を地上から約 1 m の位置で計測することを試みた結果、地面に設置させて計測した場合と比較して、計数率は 30 %程度低下したが、10 cm 程度横方向に位置を変えても計測結果はほとんど変わらなかった。検出器位置を地面から離れたことにより、広範囲のγ線を計測できることから、そのエリアの平均的な大よその放射能濃度を知ることが可能であることが検証できた。また住民の方との意見交換でも、2 桁や 3 桁の詳細な放射能濃度を知るよりも、広いエリアに対して大よそでも良いので放射能濃度を知ることが必要との意見を得ることができた。

IV. 考察

避難指示解除地域である飯舘村の住民の協力を得てこれまでに取得した個人被ばく線量の測定値（D シャトルによる測定値）のばらつきの解析を行った結果、ばらつきの大きさは個人の生活様式や滞在場所により大きく異なることが改めて確認された。解析に用いた個人被ばく線量のデータは避難指示解除前に取得したデータであり、調査に協力いただいた住民の多くは避難先からの通いであったり、一時的な滞在であったりだったため、特に屋外活動時の個人被ばく線量データは、日常的な生活における屋外活動とは言い難いケースのデータが多く含まれている可能性が考えられた。見守り隊として屋外で活動しているときに取得した個人被ばく線量のデータは、住宅周り等を徒歩で確認しているときのデータもあれば、車で移動中のデータも含まれているが、本解析では両者を分けることはできていない。また自宅滞在時の測定データも大部分は屋内に滞在していることを確認しているが、細かい時間でみると、庭先での作業等、屋外での活動と考えられるようなデータも含まれている。滞在場所ごとの個人被ばく線量のばらつきの大きさの把握は、より実態に即した個人被ばく線量の評価において貴重な知見となる。これまでの調査で得られた滞在場所ごとの個人被ばく線量のばらつきの情報は、滞在場所や生活様式の区別がやや不明瞭であった。滞在場所や行動様式の違いとばらつきの関係が個人被ばく線量の評価結果にどの程度影響を与えるかはわからないが、避難指示解除後に日常的な生活を送っている住民の滞在場所や生活様式を把握できる個人被ばく線量の調査を行うことは、個人被ばく線量の評価の高度化や結果の説明や解釈にとって重要であると考えられる。

地上での空間線量率の測定値に対する空モニの空間線量率の比は、ばらつきはあるものの、大半の地点で 0.5 より小さい値であった。空モニの空間線量率は面的な平均値である。面的な値は除染がされていない山林地帯の空間線量率も含む平均的な値である。一方、地上におけるモニタリングポストの指示値はモニタリングポスト設置場所の測定値である。モニタリングポスト設置場所は、除染等により線量の低下率が大きいと、面的な平均値よりもモニタリングポストの測定値の方が小さくなると考えられる。可搬型モニタリングポストの測定値に対する空モニの空間線量率の比が、リアルタイム線量測定システムのそれより小さくなる要因は、そもそも周辺線量当量と空気吸収線量の定義（仕組み）の違いによる部分もあるが、可搬型モニタリングポストの方が集会所や交差点など舗装された開けた場所に設置されている傾向があり、環境条件的に空モニの空間線量率より線量が低くなりやすいことが考えられた(例えば図 14)。一方、地上での空間線量の測定値に対する空モニによる空間線量率の比が大きい場所は、山の斜面に近い場所が多かった。山の斜面に近い場所に設置されたモニタリングポストは、山の斜面に沈着した放射性物質の影響を受けるため、測定値は空モニの空間線量率の値と同程度かそれ以上の値を示すことがあることが考えられた（例えば図 15）。地上での測定値に対する空モニの空間線量率の比の値が 1.68 を示した場所（図 16）は山の斜面ではなく、なぜこのような大きい値となるかの原因はわからなかった。空モニの空間線量率と地上での空間線量率や個人線量の測定値との関係についての情報は、空モニによる空間線量率を個人被ばく線量の評価に用いる際の留意点や評価結果の解釈において貴重な知見となる。本解析の結果は、周辺線量当量と空気吸収線量の違いや空からの空間線量の測定値と地上での測定値との関係など、線量概念や実態を正しく理解し、利用可能な空間線量率に整合する評価手法やモデルパラメータを使うことの重要性を改めて示している。空モ

ニによる空間線量率に基づき個人の被ばく線量を評価する場合、対象者の主たる行動場所の特徴（除染の有無や地表面の状況、山の斜面の存在など）に応じて換算係数の値や範囲を明らかにすることは合理性の高い評価手法の確立に貢献すると考えられる。



図 14 舗装された地表面近くに設置されている可搬型モニタリングポスト



図 15 山の斜面近くに設置されているリアルタイム線量測定システムのモニタリングポスト



図 16 地上での測定値に対する空モニの空間線量率の比が最も大きかった場所

V. 結論

飯舘村等において取得した個人被ばく線量の測定データ（元データ）を活用して、時間あたりの測定値のばらつきの解析を行った。45人分のデータの解析を行い、個人間と個人内や自宅滞在時と屋外活動時における時間あたりの個人被ばく線量のばらつきの程度を把握した。滞在場所が不明瞭等、さらなる検証が必要な箇所はあるが、限られた空間線量率の情報から個人被ばく線量を評価する際にどの程度の不確実性を考慮すれば良いか等の検討に資する知見を得ることができた。定点における航空機モニタリングの空間線量率と地上測定による空間線量率との比較を行った結果、面的な除染が実施された地域において、地上で測定された空間線量率の値は対応する空モニの空間線量率の値より、大半の場所において小さい値であった。除染の有無、土地利用、山の斜面からの距離等の要因により、地上測定に対する空モニの比の大きさは異なることが確認された。また、畑や庭のような住民の日常的な生活圏において、サーベイメータによる測定値とD-シャトルの測定値、空モニの空間線量との関係を比較した結果、サーベイメータによる測定値は、自宅の庭や圃場等比較的狭い範囲であっても、ばらつきが大きくなることが確認された。

Bluetooth無線通信に対応し省電力で長時間使用可能な個人線量計の開発については、線量計のセンサー基板部の開発とこの基板に無線通信や表示機能を追加した線量計プロトタイプの電気的性能の確認を行った。土壌放射能測定器については、現場にて複数回の測定を行い、課題を明らかにするとともに住民との意見交換により現場ニーズを把握し、今後のシステム開発の方向性を明確化した。

VI. 次年度以降の計画

- 実態に合う個人被ばく線量の評価手法の開発・検証とツール化
個人被ばく線量の評価手法の検証に資する個人線量データ（行動記録と GPS 情報も含む）を飯舘村等避難指示解除地域において取得する。各評価モデルのパラメータの値・範囲とその根拠についてまとめ、複数のシナリオに基づき評価モデルの比較検討を行い、それぞれのモデルの特徴と限界を踏まえた有効な使い方についての考え方を提示する。本研究やこれまでの研究で得られたモデルパラメータを考慮し、不確実性の検討を可能にする個人被ばく線量評価ツールを開発する。
- 改良型無線通信機能搭載小型個人線量計の開発
プロトタイプ機の試作で配線等を改良すべき点も見つかったことから、今後基板等の改良を行い、放射線線量計としての性能を確認する。
- 土壌放射能測定器及び指向性線量測定器の開発
土壌放射能測定器については、現地において地上から 1 m 離れた位置での放射能濃度測定を行い、プラスチックシンチレータによる放射能濃度測定結果（実際の土壌の濃度データ）との比較を行う。また現状の検出器をドローンに搭載し、遠隔による計測を実証する。指向性線量測定器については、操作性をよりシンプルに、また表示についても情報が的確に分かるように現地の協力者と意見を伺いながら改良を行う。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

- A. 論文：査読あり
なし
- B. 論文：査読なし
なし
- C. 国内学会発表
1) 内藤航、上坂元紀. 避難指示区域における個人被ばく線量の計測・評価・コミュニケーションとその教訓. 日本リスク研究学会第 31 回年次大会, 2018.11.11, コラッセふくしま
- D. 国際学会発表
なし
- E. 著書
なし
- F. 講演
なし
- G. 主催した研究集会
なし

H. 特許出願・取得

なし

I. その他

なし

VIII. 参考文献

- 1) Hirayama H. An Evolution of Personal Dosimeter for widely Distributed ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs by Using EGS Code. *Radioisotopes*. 2013;62(6):335-45.
- 2) Saito K, Petoussi-Hens N. Ambient dose equivalent conversion coefficients for radionuclides exponentially distributed in the ground. *Journal of Nuclear Science and Technology*. 2014;51(10):1274-87.
- 3) Yoshida-Ohuchi H, Matsuda N, Saito K. Review of reduction factors by buildings for gamma radiation from radiocaesium deposited on the ground due to fallout. *J Environ Radioact*. 2018;187:32-9.
- 4) ICRP. Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation. ICRP Publication 1996;74.
- 5) Naito W, Uesaka M, Yamada C, Kurosawa T, Yasutaka T, Ishii H. Relationship between Individual External Doses, Ambient Dose Rates and Individuals' Activity-Patterns in Affected Areas in Fukushima following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident. *PLOS ONE*. 2016;11(8):e0158879.
- 6) Naito W, Uesaka M, Kurosawa T, Kuroda Y. Measuring and assessing individual external doses during the rehabilitation phase in Iitate village after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. *J Radiol Prot*. 2017;37(3):606-22.
- 7) 鈴木 良一, 大口 裕. 個人向け放射線線量計“D-シャトル”の開発. *RADIOISOTOPES*. 2018;67(9):447-52.

Practical Research on Measuring and Assessing Radiation Doses for Effective Individual External Dose Management

Wataru Naito

*National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,
Research Institute of Science for Safety and Sustainability*

Key word : Personal exposure dose, D-shuttle, radiation measurement, dose estimation, soil radioactivity measurement device, compact dosimeter with improved wireless communication

Abstract

To solve radiation risk problems in Fukushima, it is important to provide scientific evidence and appropriate measurement and assessment techniques that are applicable and communicable to the users. In the areas where the evacuation order was lifted and decontamination has been completed, accurate information on individual external doses is needed to help predicting future individual external doses of people with different time-activity patterns and examine effective radiation protection countermeasures. The goals of this project are to establish and verify radiation measurement and assessment methods that support the examination of effective individual external dose mitigation according to local or individual dose conditions. This project consists of two researches. One is the development and verification of a tool for assessing realistic individual external doses. The other is the establishment of radiological measurement and analysis techniques to help radiation dose mitigation for individuals. In fiscal year 2018, detailed analyses on the relationships between various dose measurements which include actual measurement of the individual external doses (D-shuttle measurement) and ambient dose rate that obtained in the former evacuation order area, life activity patterns of individuals, reported air dose rate data (airborne monitoring, monitoring post), and land use were conducted. In addition, for the small personal dosimeter equipped with the improved wireless communication function display function, we have developed the sensor board part of the dosimeter and the electrical performance of the dosimeter prototype were confirmed. Furthermore, verification of the radioactivity measurement in the soil was carried out using a collimated measuring device with a combination of CsI scintillator and MPPC, and a plastic scintillator capable of measuring a wider range.