

テーマ（１）

放射線被ばくの線量評価等に関する研究

1－1 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）

1－2 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）

1－3 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 千太郎（京都大学 原子炉実験所原子力基礎科学研究本部放射線安全管理工学研究分野 教授）

1－4 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）

1－5 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）

1-1 浪江町民のための被ばく線量調査

主任研究者：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、大気、河川水、底質土、空間線量率、ラドン

研究協力者

赤田 尚史（核融合科学研究所 准教授）

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）
岩岡 和輝（弘前大学被ばく医療総合研究所 助教）
工藤 ひろみ（弘前大学大学院保健学研究科 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）
城間 吉貴（弘前大学大学院保健学研究科 助教）

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、それにとともに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。本年度は、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。

II. 研究方法

1. 大気中の放射性物質濃度の調査

図 II-1 に示す町内の5か所において2017年8月から2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% (^{60}Co の 1.33 MeV の γ 線) である。測定時間は、ハイボリュームサンブ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ブ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。 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 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。 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 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

図 II-1 に示す町内の 5 か所において 2017 年 8 月から 2 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℃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。

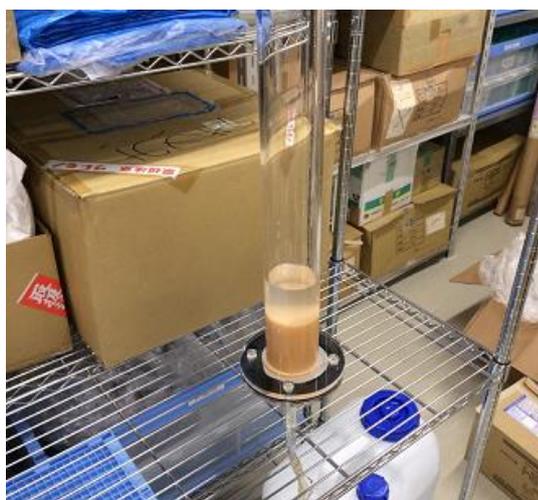


図 II-3 カラムにイオン交換樹脂を入れて試料水を流している様子。

底質土は、105℃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、浪江町経由でこの D シャトルの測定データを提供してもらい独自に開発した外部被ばく線量評価ソフトウェアを用いて測定期間中の積算線量を解析した。本年度は 34 名分のデータを解析した。D シャトルでの測定期間は、11 名が 367 日間（2017 年 3 月 8 日から 2018 年 3 月 9 日）、23 名が 289 日間（2017

年5月25日から2018年3月9日)であった。また、Dシャトルを配布した家屋敷地内における空間線量率測定実施の許可を得た。

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月から84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6cm、横11cm、高さ3cm程度で内容積が約30cm³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6mm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期の測定を計画している。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、その結果を秋期のデータとした。モニタの回収後、新しいRADUETを各家屋内外に設置し冬期のデータとする。現在は12月に設置したRADUETの回収作業中である。

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

浪江町全域の空間線量率の分布と定点観測が可能な場所を把握するために、2017年6月14日から17日にかけて自動車走行サーベイを実施した。車両は、既に車体による γ 線の遮蔽係数が評価されているトヨタ・カローラフィールダーとした⁵⁾。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 (EMF-211, EMF-Japan) を車内の定位置に設定し、30秒間隔で計数値を測定した。得られた計数値に車体の遮蔽係数(1.50)と線量率換算係数(0.0019 nGy/h/cpm)をかけることで空気吸収線量率(空間線量率)を評価した。浪江町内で走行可能なルート上の空間線量率分布図の作成にはハワイ大学が開発した Generic Mapping Tools (GMT)⁶⁾を用いた。GMTは地球科学の分野に限らず多くの研究者によって使用されているフリーソフトウェアであり、現在でもバージョンは更新されている。

自動車走行サーベイの結果をもとに浪江町内を1km×1kmに区切り定点観測地点とした。測定には自動車走行サーベイと同じ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⁷⁾を用いてアンフォールディングし、空間線量率

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-7)。

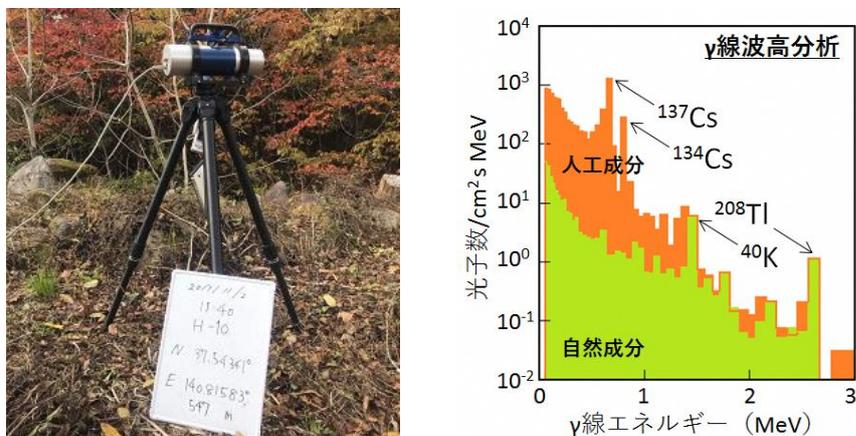


図 II-7 γ 線波高分布の定点観測の様子 (左) と応答行列法によって得られた γ 線エネルギースペクトル。

(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、対象者の住所、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) の放射能濃度を表 III-1 に示す。浪江にじいろこども園、北棚塩集会所、高瀬消防屯所における ^{134}Cs 放射能濃度はいずれの月も検出下限値以下 (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の2017年8月の ^{134}Cs 放射能濃度 ± 標準不確かさは、それぞれ $0.04 \pm 0.01 \text{ mBq/m}^3$ 及び $0.03 \pm 0.01 \text{ mBq/m}^3$ であった。しかし、10月及び12月での採取ではいずれも ND であった。8月の ^{137}Cs 放射能濃度は、ND-1.28 mBq/m^3 (浪江にじいろこども園)、10月は ND-0.30 mBq/m^3 (浪江にじいろこども園)、12月は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のみで ^{137}Cs が検出され、その値はそれぞれ $0.11 \pm 0.01 \text{ mBq/m}^3$ 及び $0.05 \pm 0.01 \text{ mBq/m}^3$ であった。北棚塩集会所の ^{137}Cs 放射能濃度は、いずれの採取月においても ND であった。一方、浪江にじいろこども園、高瀬消防屯所、沢上消防屯所及び田末消防屯所では、時間経過とともに減少傾向を示した。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、今後も引き続き調査を継続する必要があると言える。また、主任研究者らが開発した可搬型大気中放射性物質モニタを用いた測定も実施したが、検出下限値以下であったため、連続測定は行わなかった。

表 III-1 大気中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 放射能濃度

採取地点	調査月	捕集量 (m^3)	^{134}Cs (mBq/m^3)	^{137}Cs (mBq/m^3)
浪江にじいろこども園 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	35.3	ND (0.36)	1.28 ± 0.09
	10月	35.9	ND (0.25)	0.30 ± 0.06
	12月	40.2	ND (0.31)	ND (0.24)
北棚塩集会所 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	36.8	ND (0.34)	ND (0.24)
	10月	38.8	ND (0.33)	ND (0.23)
	12月	40.0	ND (0.33)	ND (0.25)
高瀬消防屯所 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	29.5	ND (0.50)	0.43 ± 0.11
	10月	36.5	ND (0.35)	ND (0.26)
	12月	41.0	ND (0.29)	ND (0.25)
沢上消防屯所 (旧・居住制限区域)	8月	2102	0.04 ± 0.01	0.26 ± 0.01
	10月	747	ND (0.05)	0.15 ± 0.01
	12月	752	ND (0.05)	0.11 ± 0.01
田末消防屯所 (旧・居住制限区域)	8月	1465	0.03 ± 0.01	0.20 ± 0.01
	10月	711	ND (0.05)	0.06 ± 0.01
	12月	709	ND (0.05)	0.05 ± 0.01

2. 河川水及び底質土中の放射性物質濃度の調査

8月、10月及び12月に採水した河川水中の放射性セシウム (^{134}Cs 及び ^{137}Cs) の放射能濃度をそれぞれ表 III-2 から表 III-4 に示す。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。その結果、懸濁態濃度の評価は行わなかった。一方、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であったため懸濁態濃度の評価は行わなかった。さらに、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。

8月に採水した河川水中の ^{137}Cs の全濃度は、43.7 mBq/L (幾世橋) から 384.1 mBq/L (高瀬) の範囲であった。10月に採水した河川水中の ^{137}Cs の全濃度は、20.2 mBq/L (小野田)

から 226.9 mBq/L (酒田) であり、変化は場所によって異なるものの同レベルもしくは減少傾向を示した。12 月に採水した河川水中の ^{137}Cs の全濃度は、ND (小野田) から 98.9 mBq/L (酒田) であり全体的に減少傾向を示し、場所によっては ND であった。溶存態と懸濁態の割合は、その集水域における土地利用形態等が大きく影響を及ぼすと考えられる。本年度のデータをもとに、集水域の状況等についても今後は調査をしていく必要があると考えられる。

表 III-2 8 月に採水した河川水中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 放射能濃度

採水地点		^{134}Cs (mBq/L)	^{137}Cs (mBq/L)
酒田 (旧・居住制限区域)	全濃度	28.9 ± 6.3	220.5 ± 8.4
	溶存態	22.7 ± 5.9	153.2 ± 7.2
	懸濁態	6.2 ± 8.6	67.2 ± 11.1
棚塩 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.5)	126.0 ± 7.2
	溶存態	ND (17.3)	84.7 ± 6.2
	懸濁態	—	41.3 ± 9.5
小野田 (旧・居住制限区域)	全濃度	18.0 ± 5.7	102.4 ± 6.8
	溶存態	ND (17.6)	35.0 ± 5.4
	懸濁態	—	67.4 ± 8.7
高瀬 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	51.2 ± 6.6	384.1 ± 10.5
	溶存態	ND (19.1)	26.6 ± 5.7
	懸濁態	—	357.5 ± 11.9
幾世橋 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (18.6)	43.7 ± 5.9
	溶存態	ND (17.4)	ND (15.4)
	懸濁態	—	—

表 III-3 10月に採水した河川水中の¹³⁴Cs及び¹³⁷Cs放射能濃度

採水地点		¹³⁴ Cs (mBq/L)	¹³⁷ Cs (mBq/L)
酒田 (旧・居住制限区域)	全濃度	33.7 ± 5.6	226.9 ± 8.0
	溶存態	ND (17.6)	88.6 ± 6.6
	懸濁態	—	138.2 ± 10.4
棚塩 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	26.8 ± 5.8	168.7 ± 7.2
	溶存態	ND (17.7)	81.5 ± 5.8
	懸濁態	—	87.1 ± 9.3
小野田 (旧・居住制限区域)	全濃度	ND (18.4)	20.2 ± 5.2
	溶存態	ND (17.5)	20.7 ± 4.9
	懸濁態	—	—
高瀬 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.6)	59.0 ± 5.9
	溶存態	ND (17.0)	24.7 ± 5.1
	懸濁態	—	34.3 ± 7.8
幾世橋 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.8)	24.1 ± 5.0
	溶存態	ND (18.2)	17.2 ± 5.0
	懸濁態	—	6.9 ± 7.1

表 III-4 12月に採水した河川水中の¹³⁴Cs及び¹³⁷Cs放射能濃度

採水地点		¹³⁴ Cs (mBq/L)	¹³⁷ Cs (mBq/L)
酒田 (旧・居住制限区域)	全濃度	ND (16.2)	98.9 ± 6.7
	溶存態	ND (17.1)	99.3 ± 6.5
	懸濁態	—	—
棚塩 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.5)	98.4 ± 6.5
	溶存態	ND (16.6)	49.3 ± 6.0
	懸濁態	—	49.0 ± 8.8
小野田 (旧・居住制限区域)	全濃度	ND (18.4)	ND (16.1)
	溶存態	ND (17.4)	ND (14.9)
	懸濁態	—	—
高瀬 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.5)	59.6 ± 6.0
	溶存態	ND (17.8)	ND (17.1)
	懸濁態	—	—
幾世橋 (旧・避難指示解除準備区域)	全濃度	ND (17.7)	20.8 ± 5.3
	溶存態	ND (17.4)	ND (16.2)
	懸濁態	—	—

8月、10月及び12月に採取した底質土中の放射性セシウム (¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs) の放射能濃度をそれぞれ表 III-5 に示す。いずれの採取地点において10月の¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs 放射能濃度が8月と比べて上昇した。要因の一つとして、2017年8月29日から30日にかけて福島県内を通過した台風10号の影響が考えられる。福島地方気象台の報告によれば、浪江町津島地区の降水量は8月30日9時頃から14時ころにかけて上昇した⁸⁾。つまり、汚染した土壌が河川に流入して堆積したものを10月に採取した可能性がある。しかし、12月の結果をみるといずれの採取地点においても8月と同レベル、もしくは減少傾向が認められた。

表 III-5 底質土中の ^{134}Cs 及び ^{137}Cs 放射能濃度

採取地点	調査月	^{134}Cs (Bq/kg-dry)	^{137}Cs (Bq/kg-dry)
酒田 (旧・居住制限区域)	8月	460.0 ± 2.0	3612.3 ± 5.4
	10月	5370.0 ± 8.5	44900.0 ± 23.4
	12月	410.6 ± 1.8	3628.6 ± 5.2
棚塩 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	145.6 ± 1.1	1134.8 ± 2.8
	10月	408.0 ± 1.9	3400.0 ± 5.3
	12月	259.1 ± 1.5	2232.6 ± 4.1
小野田 (旧・居住制限区域)	8月	74.7 ± 0.8	574.7 ± 2.0
	10月	150.4 ± 1.1	1251.4 ± 3.1
	12月	142.4 ± 1.1	1213.0 ± 3.0
高瀬 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	241.0 ± 1.4	1913.1 ± 3.9
	10月	267.0 ± 1.5	2230.0 ± 4.2
	12月	122.7 ± 1.0	1048.0 ± 2.8
幾世橋 (旧・避難指示解除準備区域)	8月	24.6 ± 0.5	190.9 ± 1.2
	10月	303.0 ± 1.8	2500.0 ± 4.8
	12月	82.4 ± 0.8	717.0 ± 2.2

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 367 日間携帯していた 11 名の外部個人被ばく線量（自然放射線による成分を含む）の最小値、最大値、中央値は、0.76 mSv、2.22 mSv、1.01 mSv であった。また、289 日間携帯していた 23 名の外部個人被ばく線量の最小値、最大値、中央値は、0.54 mSv、1.55 mSv、0.83 mSv であった。行動記録を入手し次第、解析結果と対比させて検討する予定である。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を依頼した。次年度から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

現段階で解析が終了した 42 家屋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 225 Bq/m³、21 Bq/m³ であった（いずれも暫定値）。なお、ND のデータ数は 8

データであり、全データ数（42 データ）の 19%程度である。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/m^3 とした。我が国の屋内ラドン濃度の算術平均値は 15.5 Bq/m^3 であり⁹⁾、と比較すると中央値は 1.4 倍程度高い。一年を通した調査が必要ではあるが、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、 100 Bq/m^3 （約 3 mSv 相当）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とともに、継続的な調査を続けていくことでより詳細な検討が可能になると考えられる。

また、屋外ラドン濃度の範囲と中央値は、それぞれ ND ($\sim 13 \text{ Bq/m}^3$) から 37 Bq/m^3 、 13 Bq/m^3 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¹⁰⁾は 6.1 Bq/m^3 と比較すると中央値は 2.1 倍程度高い。ただし、屋外ラドン濃度の 65%に相当する 28 データが ND であり、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/m^3 とした。したがって、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を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。

約 3 か月の設置期間、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内部被ばく線量を試算した。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。ここで、一日のうち屋内に 90%、屋外に 10%滞在したと仮定した。さらに、屋内及び屋外の平衡ファクタは、それぞれ 0.4 及び 0.6 とした。その結果、3 か月間のラドンによる内部被ばく線量は 0.2 mSv から 1.6 mSv であると評価された。

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

2017 年 6 月 14 日から 17 日にかけて浪江町全域において実施した自動車走行サーベイの結果を図 III-1 に示す。この調査時点で立ち入ることができる道路は概ね測定した。したがって、この分布図をもとに定点観測の測定地点を決定した。帰還困難区域ではあるものの川俣町及び葛尾村周辺に空間線量率が低い場所があることが確認された。一方、飯舘村及び南相馬市の境界周辺、葛尾村、田村市及び双葉町の境界周辺には自動車で侵入することが困難であるため、定点観測の実施の可能性が低いことも分かった。

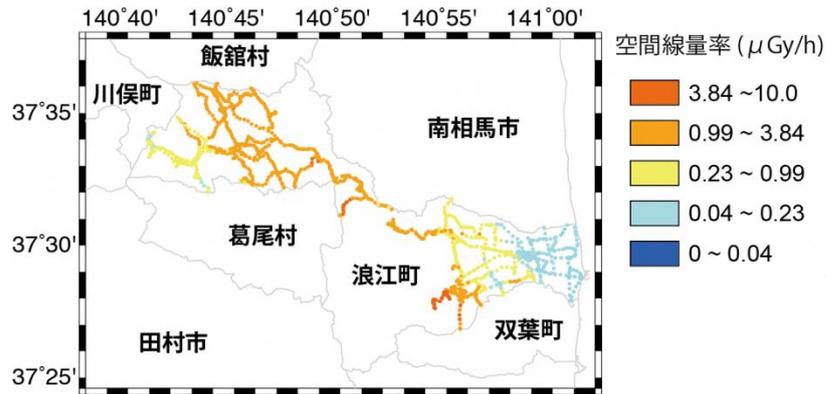


図 III-1 自動車走行サーベイによって取得した空間線量率の分布。

自動車走行サーベイの結果をもとにして本年度は、浪江町内の 96 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-2 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 $\mu\text{Gy/h}$ 、1.48 $\mu\text{Gy/h}$ 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 $\mu\text{Gy/h}$ 、1.45 $\mu\text{Gy/h}$ であった。

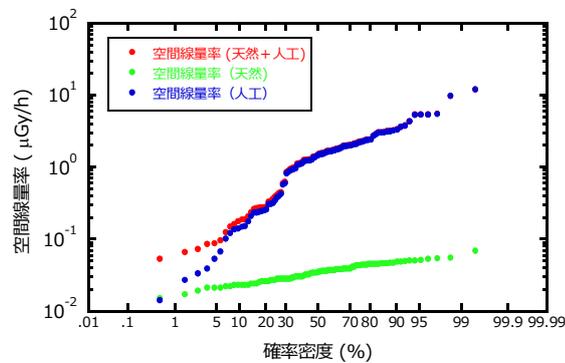


図 III-2 定点観測によって得られた空間線量率の確率密度分布。

浪江町内の 96 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-3 及び図 III-4 に示す。

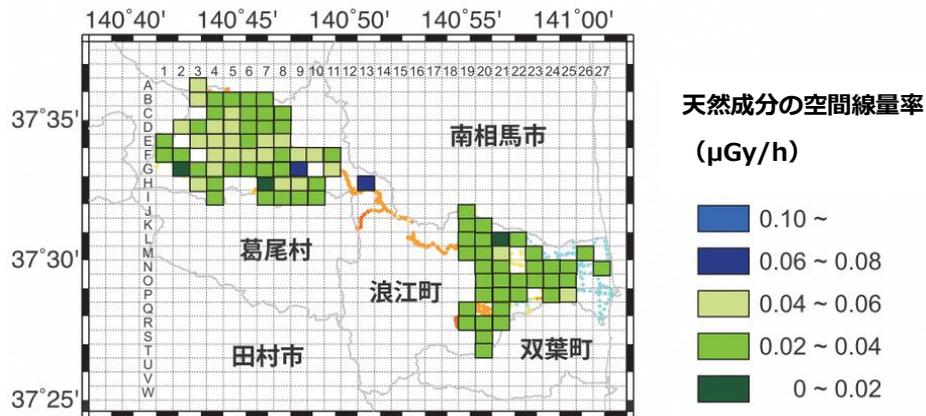


図 III-3 天然成分の空間線量率分布。

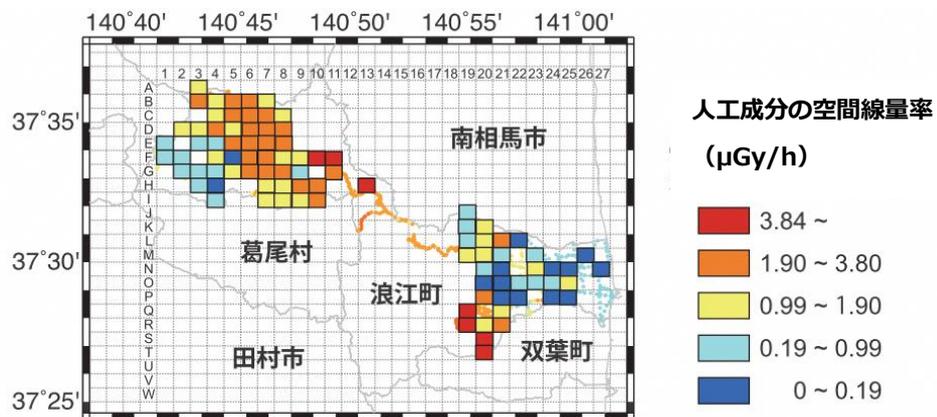


図 III-4 人工成分の空間線量率分布。

IV. 考察

8月に浪江にじいろこども園で採取した結果を基にして、ここに1日滞在した場合の吸入被ばく線量を試算した。ただし、保守的な評価として¹³⁴Csは検出下限値の放射能濃度であったとした。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)と評価された。浪江にじいろこども園内の空間線量率が、40 nSv/hから110 nSv/hであったことから、外部被ばく線量の1/1000程度と見積もられ、吸入被ばくによる線量は外部被ばくと比べて無視できるレベルであることが示唆された。継続して調査を行うことで季節変動を考慮した吸入摂取による内部被ばく線量を評価し、その影響の有無について明らかにする。

河川水中の放射性セシウム濃度の評価結果より、多くの場所で検出下限値を下回った。しかし、底質土の結果をみると気象条件や環境の変化によって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、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られる。

本年度は、環境試料の採取間隔を 2 か月とした。特に、大気中の放射能濃度が低いことから測定時間を 1 週間程度としているため採取からデータ取得までに日数を要する。環境試料中の放射性セシウム濃度が十分に低いこともあり、次年度以降は採取間隔を 3 か月毎とする。

D シャトルによる外部個人被ばく線量は 34 名のデータを解析した。浪江町との協力のもとデータ数を増やすとともに、行動記録を入手して線量の変動要因等について検討する必要がある。

ラドンによる内部被ばく線量評価に関しては、解析が終了した 42 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/m^3 (約 3 mSv 相当) を超える家屋も発見されたが、部屋の使用状況等を知るためにも行動記録を入手し、今後さらなる要因調査を実施していく必要がある。したがって、現段階では暫定値とした。このような状況ではあるが、屋内外のラドンによる約 3 か月間の内部被ばく線量は 0.2 mSv から 1.6 mSv 程度であった。ラドン濃度は季節変動があることが知られているので、継続的に調査を実施し、高濃度化の可能性を含めて次年度以降も検討する。

空間線量率の定点観測は 96 データを取得し、データの解析を行った。本年度より、国道 114 号線の自由通行にともない、側道への立ち入り制限が始まり、調査のための時間の制約を受けるようになった。そこで、当初計画をしていた 500 m メッシュでの空間線量率の測定を本年度実施した 1 km メッシュで今後も継続していく。さらに、住民の帰還が始まった地域においては復興支援のために立ち入ることができない多くの場所があった。そこで、ラドンモニタリングの協力を得ている家屋において空間線量率の測定が可能であることから、住民の帰還が始まった地域においては、このデータを含めて空間線量率マップの作製を進めていく。

V. 結論

本年度は、現場の状況の変化から当初の予定を若干変更して調査を実施した項目もあったが、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、次年度以降は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、残りの 2 年間も町民の声を聴きつつ本年度と同様の調査研究を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、本年度の夏期までは調査をし、追加調査が必要な家屋のみ調査を継続する予定である。また、必要なデータが十分に揃った段階で研究者間及び浪江町と十分な議論をし、大学のホームページ等に情報を掲載するとともに、大学が実施しているリスクミ関連事業にデータを活用していく予定である。

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) なし
- B. 論文：査読なし
 - 1) なし
- C. 学内学会発表
 - 1) なし
- D. 国際学会発表
 - 1) なし
- 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) Hosoda M, Inoue K, Oka M, Omori Y, Iwaoka K, Tokonami S. “Environmental Radiation Monitoring and External Dose Estimation in Aomori Prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident”. *Japanese Journal of Health Physics* 2016;51(1):41-50.
 - 6) Wessel P, Smith W. “Free software helps map and display data”. *Eos, Transactions American Geophysical Union* 1991;72(41):441-446.
 - 7) Minato S. “Diagonal elements fitting technique to improve response matrixes for environmental gamma ray spectrum unfolding”. *RADIOISOTOPES* 2001;50(10):463-471.
 - 8) 福島地方気象台ホームページ: www.jma-net.go.jp/fukushima/.../saigaiji20160829-30.pdf
(2018年4月11日閲覧可) .
 - 9) Sanada T, Fujimoto K, Miyano K, Doi M, Tokonami S, Uesugi M, Takata Y. “Measurement of nation-wide indoor Rn concentration in Japan”. *Journal of Environmental Radioactivity* 1999;45:129-137.
 - 10) Oikawa S, Kanno N, Sanada T, Ohashi N, Uesugi M, Sato K, Abukawa J, Higuchi H. “A nationwide survey of outdoor radon concentration in Japan”. *Journal of Environmental Radioactivity* 2003;65(2):203-213.

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

Shinji Tokonami¹, Ikuo Kahiwakura², Masahio Hosoda², Kazuki Iwaoka¹, Hiromi Kudo², Yoshitaka Shiroma², Masaru Yamaguchi², Takakiyo Tsujiguchi², Hegedus Miklós¹, Ryohei Yamada¹, Takahito Suzuki¹, Yuki Tamakuma¹, Naofumi Akata³

Hirosaki University, Institute of Radiation Emergency Medicine¹, Hirosaki University Graduate School of Health Sciences², National Institute for Fusion Science³

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. 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.

Keywords

Namie Town, dose estimation, external dose, internal dose, airborne, river water, sediment, ambient dose rate, radon

1-2 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

本研究では土壌に残留した ^{129}I を指標とする、東京電力福島第一原子力発電所事故当時の沈着 ^{131}I 水準や沈着物 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の、遡及的な推定方法について検証した。事故から6年経過した時点の ^{129}I の測定による事故時の推定結果では、表土の ^{131}I 濃度が事故時の実測値と比較し過小評価となったが、この問題は時間経過にともなう表土から下方の土壌への ^{129}I の移行に起因することが判明した。下方への移行分を補正した表土の ^{131}I 濃度推定値は、事故時の実測による ^{131}I 濃度とほぼ同等になった。また推定した ^{131}I 沈着量に基づく $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比も、実測値に基づく値と合致した。以上から、 ^{129}I による ^{131}I 推定の妥当性が確かめられた。放射能水準の高い帰還困難区域内の11地点における推定結果では、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が原子力発電所の北西方向で低く南方向で高く表れた。今後は比較的放射能水準の低い、避難指示区域外の地域を対象として調査を進める。事故由来 ^{129}I の沈着量が小さい地域では、過去の核実験や核燃料再処理にともなう放出 ^{129}I による寄与が相対的に大きく表れると予想され、こうしたバックグラウンド ^{129}I による影響の除去が研究進捗上の課題となる。

キーワード

放射性ヨウ素、土壌沈着、 ^{129}I 、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比

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線量（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、甲状腺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、健康影響へ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¹³¹Iの地表への沈着量や沈着物の¹³¹I/¹³⁷Cs比を、長半減期のヨウ素同位体である¹²⁹Iに基づいて把握する。¹³¹I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¹³¹Iの測定例は放射性セシウムと比較すると格段に少なく、甲状腺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¹³¹Iと同時に放出され現在も土壌中に残留している¹²⁹Iに着目し、その濃度を測定する。事故による放出物における¹²⁹Iと¹³¹Iの原子数比はほぼ一定であることから、この¹²⁹I/¹³¹I比および¹²⁹I濃度より、当時の¹³¹Iの土壌中における濃度や沈着量を求めることができる。こうした遡及的な推定方法の着想自体は古くからあり、チェルノブイリ原子力発電所事故に由来する¹³¹Iについての検討例が報告されている²⁾。また福島原子力発電所事故についても本方法は応用され、¹²⁹I測定に基づく¹³¹Iの土壌濃度マップが公表されている³⁾。こうした既存成果を踏まえ本研究では、試料採取方法に起因する不確かさを極力排除することによって、実測値に準じた正確な¹³¹I推定値を求める。本研究による成果は、甲状腺線量推定に用いられる¹³¹I/¹³⁷Cs比に関する検討や、シミュレーションによる¹³¹I大気拡散推定の結果検証のために役立つ。

II. 研究方法

本研究では福島原子力発電所事故当時における¹³¹Iの地表への沈着量や沈着物の¹³¹I/¹³⁷Cs放射能比を、農地土壌を対象とする調査により求める。平成29年度は原子力発電所付近およびその北西方向に広がる帰還困難区域を対象として、土壌試料採取および試料の分析を進めた。また得られたデータの一部について、検証のため事故直後における実測値と比較した。

1. 土壌試料採取および試料調製

本研究では¹²⁹I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m²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。茨城県つくば市における観測例では、福島原子力発電所事故由来の¹³¹I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⁴⁾。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¹²⁹Iや放射性セシウムの移行があり得る。

平成29年度は、帰還困難区域に属する市町村のうち飯舘村、浪江町、大熊町および富岡町の各々から2~4ヶ所の農地を調査地として選定した(図II-1)。これらの農地は事故以来、耕作が停止された状態であり耕起にともなう土壌の攪乱は無い。対象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、¹²⁹I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（図 II-2）。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。

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 の円孔ふるいに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 ¹²⁹I 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、¹²⁹I 測定データ換算用の水分値を得た。

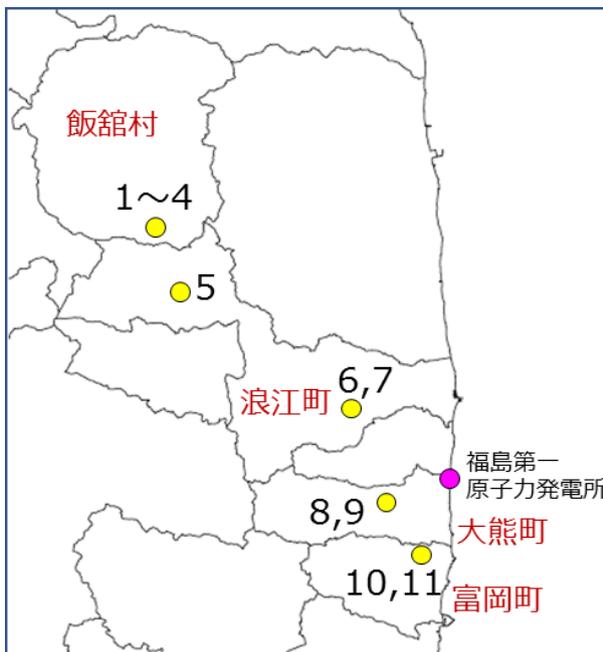


図 II-1 調査地（地点番号は表 III-3 に対応）



図 II-2 調査地の状況および土壌試坑（例）

2. 試料分析

放射性セシウム (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs) を測定するため、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スペクトル分析に供した。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 (3σ) 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 については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。なお今回の報告では、放射性セシウムのうち ^{137}Cs のみを検討対象とした。

一方、 ^{129}I の測定は加速器質量分析 (AMS) により進めた。AMS 測定のためには、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。石英ボート上に微粉碎試料 0.1~0.5 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}) を入れて装置へセットし、最高温度 900°C 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て、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、添加したヨウ素担体の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 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)⁴⁾ に基づいて、 ^{131}I 濃度を推定した。

以上の手順により、土壤中 ^{131}I および放射性セシウムの濃度データを得た。また深さ 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沈着量データを得た。さらに ^{131}I と ^{137}Cs の表土 (深さ 0~5cm 範囲の土壌) における濃度比、および蓄積量比を計算した。

3. 事故当時の実測値との比較による検証

本研究により求めた ^{131}I 沈着量や $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の妥当性を検証するための、福島原子力発電所事故当時の実測値として、原子力規制庁が公開している土壌モニタリング結果⁵⁾ を使用した。本研究では飯舘村南部に位置する長泥地区の 4 地点の畑地を調査したが、この土壌モニタリングによっても飯舘村長泥において多くのデータが得られていた。そこで飯舘村長泥のデータを比較し検証することとして、土壌モニタリングにより 2011 年 3 月下旬~4 月に採取された表土 (深さ 0~5cm 範囲の土壌) についての、 ^{131}I および ^{137}Cs の実測値を整理した。このデータの減衰補正基準は試料採取時となっており、比較に際し両核種、特に ^{131}I の基準日時を統一する必要がある。このため、本研究による事故当時における ^{131}I および ^{137}Cs の放射能値の補正基準は原子炉停止時 (2011 年 3 月 11 日 14 時 46 分) とし、土壌モニタリングデータについても同時点に合わせ換算した。なお本研究の調査では ^{137}Cs を実測したが、以上の補正による値は推定値として取り扱った。

(倫理面への配慮)

研究対象の ^{129}I や放射性セシウムは放射性核種であるが、用いる土壌試料自体は天然物で、法令により定義された放射性物質に該当せず安全性に問題はない。また土壌試料は除染等の事業に由来するものではない。分析に用いる標準物質の一部は放射性物質に該当するが、それらは放射線障害防止法等で定められた適切な施設や設備を用い取り扱われた。バイオハザード対策を要する実験や遺伝子組換え実験、生命倫理に係る実験 (動物や人を対象とする実験) は実施しなかった。本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

本研究における検討として、まず得られた推定値の一部を実測値と比較し検証を行い推定結果が妥当であるかを調べた。次に、推定による ^{131}I 水準、 ^{137}Cs 水準および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の調査地点間における違いや傾向を把握した。検証は、本研究の調査による飯館村長泥地区における4地点のデータを対象としたが、これら推定データの要約として、 ^{129}I に基づく ^{131}I および ^{137}Cs の表土（深さ 0~5cm 範囲の土壌）における濃度、単位面積あたり沈着量および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を、統計量の形で表 III-1 に示した。一方実測値としては原子力規制庁による飯館村長泥の土壌モニタリングデータを使用し、 ^{131}I および ^{137}Cs の表土濃度から $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を計算した。このデータについても、本研究による推定値等と同様に統計量を示す形で表 III-2 に要約した。なお福島県内において、このデータが得られた原子力発電所事故直後の時点では、一般に沈着 ^{131}I の 9 割以上が表土に留まっていたとされ³⁾、土壌の 5cm 以深への ^{131}I 移行は極めて小さかったと考えられる。

表 III-1 飯館村長泥地区における事故当時の ^{131}I ・ ^{137}Cs 水準推定値および 2017 年時点の表土部分 ^{129}I ・ ^{137}Cs 分布割合の統計量（事故当時の推定値は 2011 年 3 月 11 日 14 時 46 分時点で補正）

(N = 4)	表土濃度*(kBq/kg)		沈着量**(MBq/m ²)		沈着量に占める表土部分の割合***(%)		$^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比	
	^{131}I	^{137}Cs	^{131}I	^{137}Cs	^{129}I	^{137}Cs	表土濃度	沈着量
変動の幅	287~566	22.6~53.9	21.1~31.5	1.7~2.6	40~84	43~91	10.5~12.9	11.3~14.0
平均値	398	36.0	26.7	2.2	56	62	11.3	12.5
中央値	370	33.7	27.2	2.2	51	57	11.0	12.4

*深さ0~5cm範囲の土壌中の濃度

**深さ0~20cm範囲の土壌中の全量

***深さ5cm毎の土壌中の濃度から計算

表 III-2 土壌モニタリング⁵⁾に基づく飯館村長泥における表土の ^{131}I 濃度、 ^{137}Cs 濃度および $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の統計量（放射能値は 2011 年 3 月 11 日 14 時 46 分時点で補正）

(N = 34)	^{131}I 濃度(kBq/kg)	^{137}Cs 濃度(kBq/kg)	$^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比
変動の幅	54~1488	3~140	8.1~65.3
平均値	787	63	14.8
中央値	803	65	12.7

本研究の調査による表土の ^{131}I 濃度 (^{129}I に基づく推定値) および ^{137}Cs 濃度 (2017 年時点の濃度を減衰補正した推定値) について、ともに最小値と最大値の比が 2 倍程度となる変動が認められた (表 III-1)。この変動の理由の一つは、地点間の沈着量の差であると考えられる。沈着量について、 ^{131}I および ^{137}Cs ともに最小値と最大値の比が 1.5 倍程度に表れている。もう一つの理由は、 ^{129}I および ^{137}Cs の下方への移行である。2017 年時点における全沈着量 (土壌の深さ 0~20cm 範囲) に占める表土部分 (土壌の深さ 0~5cm 範囲) への分布割合は、 ^{129}I で 40~84%、 ^{137}Cs では 43~91%となっており、地点間の違いが大きい。この割合の小さい地点では事故当時に表土へ沈着

した ^{129}I や ^{137}Cs が試料採取時までの約 6 年間に 5cm 以深へ顕著に移行し、その結果として表土の濃度が大幅に低下したと考えられる。なおいずれの項目についても、平均値と中央値はほぼ同等であった (表 III-1)。

一方土壌モニタリングによる実測値については、各項目とも変動幅が非常に大きかった (表 III-2)。このことは、当時の試料採取に際し選択された地点間において沈着状況が大きく異なっていたことを示唆する。また $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比には、他のデータと大きく異なる外れ値が存在した。これについて原因は不明であるが、試料準備や測定過程に不具合を生じていた可能性がある。この外れ値により平均値が上昇し、平均値と中央値の間に差が表れている (表 III-2)。このため本研究では、外れ値の影響が小さい中央値を代表値として取り扱い、推定値と実測値を比較することとした。

本研究の結果 (表 III-1) において、 ^{129}I に基づく ^{131}I および ^{137}Cs とともに、表土濃度は土壌モニタリングによる実測値 (表 III-2) の半分程度となった。この理由として前述の、核種の下方移行による表土濃度の低下が考えられる。すなわち、2017 年時点における ^{129}I の全沈着量に占める表土部分の割合は中央値として 51%、 ^{137}Cs については同 57% であり (表 III-1)、 ^{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 以深の下方へ移行したものと理解される。このような下方移行が起きず ^{129}I および ^{137}Cs が表土に保持され続けることを仮定すれば、地表から 5cm 以内に沈着量の 100% が分布する形となり表土濃度は表 III-1 に示された値の約 2 倍、正確には ^{131}I が 725kBq/kg、 ^{137}Cs が 59kBq/kg と計算される。これら計算値は、事故直後の土壌モニタリングによる各々の核種の濃度中央値 (表 III-2) の 90% に相当する。つまり核種の下方移行分を以上の方法により補正すると、 ^{131}I 濃度の推定値は実測値とほぼ合致する。 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比については、表土濃度に基づく値と沈着量に基づく値の間に差が認められ、表土濃度に基づく値の方が小さくなった (表 III-1)。これは、ヨウ素とセシウム の下方への移行程度の違いを反映している。すなわち ^{137}Cs の方が表土への残存割合が大きいため、地表から深さ 5cm の範囲のみに着目した表土濃度に基づく $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、小さく表れる。深さ 0~20cm 範囲の全量である沈着量に基づく比については、下方への移行程度が問題にならないため、より妥当であると判断される。沈着量に基づく $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比の平均値は 12.5、中央値は 12.4 を示し、これらは土壌モニタリング結果から求めた比の中央値 12.7 (表 III-2) とほぼ同等である。

本研究の調査による、全 11 地点における ^{131}I 、 ^{137}Cs の表土濃度および沈着量、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比等を表 III-3 に示した。同じ地域 (町) における地目の違いに着目すると、 ^{129}I 、 ^{137}Cs とともに沈着量に占める表土部分の割合は水田で小さかった。これについて、水田は雨水等が滞留しやすい立地にあるため、水の影響により ^{129}I 、 ^{137}Cs の下方への移行が大きくなると考えられる。また沈着量に占める表土部分の割合は、すべての地点で ^{129}I の方が ^{137}Cs より小さかった。この結果から放射性ヨウ素は放射性セシウムよりも土壌による保持が弱く、下方へ移行しやすいことが確認された。沈着量に基づく $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比は、福島原子力発電所の北西方向に位置する地域 (飯舘村および浪江町) で 11.3~20.0 と低く、西南西~南方向の地域 (大熊町および富岡町) では 22.4~33.0 と高かった。なお南方で $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比が高い傾向については、事故直後に実施された調査によっても示されている⁶⁾。

表 III-3 避難指示区域における事故当時の¹³¹I・¹³⁷Cs水準推定値および2017年時点の表土部分¹²⁹I・¹³⁷Cs分布割合（事故当時の推定値は2011年3月11日14時46分時点に補正）

地点	地目	表土濃度*		沈着量**		沈着量に占める表土部分の割合*** (%)		¹³¹ I/ ¹³⁷ Cs放射能比	
		¹³¹ I	¹³⁷ Cs	¹³¹ I	¹³⁷ Cs	¹²⁹ I	¹³⁷ Cs	表土濃度	沈着量
1	飯舘村 畑地	293±3	22.6±0.05	25.8	1.8	40	43	12.9	14.0
2	飯舘村 畑地	447±5	42.1±0.07	31.5	2.6	55	62	10.6	12.0
3	飯舘村 畑地	566±7	53.9±0.08	28.5	2.5	84	91	10.5	11.3
4	飯舘村 畑地	287±3	25.3±0.06	21.1	1.7	47	53	11.3	12.7
5	浪江町 畑地	812±9	49.9±0.07	55.8	2.8	80	98	16.3	20.0
6	浪江町 畑地	1,124±12	83.6±0.10	65.6	4.3	62	69	13.4	15.1
7	浪江町 水田	1,174±13	100.7±0.11	101.0	7.1	43	53	11.7	14.2
8	大熊町 草地	680±7	33.9±0.06	38.1	1.7	62	69	20.1	22.4
9	大熊町 水田	1,127±12	54.6±0.08	71.3	3.1	52	58	20.7	23.2
10	富岡町 畑地	801±9	29.5±0.06	52.1	1.6	59	72	27.1	33.0
11	富岡町 畑地	1,181±13	53.0±0.09	58.3	2.2	71	83	22.3	26.0

*深さ0～5cm範囲の土壤中の濃度

**深さ0～20cm範囲の土壤中の全量

***深さ5cm毎の土壤中の濃度から計算

IV. 考察

一部の調査地点における、地表から深さ 5cm 以内の農地表土の ^{131}I 濃度推定値は、福島原子力発電所事故当時の土壌モニタリングによる実測値の半分程度であり過小評価となった。そこで 2017 年時点での、深さ 0~20cm 範囲の土壌中における ^{129}I の分布を調べたところ、その約半分が 5cm 以深へ分配されていた。このことから、事故直後の時点では、沈着した ^{131}I および ^{129}I の大部分は表土に保持されていた³⁾が、その後の 6 年間に ^{129}I が下方へ移行し表土から失われたために、結果として表土の ^{131}I 濃度は小さく見積もられたものと考えられる。以上のように ^{131}I 濃度の過小評価については合理的に説明でき、下方移行分を適切に補正すれば、濃度の推定値と実測値はほぼ一致することが確認できた。また ^{131}I および ^{137}Cs の沈着量推定値に基づく $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比についても、事故時の実測値に基づく比と一致した。事故時に沈着した ^{129}I が、その後の揮散や流出により土壌から失われていれば、この比は小さく表れたはずである。今回の結果によると、 ^{129}I は下方へ移行していたものの揮散等による損失は極めて小さかったと判断される。

V. 結論

^{129}I に基づく ^{131}I 水準の遡及的推定方法の妥当性が、本研究により確かめられた。また今回得たデータから揮散や流出による ^{129}I 損失の形跡は認められず、適切な調査地点を選択すれば、沈着から数年以上経過したとしても $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を推定可能であると判断される。しかし時間の経過にともない ^{129}I の下方への移行が進んでいる状況については注意を要し、移行分を考慮して試料採取および沈着量の計算を行う必要がある。現状において、地表から深さ 5cm 以内の表土のみからの推定は困難であり、さらに深部の土壌を含めて調査すべきである。

VI. 次年度以降の計画

本研究では調査範囲を避難指示区域とそれ以外の地域に分けて考え、避難指示区域を対象とする調査を平成 29 年度に、他方の調査を 30 年度に実施する計画としている。避難指示区域においては最近、放射能汚染対策として中間貯蔵施設の設営や除染作業が進められており、施設や汚染物仮置き場を設置するために農地が再利用されている。その結果として、試料採取に適した場所が急速に減少していることから、避難指示区域を対象とする研究を優先的に実施することとした。30 年度は、比較的放射能水準の低い地域における調査を予定する。福島原子力発電所事故由来 ^{129}I の沈着量が小さい地域では、事故に由来しない ^{129}I による寄与が相対的に大きく表れる形になり、このことが新たな問題となる。すなわち ^{129}I は大気圏内核実験や核燃料再処理によっても環境へ放出されており、過去の放出に由来する累積的な ^{129}I 沈着は、土壌中のバックグラウンドとして寄与している。事故由来 ^{129}I の沈着量が小さくバックグラウンド ^{129}I による影響を無視できない場合は、 ^{131}I 推定の手順として、バックグラウンド分を土壌試料の ^{129}I 全量から差し引いて事故由来 ^{129}I 量を求める必要がある。30 年度の研究では、先行研究によるバックグラウンド ^{129}I 補正方法⁴⁾を適用の上で、事故由来 ^{131}I の水準や $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ 比を推定する。

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

該当無し

VIII. 引用文献

- 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) Straume T Marchetti AA Anspaugh LR Khrouch VT Gavrilin YI Shinkarev SM Drozdovitch VV Ulanovsky AV Korneev SV Brekeshev MK Leonov ES Voigt G Panchenko SV Minenko VF. The feasibility of using ^{129}I to reconstruct ^{131}I deposition from the Chernobyl reactor accident. *Health Phys* 1996;71:733-740.
- 3) 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>
- 4) 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.
- 5) 原子力規制庁. 原子力規制庁及び福島県による土壌試料の測定結果.
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/list/482/list-1.html>
- 6) Kinoshita N Sueki K Sasa K Kitagawa J Ikarashi S Nishimura T Wong YS Satou Y Handa K Takahashi T Sato M Yamagata T. Assessment of individual radionuclide distributions from the Fukushima nuclear accident covering central-east Japan. *PNAS* 2011;108:19526-19529.

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

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 need to be investigated at the time of an accident. However, a detailed evaluation of environmental ^{131}I is usually difficult because its short half-life causes it to be barely detectable after several months. Thus, 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 retrospectively based on ^{129}I concentration in cropland soil six years after the accident. Moreover, a part of the estimated data was compared to the actual measured concentration of ^{131}I at the time of the accident to confirm the feasibility of the reconstruction method. The estimated concentration of ^{131}I in the topmost soil (0–5 cm depth) was approximately half of the actual measured value in the soil because of the leaching behavior of ^{129}I . Although ^{131}I and ^{129}I were deposited on ground and considered to be distributed in the topmost soil at the time of the accident, half of the total ^{129}I in the soil moved to deep soil beneath 5 cm depth during the six years. By correcting the loss of ^{129}I in the topmost soil due to the downward movement, the estimated concentration of ^{131}I corresponded to the actual measured value. Furthermore, the $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ ratio calculated from the estimated ^{131}I and the measured ^{137}Cs in this study also corresponded to the ratio based on measured values at the time of the accident. The $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ ratio was low in the area extending northwest from the Fukushima Daiichi NPP and was high in the area south of the NPP.

Keywords

radioiodine, deposition, ^{129}I , $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ ratio

1-3 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

主任研究者：高橋 千太郎（京都大学原子炉実験所 教授）

研究要旨

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」、及び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て、平成28年度より3年計画で研究を実施している。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た。本年度は、線量評価に必要なテルルの土壌—食用植物間の移行係数を実験的に求めるとともに、各種のパラメータを用いて内部被ばく線量を試算し、事故後1年間程度の短期間では、放射性テルルの線量寄与が放射性セシウムと比べて無視できないことを示した。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、本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。平成30年度は、これらの得られたパラメータを用いてより高精度で現実的な内部被ばく線量を評価し、今後の健康影響評価に利用できる形で提示し、福島県の住民の健康管理や健康不安解消に貢献していく。

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

研究協力者

川島 茂人（京都大学農学研究科 教授）

研究参加者

高橋 知之（京都大学原子力実験所 准教授）

木梨 友子（京都大学原子力実験所 准教授）

福谷 哲（京都大学原子力実験所 准教授）

木野内 忠稔（京都大学原子力実験所 講師）
池上 麻衣子（京都大学原子力実験所 助教）
窪田 卓見（京都大学原子力実験所 助教）
八島 浩（京都大学原子力実験所 助教）
中村 秀仁（京都大学原子力実験所 助教）
藤原 慶子（京都大学原子力実験所 技術職員）
牧 大介（京都大学原子力実験所 技術職員）
岩田 佳代子（京都大学農学研究科 D3）
田中 草太（京都大学農学研究科 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きい。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、及び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する。さらに、得られたデータを、国際放射線防護委員会（ICRP）の線量評価モデルや国際原子力機関（IAEA）の技術指示書に利用できる形にまとめ、軽水炉の過酷事故時における環境汚染に伴う一般公衆の内部被ばくの線量評価の高精度化に貢献することを目的としている。

II. 研究方法

本研究は上記の 2 つの重要な観点から現在の内部被ばく線量評価を見直し、より高精度で現実的な線量を求めようとするものであり、よって研究もそれに対応する以下の 2 つのアプローチから実施する。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。なお、線量評価に必要な土壌-植物移行係数や消化管吸収率等は実験により取得する必要があるため、時間を要することから、平成 28 年度より 3 年計画で実施している。

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」:

事故により環境中に放出された短半減期核種を対象に、国際シンポジウム、日本学術会議のデータベース、及び学術論文・報告書など、これまでの報告をもとに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）のデータを調査・分析し、半減期や線量係数、食品への移行率などを考慮すると、どのような短半減期核種が人の健康影響という点で重要な核種であり、事故後の線量の寄与が大きかったと推定される核種であるかを明らかにする（平成 28 年度）。次に平成 29 年度には、対象とする短半減期核種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。短半減期核種の環境挙動については過去の知見が少なく、土壌から食用植物等への移行係数などは実験的に求める必要がある。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（専門的には、線量再構築する）。

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」:

放射性セシウムによる内部被ばくの線量を、より合理的な線量係数を用いて再評価する。一般に放射性セシウムの摂取量 (Bq) から内部被ばくによる実効線量 (Sv) を求めるには、ICRP の線量係数が使われている。しかし、土壌に吸着に吸着された放射性セシウムや食品中に含まれる放射性セシウムでは、消化管からの吸収がされにくく、ICRP の線量係数で内部被ばく線量を計算すると、実際の被ばく線量より大きな値と評価される可能性がある。そこで、実際に福島県で採取した土壌を用い、土壌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求め、これに基づき ICRP の線量係数を修正する。また、汚染土壌で育成した食用植物（米、根菜、葉菜）、あるいは実験的に放射性セシウムで汚染させた土壌や食品を実験動物に経口摂取させ、消化管吸収率等を求め、ICRP の勧告値との違いを明らかにする。研究初年度の平成 28 年度には、このようなトレーサ実験を行うための設備・装置の整備を完了し、福島県で採取した土壌を用いた実験動物での放射性セシウムの全身滞留率を明らかにする。平成 29 年度は実験的に放射性セシウムで汚染させた土壌や食品を実験動物に経口摂取させ、どの程度消化管で吸収されるのかなど、体の中での動きを明らかにする。平成 30 年度には、摂取される土壌や食品、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、より実際の合理的な線量係数を算出する。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ことを提示する。

3. 第一、第二のアプローチを統合

平成 30 年度には、研究のまとめとして上記の①及び②のアプローチにより得られたデータに基づき高精度な内部被ばくの線量評価を行い、結果を各方面に提示していく。被ばく線量は、健康影響の評価、健康管理、及び不安解消の取組みのもっとも基礎となるデータであり、これをより現実的かつ高精度化することにより、適切な健康管理と被災者の不安軽減に貢献したい。さらに、ICRP の体内線量評価モデル（消化管モデルや呼吸器代謝モデルなど）に導入できる形に計算・整理し、ICRP や IAEA に提示して今後の線量評価モデルの策定や原子力災害時の線量評価に活用す

るように働きかけていく。

(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する。

III. 研究結果

1. 短半減期核種の寄与を考慮した線量評価

対象とすべき短半減期核種を特定するため、平成 28 年度は、放出量、半減期（食品を経由して人に至る程度の半減期か否か）、線量係数、実際の飛散状況等について調査し、人への健康影響という点で Te-127m、Te-129m、Sr-89、Zr-95、Ag-110m が重要度の高い短半減期核種であることを明らかにした。特に、それらの核種のうちでも、放射性テルルが線量寄与という点で重要であることから、放射性テルルを対象として実験的研究を開始した。人での線量評価をするために必要な土壌—食用植物間の移行係数については、ほとんどデータが無いことから、平成 28 年度に葉菜や根菜を対象に土壌から植物への移行係数を求める実験を開始し、平成 29 年度には実験的に移行係数を決定するとともに、国際原子力機関が提示する移行係数との比較や考察を加え日本保健物理学会誌に発表した。具体的には、表Ⅲ-1 に示したように、福島県で採取した畑土を含む 4 種類の土壌における葉・根菜（ラディッシュと小松菜）への移行係数を実験的に求めたところ、テルルの移行係数の平均値は 0.022-0.027 の範囲にあり、IAEA が技術書 472 で葉菜・根菜に対して提示している値 0.3 よりかなり小さいことが分かった。一方、Cs についてみると、本実験で得られた移行係数は平均で 0.10-0.24 程度と比較的大きく、IAEA の技術書 472 で提示されている値 0.015-0.038 より大きな値であった。

表Ⅲ-1 本研究で実験的に得られたラディッシュと小松菜における Te と Cs の移行係数

	Te の移行係数 (範囲)				平均	Cs の移行係数 (範囲)			平均
Radish	Root	0.009	-	0.030	0.023	0.011	-	0.27	0.101
	Leaf	0.009	-	0.032	0.022	0.023	-	0.76	0.244
Komatsuna		0.007	-	0.051	0.027	0.007	-	0.39	0.115

表Ⅲ- 2 本研究で得られた Te と Cs の移行係数と IAEA 技術書 472 で提示されている移行係数の比較

		Te の移行係数*		Cs の移行係数*	
		本研究の実験値	IAEA TRS 472	本研究の実験値	IAEA TRS 472
Radish	Root	2.3E-02	3.0E-01	1.0E-01	1.5E-02
	Leaf	2.2E-02		2.4E-01	—
Komatsuna		2.7E-02		1.2E-01	3.8E-02

*Te の移行係数は TRS472 の Table 17、Cs の移行係数は TRS472 の Table 21 に記載の数値を使用している。

そこで、平成 29 年度にはこれらの土壌植物移行係数を用いて、事故後の短期間において被災者が放射性テルルによって受けた可能性のある内部被ばく線量の推定を行った。対象とする区域は、福島県南西部の放射性セシウムに比べ放射性テルルの土壌濃度が高い区域（A 区域とする）、及びそれ以外の福島県全域（B 区域とする）に分けた。ICRP の線量係数における年齢区分にしたがって乳児から成人までの各年齢層にわけて線量計算を行っているが、ここでは代表的な 5 歳齢と成人の区分について表Ⅲ-3 に示した。

表Ⅲ- 3 放射性テルルによって受けた可能性のある内部被ばく線量比*の推定

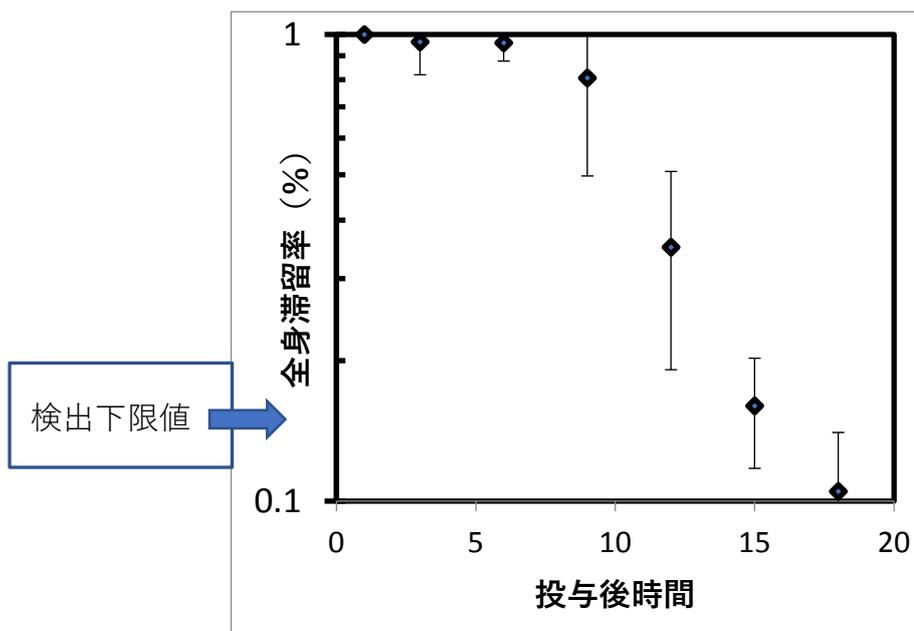
区域	核種	IAEA・TRS472 の移行係数 を使ったとき		本研究での移行係数を使 ったとき	
		5 歳	成人	5 歳	成人
A	$^{127m}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$	2.00E+01	3.60E+00	2.30E-01	4.20E-02
	$^{129m}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$	3.70E+01	6.80E+00	1.50E-01	2.70E-02
	$(^{127m}+^{129m}\text{Te})/(^{134}+^{137}\text{Cs})$	2.50E+01	4.40E+00	1.80E-01	3.20E-02
B	$^{127m}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$	2.30E+00	4.10E-01	2.70E-02	4.80E-03
	$^{129m}\text{Te}/^{137}\text{Cs}$	4.20E+00	7.80E-01	1.70E-02	3.10E-03
	$(^{127m}+^{129m}\text{Te})/(^{134}+^{137}\text{Cs})$	2.90E+00	5.00E-01	2.10E-02	3.60E-03

*表Ⅲ-1 で示した移行係数の実験値を用い、生育期間を考慮して根菜は 2011 年 10 月 30 日に、葉菜は 4 月 30 日に収穫し、1 年間摂取したと仮定した場合の預託実効線量比。

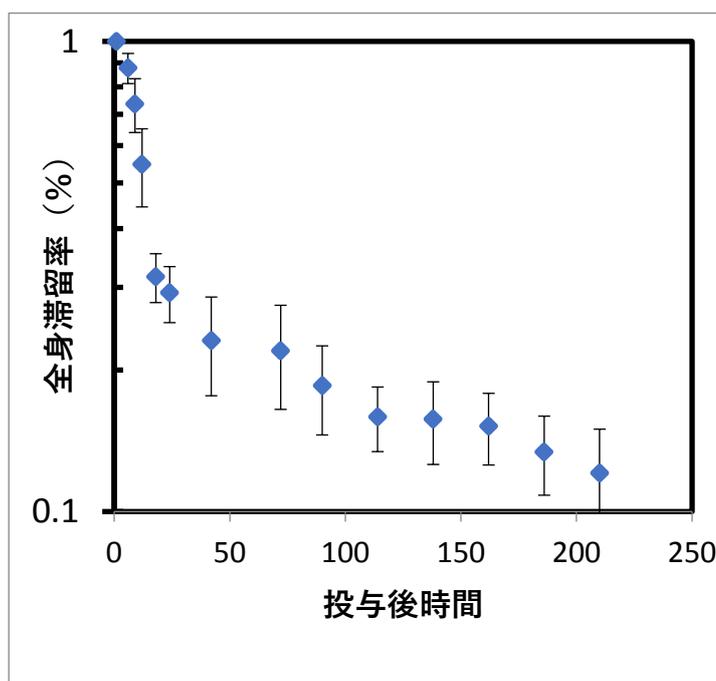
2. 合理的な線量係数を考慮した線量評価

平成 28 年度に必要な試料（汚染土壌と非汚染土壌）、動物実験装置（ケージや収納箱、麻醉器）、全身計測装置の入手や整備を終え、福島県の比較的汚染の激しい地域から採取した土壌（Cs で汚染されているが非管理区域で使用できる）を用いて動物実験を行い、土壌に吸着している Cs の消化管からの吸収率が極めて低いことを明らかにした。本年度は、動物数を増やし実験精度の向上を図り、土壌に吸着された放射性セシウムは摂取後の 10 時間程度は、消化管内の内容物の通過速度に近い速度で消失していくこと、すなわち、ほとんど体内に吸収されないことを確認した（図

Ⅲ-1)。しかし、このような環境試料では放射能濃度が低いため長期間の代謝や微量の体内への吸収を調べることができなかった。そこで、非汚染の土壤に Cs-137 を添加し、これを用いての動物実験を行った。その結果、図Ⅲ-2 に示したように、土壤に吸着された放射性セシウムは二相性に消失することが示された。早期の急速な消失は消化管の通過を、その後のゆっくりとした消失はいったん体内に摂取された後の排泄によるものと推察されたが、現在、動物数を増やすとともに、消化管吸収率を求めるための解析を進めている。



図Ⅲ-1 福島県で採取した土壤をラットに経口投与した際の ^{137}Cs の全身滞留率



図Ⅲ-2 ^{137}Cs 溶液を滴下した土壤をラットに経口投与した際の ^{137}Cs の全身滞留率

IV. 考察

プラントからの放出量の多寡、半減期（食用作物の植付けから収穫までの期間程度の半減期を持つか否か）、線量係数などを考慮すると、今回の事故において人の健康に及ぼす影響という観点からは放射性テルル（Te-127m：半減期 109 日、Te-129m：半減期 34 日）が着目されるべき核種であると判断された。事故後、斎藤ら（参考文献 1）は土壌における Te-129m の濃度を測定し報告しており、これを土壌—植物移行係数とともに用いると線量再構築（被ばく線量の推定）が可能である。そこで、筆者らは、この土壌で育成された白米を事故後に収穫して摂取した場合の内部被ばく線量を IAEA の技術書 472 に記載された土壌—白米の移行係数を用いて推定した（参考文献 2）。しかしながら、使用された移行係数はわずか 1 例の実験データによるものであり、わが国の土壌でのデータではない。そこで本研究では、福島県で採取された土壌など、わが国の畑地や水田で採取された土壌を用いてテルルの土壌—植物間移行係数を実験的に求めた。その結果、表 III-1 に示したように土壌の種類や作物によって変動するが、平均で 0.02 程度と IAEA の技術書で提示された値 0.3 よりかなり小さかった。この原因については不明であるが、一般に移行係数は土壌や対象作物の種類によって 1 ケタ程度変動することは知られており、この程度の相違が特異的に大きいとはいえない。

次に、得られた移行係数を用い、生育期間を考慮して根菜は 10 月 30 日に、葉菜は 4 月 30 日に収穫し、1 年間摂取したと仮定した場合の預託実効線量を評価したところ、放射性セシウムに比べ放射性テルルの土壌濃度が高かった福島県の南西部では、今回の研究で得られた移行係数を用いると成人及び 5 歳児で、放射性セシウムの与える線量のそれぞれ 0.032 及び 0.18 倍であり、放射性テルルの線量寄与はさほど大きくないと推定された。しかしながら、もし移行係数に IAEA の技術書に提示された値を用いると、成人及び 5 歳児で、放射性セシウムの与える線量のそれぞれ 4.4 及び 25 倍となり、放射性テルルの線量寄与はかなり大きかったと見積られる。このことは、移行係数などの線量再構築に必要なパラメータをできるだけ福島の実環境状況に合わせて収集していくことの重要性を示しており、今後、引き続き、多様な土壌と作物の組み合わせにおける、より実際的なパラメータを提示する必要性を示唆している。

図 III-1 に示したように、福島県で採取した土壌を用いた実験では、土壌に吸着された放射性セシウムの消化管吸収率は非常に低いことが実証された。実験に用いたラットの場合、消化管を通過するのに最短でも 6 時間程度有するとされているが、本研究においても約 6 時間後から排泄物中に放射性セシウムが認められ、一般にラットによって観察されている半減期数時間程度で排泄されていた。すでにサバンナリバーの核実験場で採取された土壌吸着セシウムにおいて消化管吸収率が低いという先行研究があり、本研究でも確認されたことになる。しかしながら、福島県で採取された土壌では放射能濃度が低く、長期間にわたって体内への取り込みや排泄をトレースすることができなかった。このため、研究計画を一部変更し、非汚染の土壌に放射性セシウムの硝酸溶液を滴下したものをを用いた実験を追加した。その結果が図 III-2 である。消化管の単純な通過を示す初期の急速な消失と、その後の比較的長い生物学的半減期を有する消失の二相性のクリアランス曲線が得られた。現在、例数を増やし正確な消化管吸収率の推定を行っているところである。また、土壌に吸着された放射性セシウムは、時間を経るにしたがってより強固に吸着される

ことが知られており、エージング効果と称されている。今後は、このようなエージングの効果についても検討を行っていく必要がある。

V. 結論

福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された短半減期の放射性核種に関しては、放射性ヨウ素を除くと放射性テルルが人での内部被ばく影響という観点から重要であることが分かった。福島県で採取した土壌を含む4種類の土壌を用いて土壌—植物（根菜、葉菜）間の移行係数を実験的に求めたところ平均値で0.02程度であり、これはIAEAの技術書(TRS472 Table 17)で葉菜・根菜に対して与えられている0.3より小さいことが分かった。求められた移行係数を用いてこれらの根菜・葉菜を事故後1年間、国民の平均的な量を摂取したと仮定すると、5歳及び成人で放射性セシウムが与える内部被ばく線量の、それぞれ0.032及び0.18倍であり、放射性テルルの線量寄与はさほど大きくないと推定された。

福島県で採取した土壌を実験動物（ラット）に経口投与し、その後の体内滞留について調べたところ、ほとんどが消化管の通過速度程度で排泄されており、土壌に吸着された放射性セシウムは消化管から吸収され体内に移行する量が少ないことが分かった。しかしながら、福島県で採取した土壌では放射エネルギーが少なく、長期間の追跡が困難であったため、放射性セシウムを滴下して作成した汚染土壌を用いて同上の実験を行ったところ、動物体内から早期の急速は消失とその後の比較的ゆっくりした消失が観察された。前者は単純な消化管通過によるもの、後者はいったん体内に吸収されたのちの排泄によるものと推察された。以上のことから、土壌に吸着された放射性セシウムは消化管からの吸収が少なく、ICRPの消化管モデルを使った線量評価を行うと過度に保守的（実際の被ばく線量より大きな値）となる可能性が示唆された。

VI. 次年度以降の計画

研究は当初の研究計画にしたがって順調に進展しており、一部の動物実験を除き実験的な研究を平成29年度に完了できた。平成30年度は、食餌や生理的状态が放射性セシウムの消化管吸収率に及ぼす影響を実験的に明らかにするとともに、これまでに得られたパラメータを使って、事故後の短期間における内部被ばく線量の推定を行う。また、学術論文や国際会議等での発表を進めるとともに、健康影響の評価と健康管理、及び不安解消の取組みに利用できる形で一般向け雑誌・書籍、講演会等で発表していく。さらに、ICRPの体内線量評価モデル（消化管モデルや呼吸器代謝モデルなど）に導入できる形に計算・整理し、ICRPやIAEAの関係者に送付したり、関連する会議で発表し、今後の線量評価モデルの策定や原子力災害時の線量評価に活用されることを目指す。

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) Fujiwara K, Takahashi T, Kinouchi Y, Fukutani S, Hattori Y, Takahashi S. "Transfer of Tellurium and Cesium from Nutrient Solution to Radish (*Raphanus sativus* var. *sativus*) and Their Distribution in the Plant". *Jpn.J.Health Phys* 2015;50(3):189-193.

2) Takahashi T, Fujiwara K, Kinouchi T, Fukutani S, Takahashi S. "Using Experimental Transfer Factors to Estimate the Ratio between the Committed Effective Dose from Ingestion of Radio-tellurium to that of Radio-caesium Released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident". J. Health Phys; 52(1): in press.

B. 論文：査読なし
なし

C. 国内学会発表

- 1) ○岩田佳代子, 木梨 友子, 八島 浩, 高橋 知之, 高橋 千太郎. "土壤に吸着された放射性セシウムのラット胃腸管吸収率". 日本保健物理学会第 50 回研究発表会・日本放射線安全管理学会第 16 回学術大会合同大会, 2017. 06. 28-29 (大分市) ポスター賞受賞
- 2) ○岩田佳代子, 木梨友子, 高橋知之, 高橋千太郎. "土壤に添加した ^{134}Cs のラットにおける生物学的半減期および消化管吸収率". 第 60 回日本放射線影響学会, 2017.10.25-28 (千葉市)

D. 国際学会発表

- 1) ○Iwata K, Kubota T, Takahashi T, Fukutani S, Kinashi Y, Takahashi S. "Effect of wet and dry processes on the gastrointestinal absorption of radiocesium adsorbed to soil particles in rats". RadChem 2018 - 18th Radiochemical Conference, 2018.05.13-18 (Czech Republic)
- 2) ○Takahashi S, Fujiwara K, Iwata K, Takahashi T. "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". RadChem 2018 - 18th Radiochemical Conference, 2018.05.13-18 (Czech Republic)

E. 著書

- 1) 高橋千太郎, 高橋知之, 谷垣実, 稲葉次郎, 久保田善久, 山西弘城, 木梨友子, 塚田祥文, 田上恵子, 青野辰雄, 八島 浩, 鳥居建男, 斎藤公明, 藤井俊行, 佐藤信浩, 中村秀仁. "放射線防護と環境放射線安全管理". 京都, 京都大学学術出版会. 2017, 260, (原子力安全基盤科学, 3), ISBN9784814001095.

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) Saito K, Tanihata I, Fujiwara M, et al. "Detail deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident". *J. Environ. Radioactivity* 2015;139:308-319.
- 2) 藤原慶子, 高橋知之, 高橋千太郎. "福島第一原子力発電所事故により放射性テルルで汚染された白米の 経口摂取による 預託実効線量". *日本保健物理学会誌* 2016;51(1):19-26.

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

Sentaro Takahashi*

**Division of Radiation Safety Control, Kyoto University Research Reactor Institute*

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

Abstract

A large amount of radionuclides was released into the environment after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. As a result, many residents in the Fukushima Prefecture are concerned about internal radiation exposure through ingestion and inhalation of radionuclides from food, airborne particles, and soil. The purpose of this study is to estimate internal radiation doses, following the 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, we analysed existing data, reported 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 experiments were also begun to estimate gastro-intestinal absorption rates and dose coefficients. In the fiscal year 2017, the second year of this research program, the transfer factors of Te from soil to plants and the gastro-intestinal absorption ratios of Cs were determined via plant and animal experiments. The transfer factors of Te were 0.023 and 0.027 in averages for radish root and komatsuna, respectively. The committed effective doses of radio Te, calculated using these transfer factors, were 18.0 and 3.2 % that of radio Cs for 5 years old and adult, respectively, at the south-east region where the concentration of Te was relatively higher than that of Cs. The above-mentioned estimates are based on the assumption that these vegetables were continuously consumed by people for a year after the accident. This suggests that the contribution of Te to internal radiation dose was not very significant. Animal experiments demonstrated that the absorption ratio of Cs from soil particles to the animal body was 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 the following year, we will continue to study the behaviour of Te in the environment and the human body, and work on identifying more realistic dose coefficients for Cs through animal experiments and plant culture systems. Finally, we will estimate more accurate internal radiation doses using the acquired data, and present them to relevant organizations.

1-4 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

今年度調査を行った、双葉町の住家7戸及び浪江町の16戸の計23戸と昨年度に調査した住家と合わせた計44戸の住家について解析を行った。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。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桁高く、平均値±1σは、 $6.54E-03 \pm 5.56E-03 /m$ であった。ハタキがけに従事した作業員2名の体内残留放射能の推定を行った。エアロゾル全粒径の数値を用いた計算値と精密型ホールボディカウンタによる測定値はほぼ合致した。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。$180 \mu m$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 ^{137}Cs 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 ^{137}Cs による大人の預託実効線量はハタキがけ作業中(1.3 h)に3.2 μSv と評価された。

キーワード

住家内、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

栗原 治（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・内部被ばく評価室長）

小林 光（東北大学工学研究科・准教授）

研究参加者

なし

I. 研究目的

申請者は、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)。また、環境中では不溶性放射性セシウム微粒子があちこちで見つかっているが²⁻⁵⁾、屋内でも不溶性放射性セシウム微粒子は存在すると考えられ、これによる内部被ばくが懸念されているところである。

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⁶⁾、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。住民の帰還と居住にあたっては、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うえで、上記で述べた観点から屋内汚染の状況を包括的に把握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。

前年度は、双葉町及び大熊町の主に帰還困難区域にある住家 21 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、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などが示された。2 年目の今年度は浪江町にまで調査範囲を拡大して、さらに 20 戸での調査を行い、前年度に確立した方法により試料採取及び測定・解析を進め、性状及び挙動を詳細に調べる。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

双葉町の住家 7 戸及び浪江町の 16 戸（福島第一原発からの距離 2.26～11.85 km）の計 23 戸において、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わせて使用）、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。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ター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 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

調査住家の場所を図 II-2 に示す。図 II-2 中青丸は前年度の調査住家を赤丸は今年度の調査住家の位置を示す。双葉町の 7 戸はすべて帰還困難区域にあり（そのうち 4 戸は特定復興再生拠点区域に含まれる）、浪江町の調査住家 16 戸のうち、2 戸は帰還困難区域にほかの住家は避難指示が昨年 3 月 31 日に解除された地域に位置する。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 1 軒屋である。

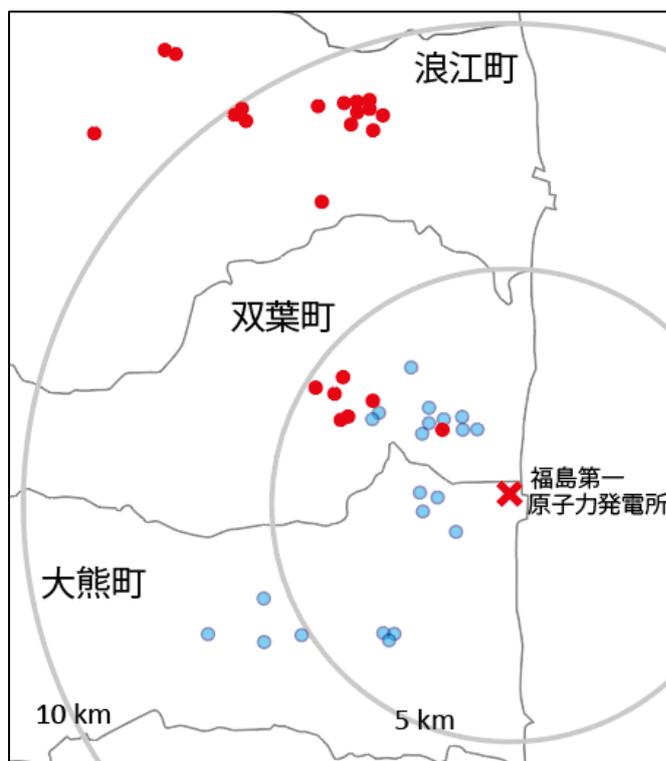


図 II-2 調査住家の場所 前年度、今年度の調査住家 をそれぞれ青丸、赤丸で示す。

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。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) 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-3 に示す。

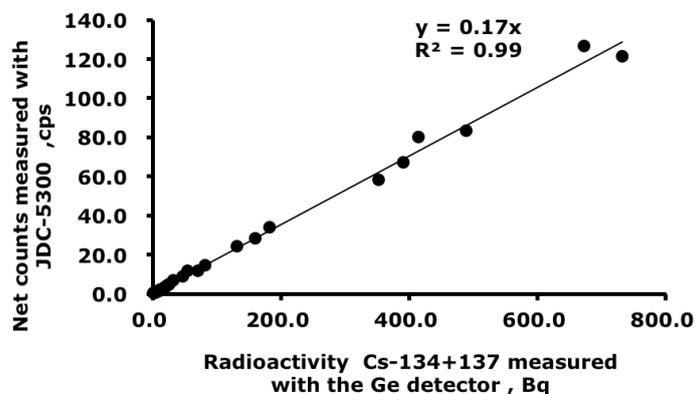


図 II-3 ゲルマニウム半導体検出器で測定した放射能, Bq とプラスチックシンチレーション検出器の測定値, cps との相関

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ので、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-4 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。

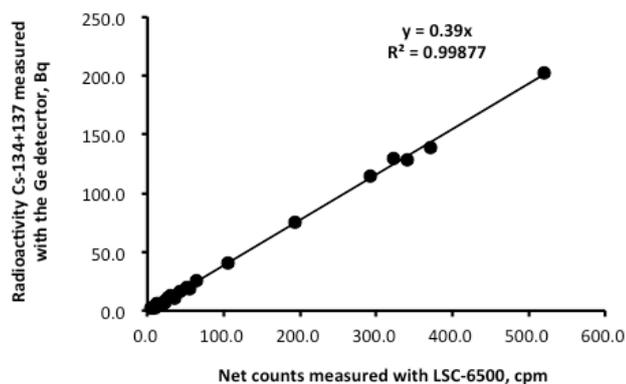


図 II-4 ゲルマニウム半導体検出器で測定した放射能, Bq と液体シンチレーションカウンタの測定値, cpm との相関

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（ $<0.25\ \mu\text{m}$, $0.25\text{-}0.5\ \mu\text{m}$, $0.5\text{-}1.0\ \mu\text{m}$, $1.0\text{-}2.5\ \mu\text{m}$, $2.5\text{-}6.6\ \mu\text{m}$, $>6.6\ \mu\text{m}$ ）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、 $\text{RaB}(^{214}\text{Pb})$ 及び $\text{ThB}(^{212}\text{Pb})$ 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气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過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⁾。

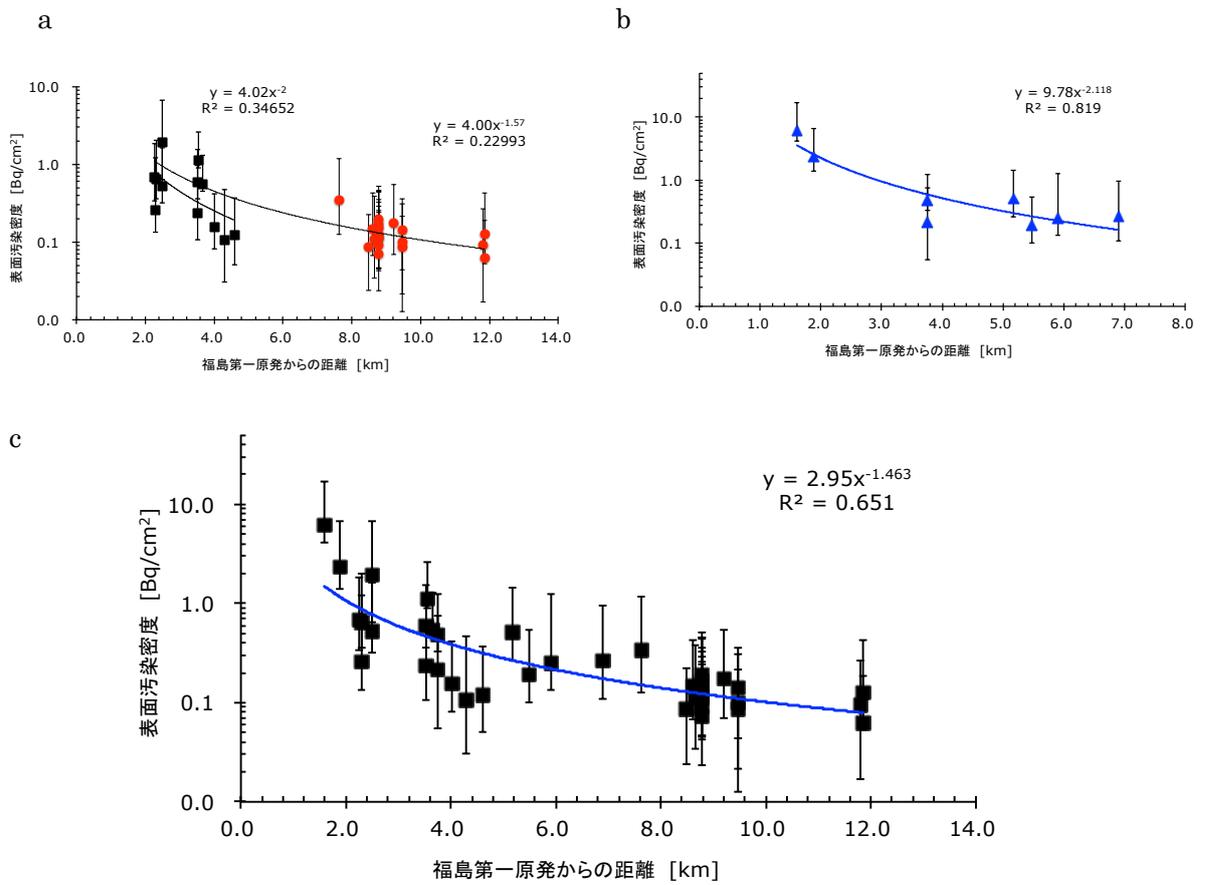
$$A_{sr} = (n - n_b) / (60 \cdot \epsilon_i \cdot F \cdot S \cdot \epsilon_s) \quad (1)$$

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、EurisyS 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。

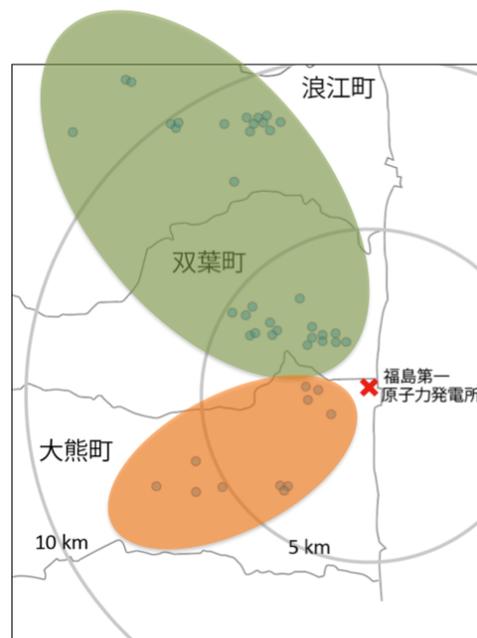
$$N_d = 3/2 \cdot \{3/T_s + [(3/T_s)^2 + 4 \times n_b \times (1/T_s + 1/T_b)]^{1/2}\} \quad (2)$$

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-1a、b、c に a: 西~北西方向 (図Ⅲ-2 の緑領域)、b: 南西方向 (図Ⅲ-2 のオレンジ領域)、c: すべての住家における表面汚染密度 (¹³⁴Cs+¹³⁷Cs) と福島第一原発からの距離との関係を示す。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。図Ⅲ-1a: 西~北西方向の住家では、双葉町の住家を■で、浪江町の住家を◆で示す。放射能は 2011 年 3 月 11 日の数値に補正してある。

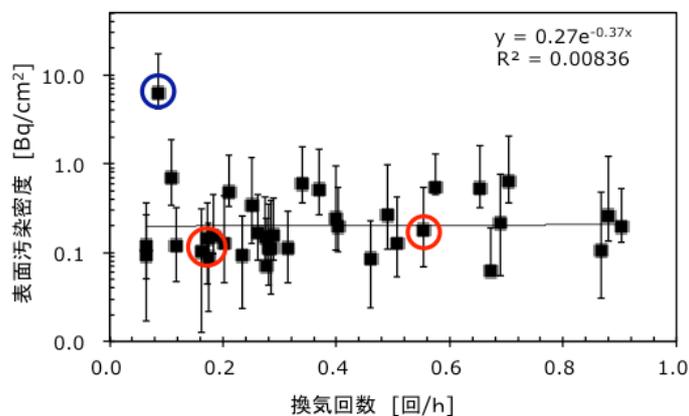


図Ⅲ-1 a:西～北西方向 (図Ⅲ-2 の緑領域)、b:南西方向 (図Ⅲ-4 のオレンジ領域)、
c:全方向の住家における表面汚染密度と福島第一原発からの距離との関係



図Ⅲ-2 調査住家の場所

図Ⅲ-3 に各住家ごとの換気回数（CO₂ 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（¹³⁴Cs+¹³⁷Cs）を示す。CO₂ 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CO₂測定器（Lutron Electric, MCH-383SD）により1分ごとにCO₂濃度を数時間測定した。また、測定の前後で屋外のCO₂濃度も測定した。得られたCO₂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。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-3 すべての住家における表面汚染密度と換気回数

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。

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

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ト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。図Ⅲ-4に各住家ごと表面汚染密度中央値に対してプロットした再浮遊係数 K を示す。図中、▲ハタキがけ、●サイクロン式掃除機、■家庭用掃除機で示す。住家の戸数、 n はそれぞれ $n=35, 17, 6$ 。四分位範囲（Q1-Q3）を用いて計算した再浮遊係数 K をバーで示した。

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）の空气中放射能濃度(Bq/m³)と表面汚染密度中央値を用いて式(3)で再浮遊係数 K (/m) を求めた。図Ⅲ-5に住家、 n 戸の平均値±1σで示す。図中、▲ハタキがけ、●サイクロン式掃除機、■家庭用掃

除機（それぞれ n=35,17,6）で示す。なお、3軒の住宅において、屋外の空気中の放射能濃度を計測した。（6時間～30時間のサンプリング）すべての住宅において、すべての粒径のエアロゾルで検出限界以下であった。

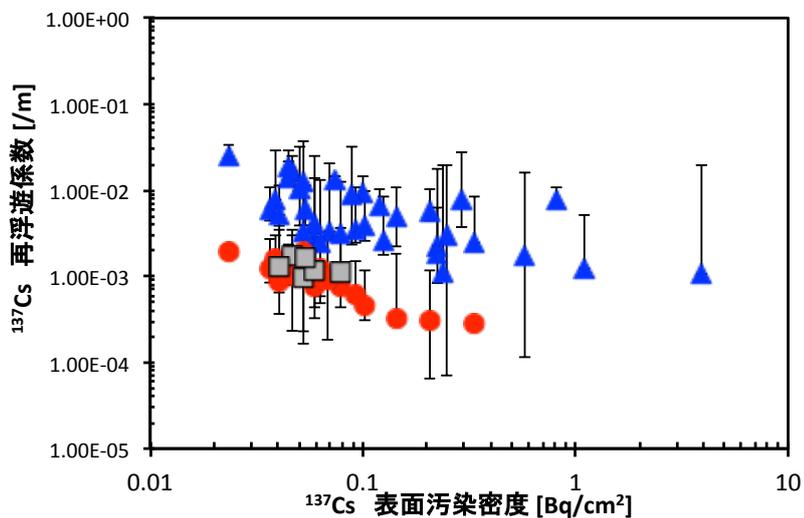


図 III-4 全粒径のエアロゾルの数値を用いて評価したときの、表面汚染密度中央値に対してプロットした再浮遊係数 K

▲ハタキがけ、●サイクロン式掃除機、■家庭用掃除機

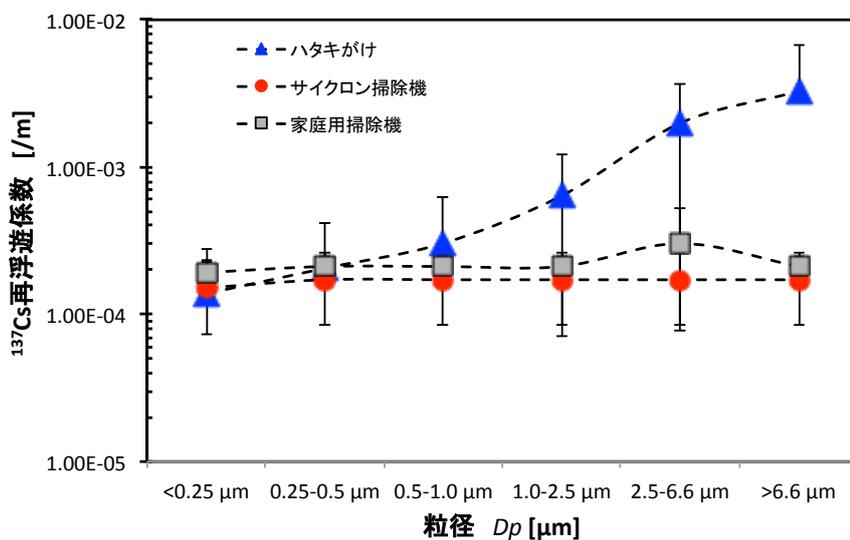


図 III-5 粒径別のエアロゾルの数値を用いて評価したときの、算出表面汚染密度中央値に対してプロットした再浮遊係数 K

▲ハタキがけ、●サイクロン式掃除機、■家庭用掃除機

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

双葉町の住家7戸及び浪江町の16戸の計23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-6に示す。高さ方向に万遍なく付着しており、ハタキがけによる上からの落下の影響が大きいと考えられる。

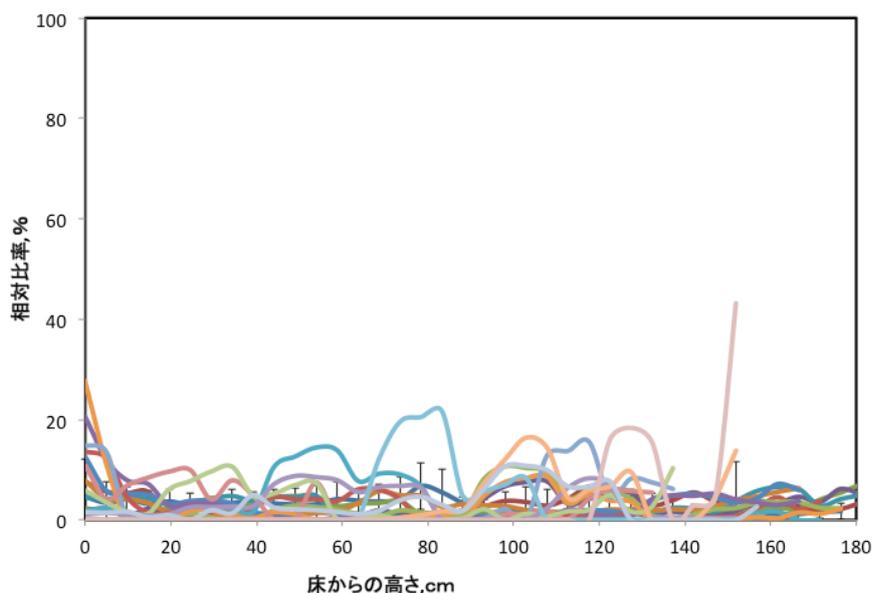


図 III-6 はたきがけ、掃き掃除、(掃除機がけ)の作業中の舞い上がりが付着したろ紙をイメージングプレートで測定

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-1a、b、cの西～北西方向、南西方向、すべての住家において、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-1a:西～北西方向では双葉町と浪江町とを色分けして示したが、浪江町での近似式は双葉町と別途、図に示すように近似したほうがより妥当であるように見える。すなわち浪江町では福島第一原発からの距離との相関において、表面汚染密度が双葉町よりやや高めにあることが示されており、放射性プルームの通過経路や通った回数との関係が示唆される。図III-3は、表面汚染密度と換気回数には相関がないことを示している。図中赤い円の枠内は鉄筋コンクリート造である。左の赤い円の枠内の3つのデータは集合住宅の1、2、3階におけるものでほぼ同じ換気回数を示していたが、右の赤

い円の枠内の 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、青い円の枠内の住家は換気回数は少ないが、この住家は福島第一原発から 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り、表面汚染密度は調査住家の中で一番高い。この結果は、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なる検討を要する。

2. 表面汚染からのエアロゾル再浮遊係数の評価

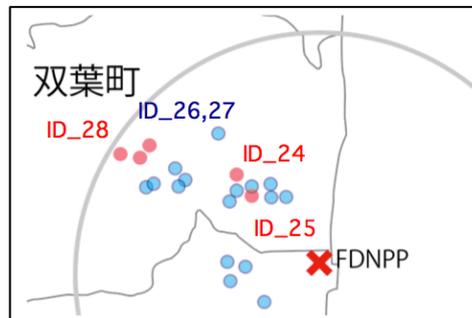
図 III-4 にエアロゾル全粒径の数値を用いて各住家ごと表面汚染密度中央値に対してプロットした再浮遊係数 K を示した。 ^{137}Cs 再浮遊係数が表面汚染密度に対してゆるやかな逆相関にあることが示された。再浮遊係数は他のサイクロン式掃除機、家庭用掃除機作業時に比べハタキがけが 1 桁高い。 ^{137}Cs 再浮遊係数(/m), 平均値 $\pm 1\sigma$ は、ハタキがけ (35 戸) の場合に $6.54\text{E-}03 \pm 5.56\text{E-}03$ /m、サイクロン式掃除機(17 戸)の場合に $9.36\text{E-}04 \pm 4.48\text{E-}04$ 、家庭用掃除機 (6 戸) の場合に $1.34\text{E-}03 \pm 3.15\text{E-}04$ 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、1/2 の値で評価している。図 III-5 にエアロゾル粒径別の数値を用いて、表面汚染密度中央値に対してプロットした再浮遊係数 K を示した。ハタキがけでは再浮遊係数は粒径に関連しており、粒径が大きくなるほど再浮遊係数が大きくなる傾向にあることを示している。これは、粒径が小さいほど室内空気 1 m^3 あたりの放射能が低い (エアロゾル中の放射能について分担研究者の報告書で記述。) ことによる。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、1/2 の値で評価しているため、ハタキがけと同様な傾向は示されていない。

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⁸⁾。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 $1.0\text{E-}7 \sim 1.0\text{E-}5$ /cm、プルトニウム等を取扱う作業時は $1.0\text{E-}7 \sim 1.0\text{E-}6$ /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 $1.0\text{E-}7 \sim 1.0\text{E-}5$ /cm としている⁸⁾。すなわち、 $1.0\text{E-}5 \sim 1.0\text{E-}3$ /m であるので上記のハタキがけの場合の数値 $6.54\text{E-}03 \pm 5.56\text{E-}03$ /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

やけばだった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. 作業者の体内残留放射能の推定

本調査でサンプリングに関わった 3 人の作業者を対象に、体内への摂取量の推定を行った。ここで、作業者 A はサイクロン式掃除機でのサンプリング作業が主であり、作業者 B は作業日それぞれにおいて双葉町の ID_24,25,28 でハタキがけに主に従事した。ただし、6/6 に川内村民宿で市場流通品でない川魚と山菜を食べている。作業者 C は作業日それぞれにおいて双葉町の ID_26,27 でハタキがけに主に従事した。ID_24,25,26,27,28 の住家の場所を図IV-1 に示す。図中、作業者 B が作業した住家 ID を赤で、作業者 C が作業した住家 ID を青でそれぞれ示す。



図IV-1 作業者 B,C が作業した ID_24,25,26,27,28 の住家の場所。作業者 B が作業した住家 ID を赤で、作業者 C が作業した住家 ID を青でそれぞれ示す。

ハタキがけに従事した作業者 B,C について吸入による摂取量 I_a (Bq) の評価を(4)式を用いて行った。

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

C : 空气中放射性物質濃度、M : 呼吸率、t : 滞在時間

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。

作業者 B が作業を行った ID_24,25,28（双葉町）各住家でのハタキがけ中の空气中 ^{137}Cs 濃度, C (Bq/m³) の全粒系合算値は ID_24: 5.2 (本宅), 61.2 (はなれ)、ID_25: 22.97、ID_28: 5.18。滞在時間 t (h) はハタキがけ作業時間で ID_24: 140/60+37/60, ID_25: 119/60, ID_28: 129/60 であった。放射性 Cs の実効半減期は 90 日なのでこれを加味すると $I_{a,t=90} = 92.97 \text{ Bq}$ と算出される。マスクの透過率は装着の仕方で大きな幅があるが、ここでは 0.5 と考える。作業者 B の体内残留 ^{137}Cs 量は 46.49 Bq となりこの数値は章末参考に示す表 IV-1 の精密型ホールボディカウンタ (WBC) 測定値 40.1 Bq とほぼ同じとなる。

作業員 C についても同様に計算した。ID_26,27 (双葉町) 各住家でのハタキがけ中の空気中 ^{137}Cs 濃度, $C(\text{Bq}/\text{m}^3)$ 全粒子合算値及び滞在時間 t (h) は ID_26 : $C=6.36$, $t = 85/60$, ID_27 : $C=2.27$, $t = 93/60$ で $I_{a,t=90} = 11.50 \text{ Bq}$ と算出される。マスクの透過率を 0.5 として作業員 C の体内残留 ^{137}Cs 量は 5.75 Bq となりこれは検出限界放射能 (MDA) 18.5 Bq (表 IV 1) より低い。

2 例しかないものの、作業員 B, C の 2 例について空気中濃度からの計算値と WBC 測定結果の整合性はあるように見える。本調査で行っているハタキがけ作業は部屋の窓や扉を締め切り集中して行なうなどかなり過酷な条件である。住民が通常行なう窓を開けてのハタキがけを含む単発の掃除ではこの数値ほど高くなることは考えにくい。さらに、住民の内部被ばく線量測定に利用されている代表的機種である米国キャンベラ社製の FASTSCAN で標準的な測定時間 2 分で測定した場合の MDA は ^{137}Cs について 300 Bq^9 であるため、ハタキがけを含む掃除後に住民から MDA を超える ^{137}Cs が検出される可能性はきわめて低い。FASTSCAN で ^{137}Cs が検出された場合には、食事由来である摂取の可能性が高いと考えられるため、食生活及び活動内容の両方について調査して経路を明確にする必要がある。

(参考) 本調査でサンプリングに関わった 3 人の作業員を対象に、体内への摂取量の測定を 2017 年 6 月 27 日に量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所で精密型ホールボディカウンタ (Whole-Body Counter: WBC) (30 分計測) により行った。結果を表 IV 1 に示す。それぞれの作業員のサンプリング作業日も同表に示す。

表 IV-1 サンプリングに関わった 3 人の作業員についての WBC 測定結果及び作業日

作業員	K-40			Cs-137			作業日
	Activity (Bq)	MDA (Bq)	error (%)	Activity (Bq)	MDA (Bq)	error (%)	
A	3.62E+03	2.81E+02	1.15E+01	2.68E+01	2.49E+01	-	2017/4/20,5/16,5/17,5/25,5/30,6/15
B	3.75E+03	2.57E+02	1.15E+01	4.01E+01	2.45E+01	12.89	2017/5/16,17,6/15
C	2.50E+03	2.84E+02	1.19E+01	>15.232	1.85E+01	-	2017/5/25,30

4. 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) ¹⁰⁾ 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) ¹¹⁾ に対応したコードであり、MIRD 型ファントム ¹²⁾ で整備された吸収割合データ ^{12,13)} に基づき、線量を計算する。評価にあたっては、本研究で得られた粒径分布及び溶存性情報を組み入れて行った。昨年度及び今年度で調査を行った 44 戸においてハウスダスト及びハタキがけ中のエアロゾルの最大値を示した住家 (ID_4 と

ID_1、福島第一原発からそれぞれ 1.88km、1.60km) それぞれを対象とし大人について 1 日もしくは 1 回の被ばく線量を評価した。なお、ID_4 と ID_1 は双方とも中間貯蔵施設の用地の区域にある。

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るが、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¹⁴⁻¹⁶⁾、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¹⁷⁾。その結果、ハウスダストが最大値を示した住家 (ID_4) においてこのサイズのハウスダストを 20 mg/日 (US EPA, 2017 による) 摂取した場合の¹³⁷Cs による預託実効線量は 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、ICRP Publ.66¹⁸⁾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 μm 、5 μm 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¹⁷⁾。マスク装着による透過率を 0.5 として吸入による摂取量 I_a (Bq) の評価を(4)式に従って行った結果、エアロゾルが最大値を示した住家 (ID_1) において¹³⁷Cs による預託実効線量はハタキがけ作業中 (1.3 h) に 3.2 μSv と評価された。

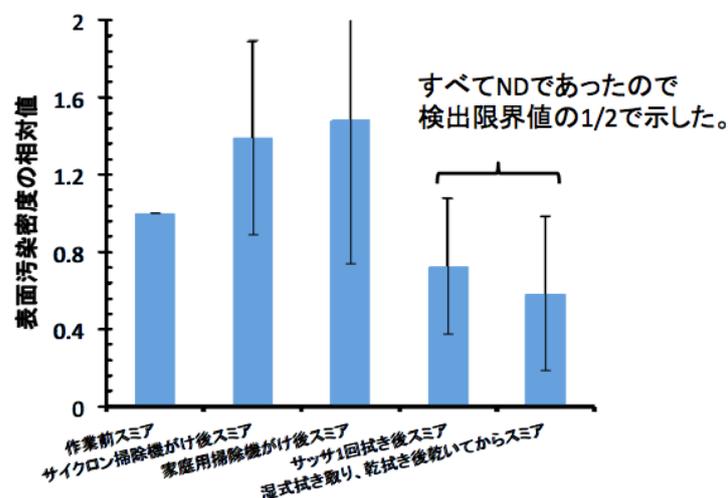
なお、ハタキがけ作業中に作業者が装着したマスクから検出された不溶性粒子¹⁹⁾について、ID_9 の住家で使用された Mask-1 の粒子は、直径 2.1 μm の球形で肺胞に届く確率が高いため、Mask-12 に比べ Mask-1 の方が放射能が 1/100 程度 (¹³⁴Cs: 0.182 Bq、¹³⁷Cs: 1.03 Bq) であるが 99%ile 値は Mask-1 の方が大きくなり、4.1 μSv と試算された²⁰⁾。

5. 帰還する住民に資する情報 推奨される掃除の仕方

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 4 つの住家において、異なる作業 (掃除) を行った後に表面汚染密度がどう変わるか、すなわちいかに表面の汚染が除去されるかを調べた。それぞれの掃除は同じ面の異なる箇所で行った。①作業前のスミア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サッサ (化学雑巾) 1 回拭き取り後スミア⑤湿式拭き取り、乾拭き後乾いてスミアの結果を比較している。図IV-2 に①作業前のスミアでの表面汚染密度を 1 としたときの各作業後の表面汚

染密度の比を示す。図中棒グラフとバーは各住家においてそれぞれ 2 回ずつ行ったすべての結果の平均値と 1 σ を表す。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、作業前より表面汚染密度が上がっている。④サッサ（化学雑巾）1 回拭き取り後スミア⑤湿式拭き取り、乾拭き後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。この結果は、②サイクロン掃除機がけ③家庭用掃除機がけにより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。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、汚染は除去されない。汚染の除去には④サッサ（化学雑巾）1 回拭き取り⑤湿式拭き取りがきわめて効果的である。

特に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-2 異なる作業（掃除）後の表面汚染密度の相対値

V. 結論

今年度は、双葉町の住家 7 戸及び浪江町の 16 戸の計 23 戸の調査を行った。昨年度に調査した住家と合わせた 44 戸の住家について解析を行った結果、福島第一原発の西～北西方向、南西方向のいずれの住家でも、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。表面汚染密度と換気回数には相関が認められなかった。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住家ごとに再浮遊係数を評価した。¹³⁷Cs 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 1 桁高く、平均値±1 σ は、 $6.54E-03 \pm 5.56E-03$ /m であった。ハタキがけに従事した作業員 2 名の体内残留放射能の推定を行った。エアロゾル全粒径の数値を用いた計算値と精密型ホールボデー

イカウンタによる測定値はほぼ合致した。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。$180\ \mu\text{m}$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 (US EPA, 2017 による) 摂取した場合の ^{137}Cs 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いて ^{137}Cs による大人の預託実効線量はハタキがけ作業中(1.3 h)に3.2 μSv と評価された。

VI. 次年度以降の計画

来年度の前期は同調査を続行するとともに挙動についてさらに詳細な検討を加える。これまで調査してこなかった浪江町の西側の地域(帰還困難区域)及び福島第一原発の南側の地域において10戸以上の調査を計画している。これまで調査した住家44戸のうち4戸が鉄筋コンクリート住宅で残りはすべて木造家屋1軒屋であった。これまでの調査結果では、換気率と屋内汚染の放射能に差は見られていないが、来年度の調査では家屋のタイプに着目し、調査住家の選択及びデータの差について検討を加える。さらに、掃除方法による除染効果や、はたき掛け後に舞い上がったエアロゾル濃度の減衰について、実住宅を用いてさらにデータを収集する。後期には不溶性セシウム微粒子を含むこれまでに得られた知見及び成果を総合して住民にとってより現実的な被ばく線量の評価を行うとともに、住家内での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行なう。

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

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

B. 論文：査読なし

なし

C. 学内学会発表

- 1) ○篠原直秀、吉田浩子. 「福島第一原発近傍の住宅室内におけるハウスダストおよびエアロゾル中の放射性セシウム汚染」 日本保健物理学会, 2017/6/29 (大分)
- 2) ○篠原直秀、吉田浩子, 反町篤行. “福島第一原発近傍の住宅室内における清掃時のエアロゾル中の放射性セシウム汚染”. 大気環境学会, 2017/9/7-8 (神戸)
- 3) ○吉田浩子、篠原直秀. 「福島第一原発周辺住家内における表面汚染からの

再浮遊係数」 日本原子力学会秋の大会, 2017/9/15 (札幌)

D. 国際学会発表

1) ○Shinohara, N., Yoshida, H. “Radiocaesium contamination in house dust and indoor aerosol in residential houses within the evacuation areas in Fukushima prefecture”. Healthy Buildings Asia 2017, 2017/9/2-5 (台南, 台湾)

E. 著書

なし

F. 講演

1) 吉田浩子.「帰還後の生活再建 家屋内外における残存汚染の状況と対応」(招待講演)放射線影響学会キャッチアップセミナー, 放射線影響学会, 2017/6/5(東京)

2) 吉田浩子.「帰還した地域の放射線対応」シンポジウム: 福島事故による被災地域での生活再建支援: 帰還に向けた放射線防護上の課題, 日本保健物理学会第50回研究発表会・日本放射線安全管理学会第16回学術大会合同大会, 2017/6/28(大分)

3) 吉田浩子.「住家内での再浮遊エアロゾルと作業者の WBC 測定例」シンポジウム I 福島事故後の内部被ばくの課題の解決に向けて -不溶性粒子と短半減期核種 内部被ばく影響評価委員会, 日本保健物理学会, 2018/3/19(東京)

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) Higaki, S., Kurihara, Y., Yoshida, H., Takahashi, Y., Shinohara, N., Discovery of non-spherical heterogeneous radiocaesium-bearing particles not derived from Unit 1 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, in residences five years after the accident. J. Environ. Radioact. 2017; 177: 65-70.

2) 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. 2018; 187: 32-39. (総説)

3) 吉田浩子. 暮らしの手引き～専門家に聞いた放射線 30 のヒント～ 生活問題の放射線に関する疑問への助言作成委員会. 2017. (委員会メンバーとして分担)

執筆)

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) Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., Igarashi, Y., Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.* 2013 ; 3: 2554. <http://dx.doi.org/10.1038/srep02554>.
- 3) Kogure. T., Yamaguchi, N., Segawa, H., Mukai, H., Motai, S., Akiyama-Hasegawa, K., Mitome, M., Hara, T., Yaita, T., Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima nuclear plant. *Microscopy* 2016; 65: 451e459. <http://dx.doi.org/10.1093/jmicro/dfw030>.
- 4) Satou, Y., Sueki, K., Sasa, K., Adachi, K., Igarashi, Y., First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Anthropocene* 2016; 14: 71-76. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ancene.2016.05.001>
- 5) Furuki, G., Imoto, J., Ochiai, A., Yamasaki, S., Nanba, K., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R.C., Utsunomiya, S., Caesium-rich micro-particles: a window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi nuclear power plant. *Sci. Rep.* 2017; 7: 42731. <http://www.nature.com/articles/srep42731>
- 6) 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>
- 7) JIS Z 4504, Evaluation of surface contamination beta-emitters (maximum beta energy greater than 0.15 MeV) and alpha-emitters. 2008.
- 8) 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.
- 9) 日本保健物理学会専門研究会報告書シリーズ,体外計測に関する標準計測法の策定に関する専門研究会報告書, 2016. <http://www.jhps.or.jp/upimg/files/report/report9.1.pdf>
- 10) Eckerman, K.F., Leggett, R.W., Cristy, M., Nelson, C.B., Ryman, J.C., Sjoreen A.L., Ward, R.C. User's Guide to the DCAL System. ORNL/TM-2001/190. 2006.

- 11) The International Commission on Radiological Protection: 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 60. 1991.
- 12) Cristy, M., Eckerman, K.F., Specific Absorbed Fractions of Energy at Various Ages from Internal Photon Sources, ORNL/TM-8381/V1-7. 1987.
- 13) Cristy, M., Eckerman, K.F., SEECAL: Program to Calculate Age-Dependent Specific Effective Energies, ORNL/TM-12351. 1993.
- 14) Yamamoto, N., Takahashi, Y., Yoshinaga, J., Tanaka, A., Shibata, Y., Size Distributions of Soil Particles Adhered to Children's Hands, 2006; 51: 157-163.
- 15) 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.
- 16) 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.
- 17) 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.
- 18) The International Commission on Radiological Protection: Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection, ICRP Publication 66. 1994.
- 19) Higaki, S., Kurihara. Y., Yoshida, H., Takahashi, Y., Shinohara, N., Discovery of non-spherical heterogeneous radiocesium-bearing particles not derived from Unit 1 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, in residences five years after the accident, J. Environ. Radioact. 2017; 177: 65-70.
- 20) 真辺健太郎 私信

Comprehensive 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

Abstract

Indoor radiocaesium contamination was analyzed for samples collected from 44 residential houses, including 23 houses in Futaba Town and Namie Town investigated in this year. A moderate inverse relationship between indoor surface contamination and distance from the 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 $6.54E-03 \pm 5.56E-03$ /m, with one standard deviation, which are higher by a factor of ten than those dusting vacuuming with cyclone handy cleaner and normal cleaner. The radiocaesium activities retained inside the body were calculated for two workers who dusted using the radiocaesium activities in aerosol collected above the resuspension. The results were consistent to the measured values by the precision model of whole body counter. Based on the measured values of house dust and aerosol, internal exposure doses due to ingestion of house dust and inhalation of aerosol were estimated using DCAL (ORNL/TM-2001/190, 2006) . House dust smaller than 180 μm is considered to contribute to oral ingestion. Assuming that an adult intakes 20 mg/day (US EPA, 2017) of the house dust smaller than 180 μm , committed effective dose of ^{137}Cs was estimated as 0.9 μSv per day for the house where the maximum radiocaesium activity of house dust was observed. Assuming that an adult inhales aerosol during dusting (1.3h), committed effective dose of ^{137}Cs was estimated as 3.2 μSv for the house where the maximum radiocaesium activity of aerosol was observed.

Keywords

indoor, radiocaesium, house dust, aerosol, cleaning, resuspension, internal exposure dose

1-4-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

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
主任研究員）

研究要旨

福島県双葉町及び大熊町の主に帰還困難区域にある住宅 23 軒において、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 Cs を測定した。ハウスダスト中の放射能は、より福島第一原子力発電所から遠い住宅での調査を多く行ったこともあり、昨年度調査より低かった。ただし、粒径が小さいほどダスト重量当たりの放射性 Cs 濃度が高くなることや、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ことについては、昨年度と同様の傾向を示した。フィルターにグリースを塗布せずにサンプリングした場合、跳ね返りなどによって正しい粒径分布が得られない可能性が示唆された。グリースを塗布したフィルターを用いて捕集した結果、エアロゾルの粒径が大きいほど、室内空気中の放射性 Cs は大きかった。はたき掛けと比べて、掃除機を使用した場合の空気中の放射性 Cs は低く、ほとんどが検出下限以下だった。

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

研究参加者

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、昨年度に調査件数の少なかった双葉町での調査件数を増やすことと、エアロゾル測定方法について再検討すること、掃除種別ごとのエアロゾル測定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

福島県双葉町及び大熊町の住家 23 軒（福島第一原発からの距離 2.26～11.85 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（サイクロン式掃除機を使用）、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。また、昨年度ハウスダストの捕集を行った住宅でエアロゾル捕集や換気測定を行っていなかった住宅の内、福島第一原子力発電所に近い住宅 2 軒において、はたき掛け中のエアロゾルサンプリングと換気測定も行った。9 軒が帰還困難区域、14 軒が居住制限区域にある。

2. ハウスダスト

① サンプリングと分級

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)。いくつかの住宅では、1 階と 2 階を分けてサンプリングを行った。



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

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ター（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。

② グリースの有無の検討

24 軒の住宅において、グリースを塗布したフィルターと塗布しないフィルターを用いて並列でサンプルングを行い、その違いを確認した。グリースの有無のフィルターにおける放射能の比を粒径別に求め、昨年度実施したエアロゾル測定結果の補正も行った。

③ 異なる掃除法を行った際の気中放射能

12 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。2 軒の住宅では、普通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。4 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、3 軒の住宅において、屋外の空気中の放射能濃度を計測するために、6 時間～30 時間のサンプルングを行った。

④ 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、測定の前後で屋外の

CO₂濃度も測定した。得られた CO₂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。

(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. ハウスダスト

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 18 軒の住宅で、粒径が<20 μm, 20–63 μm, 63–180 μm, 180–500 μm, 500–1000 μm, 1000–2000 μm のハウスダスト中の放射性 Cs は、 4.7×10^3 , 1.3×10^3 , 7.8×10^2 , 3.2×10^2 , 1.9×10^2 , 1.8×10^2 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、表 III-2)。また、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。

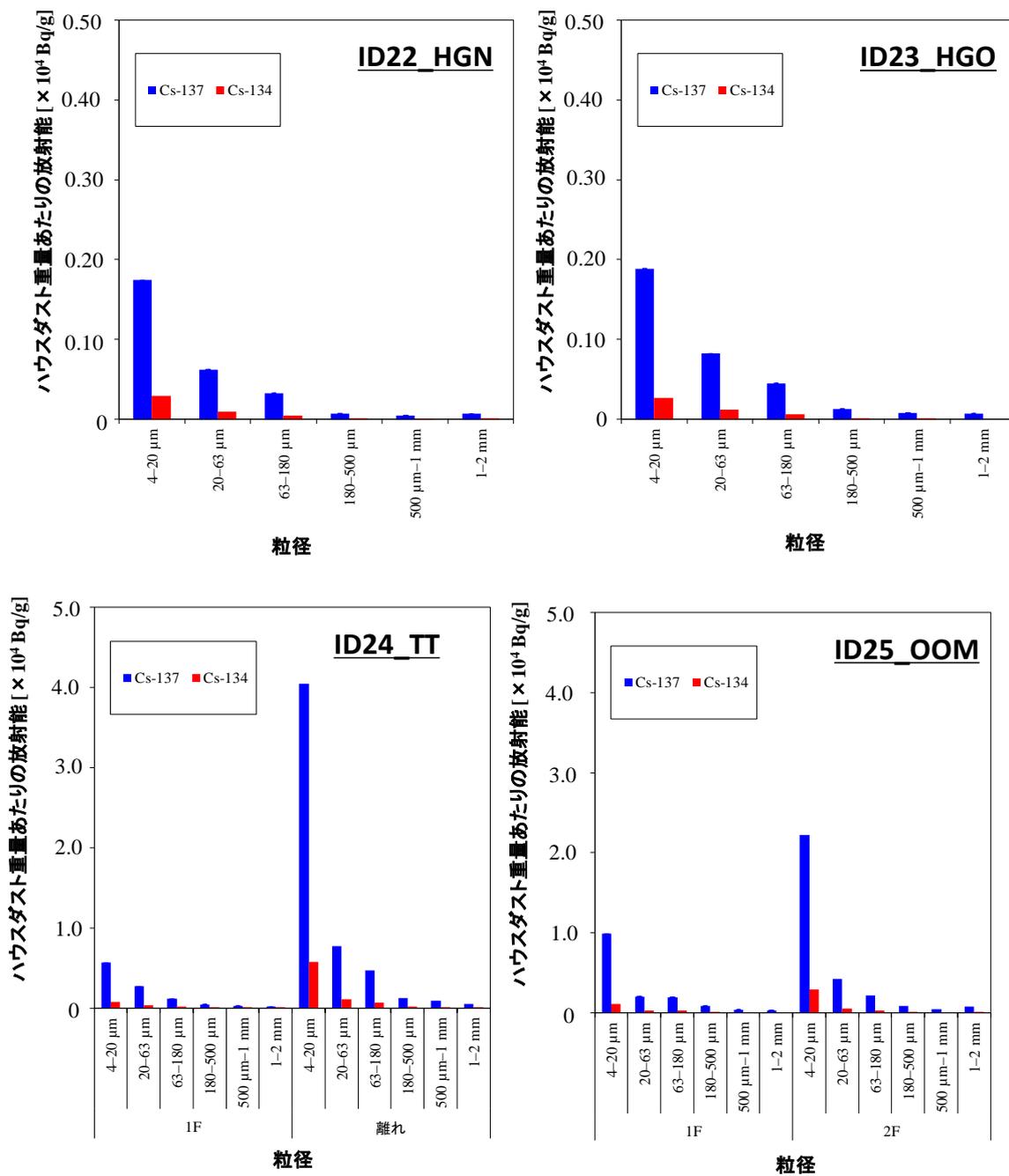


図 III-3 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs) (分担)。粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

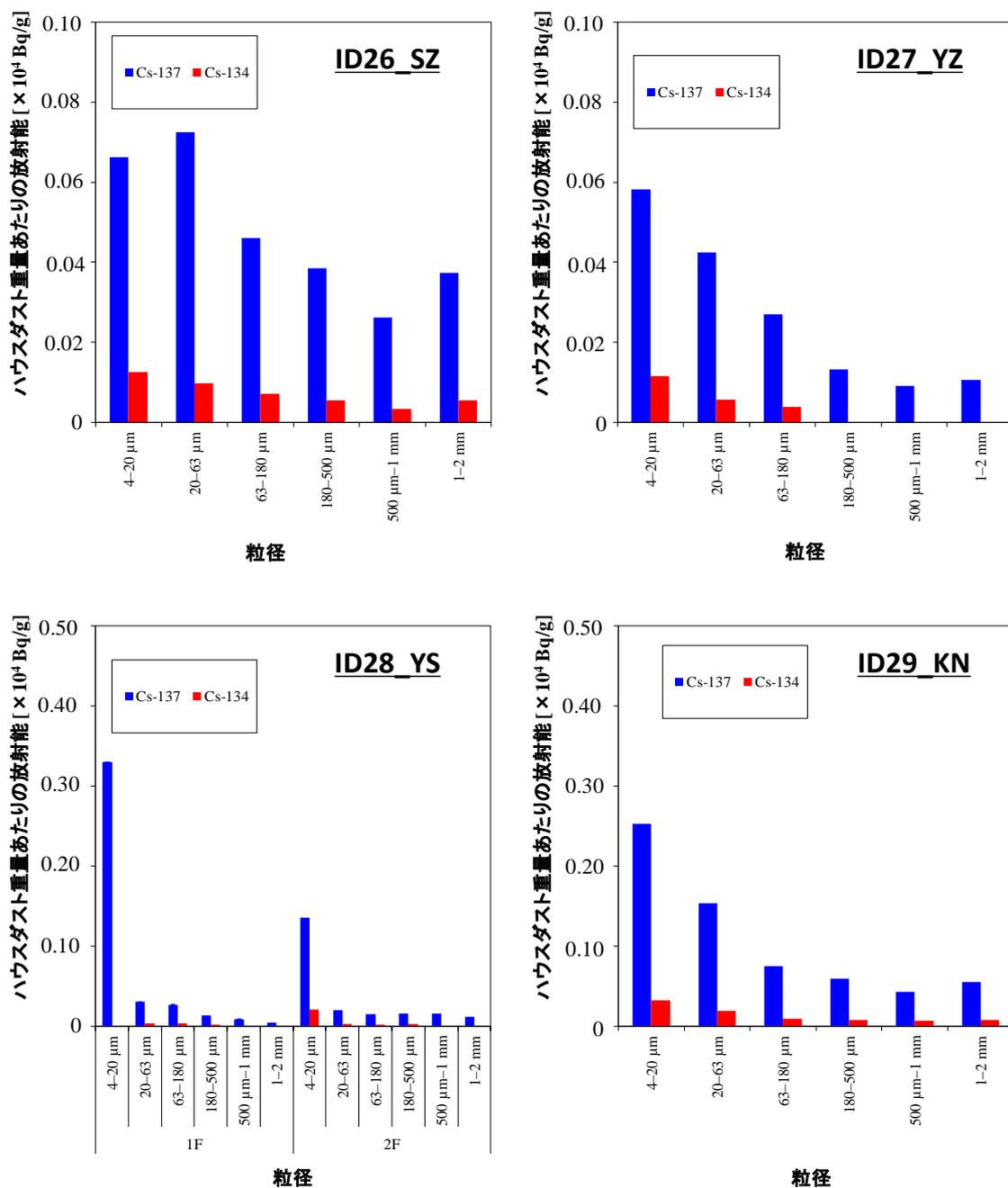


図 III-4 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs) (分担)。粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

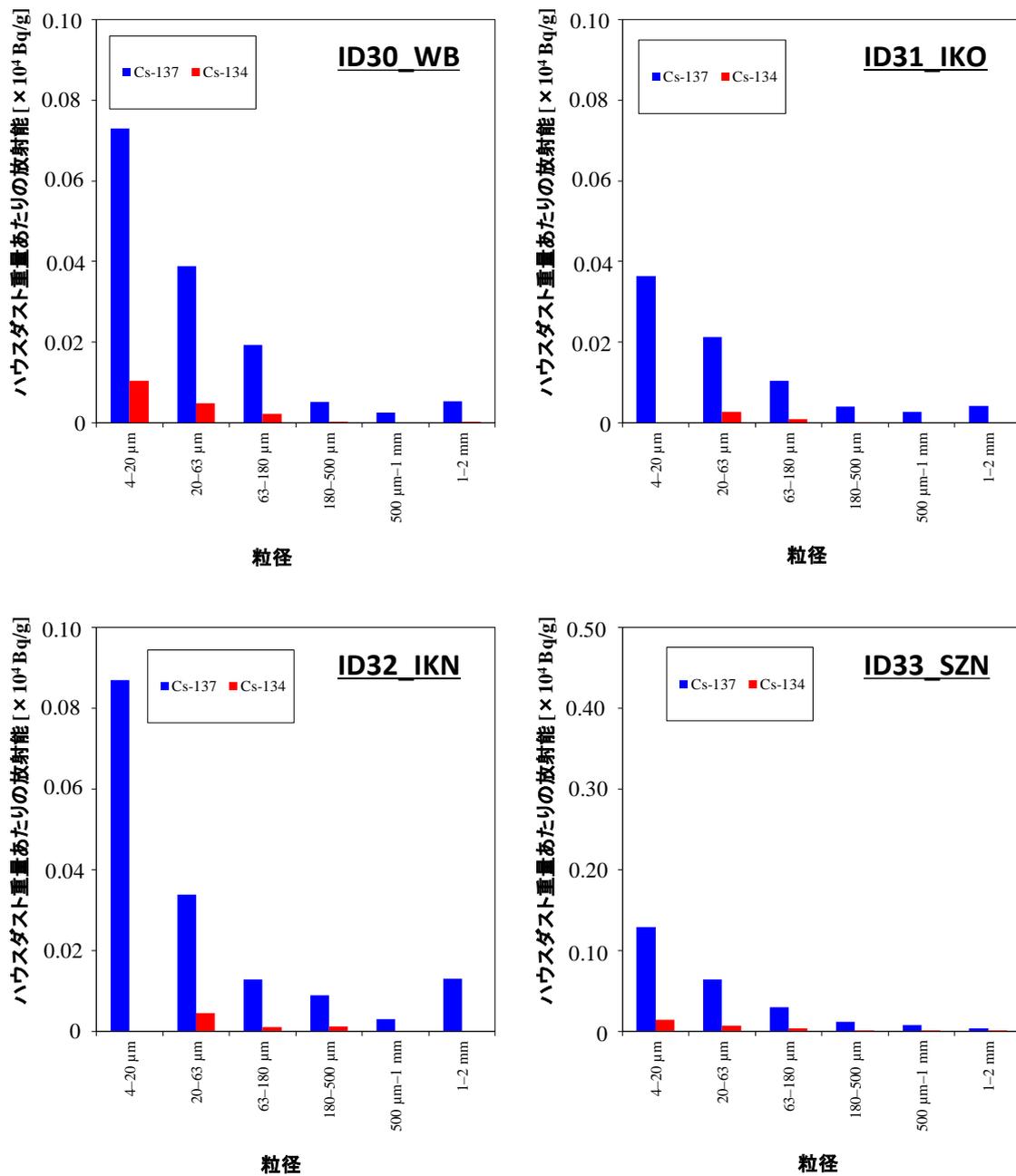


図 III-5 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs) (分担)。粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

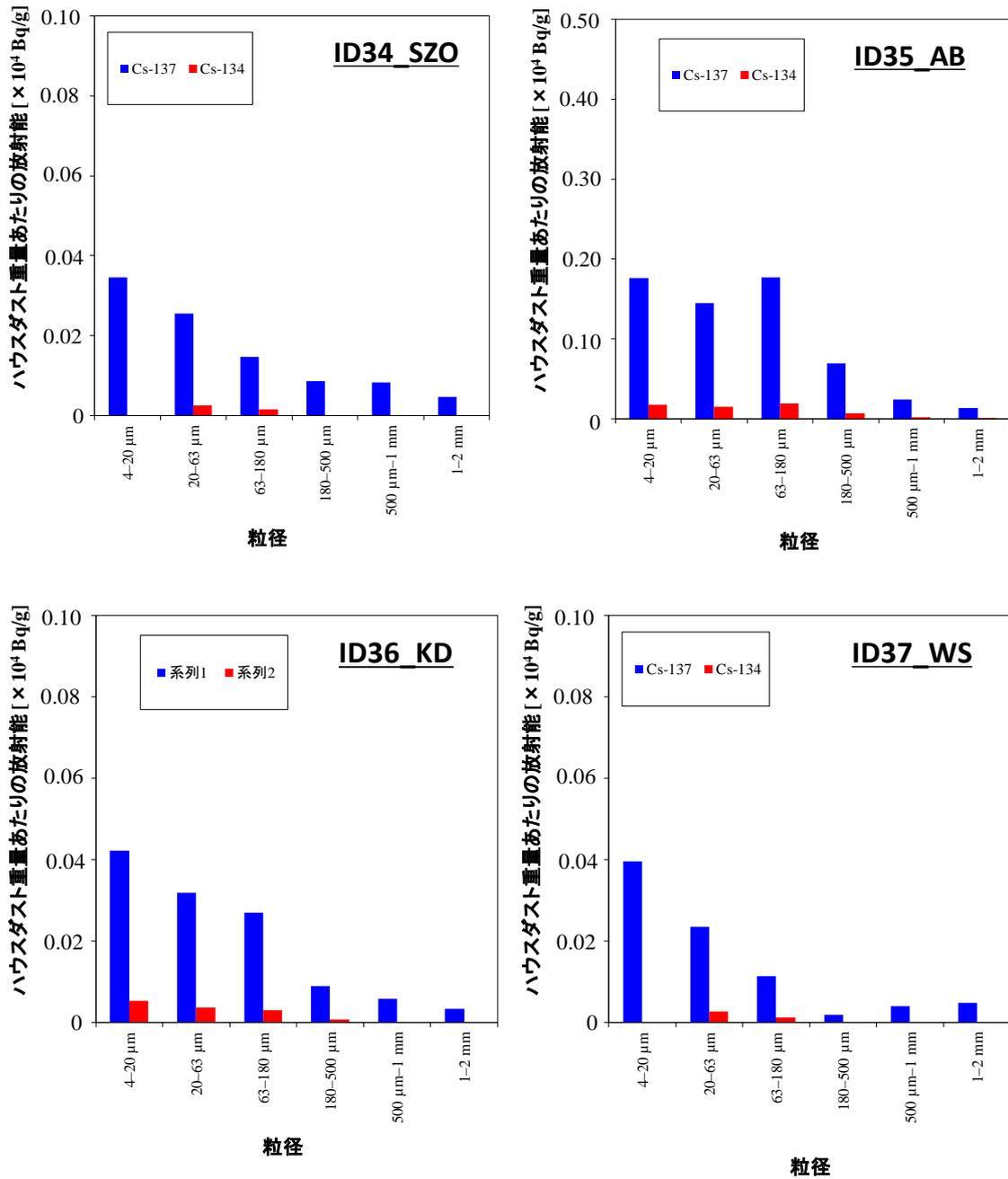


図 III-6 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs) (分担)。粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

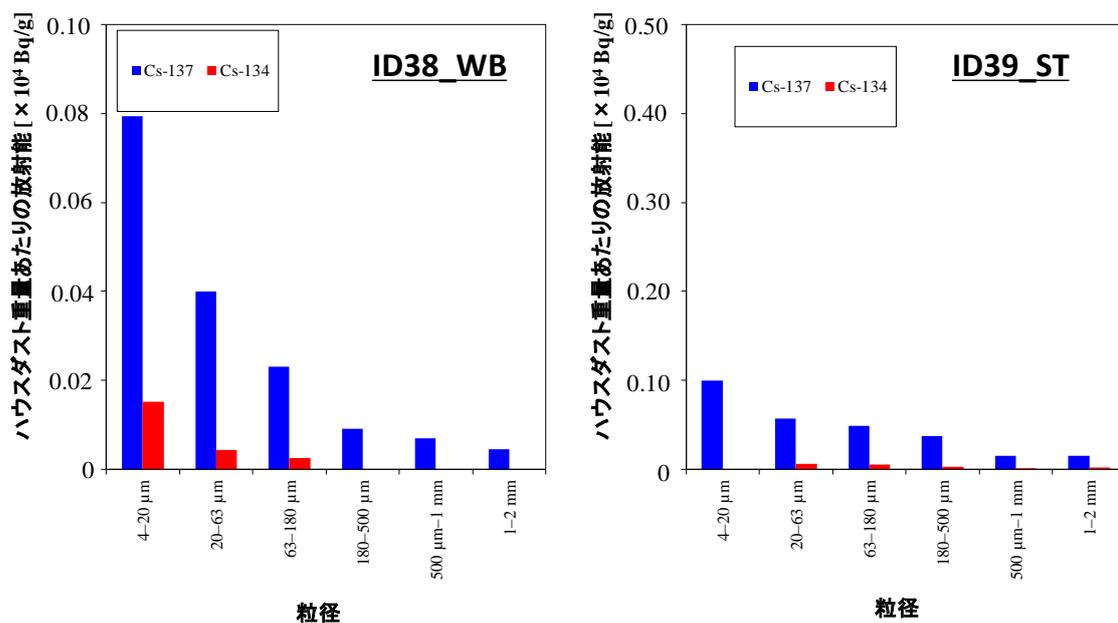


図 III-7 (続き) 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs) (分担)。粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

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(平均±標準偏差) (分担)。

粒径	ハウスダスト重量当たりの Cs ¹³⁷ (平均±SD) [Bq/g]
<20 μm	$4.7 \times 10^3 \pm 9.6 \times 10^3$
20-63 μm	$1.3 \times 10^3 \pm 1.8 \times 10^3$
63-180 μm	$7.8 \times 10^2 \pm 1.1 \times 10^3$
180-500 μm	$3.2 \times 10^2 \pm 3.5 \times 10^2$
500 μm-1 mm	$1.9 \times 10^2 \pm 2.2 \times 10^2$
1-2 mm	$1.8 \times 10^2 \pm 2.1 \times 10^2$

② ハウスダスト中の放射能の水溶性・塩酸溶解性

これまでに分析の終わっている 11 軒の住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性、塩酸溶解性、残渣の比率は、20% ± 14%、32% ± 11%、47% ± 18% 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が、粒径ごとに大きな違いはなかった (図 III-2、表 III-2)。

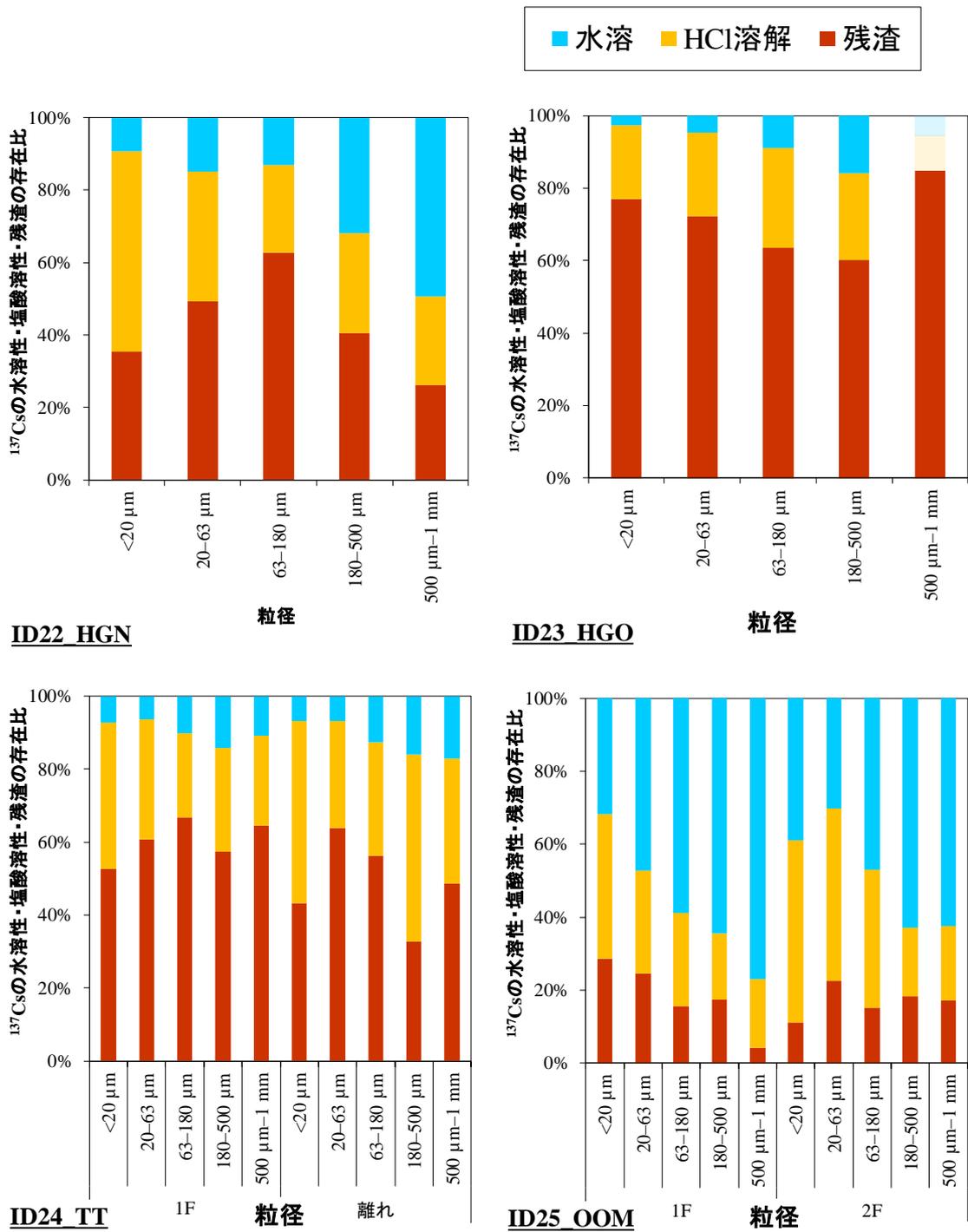


図 III-2 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合（分担）。それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。

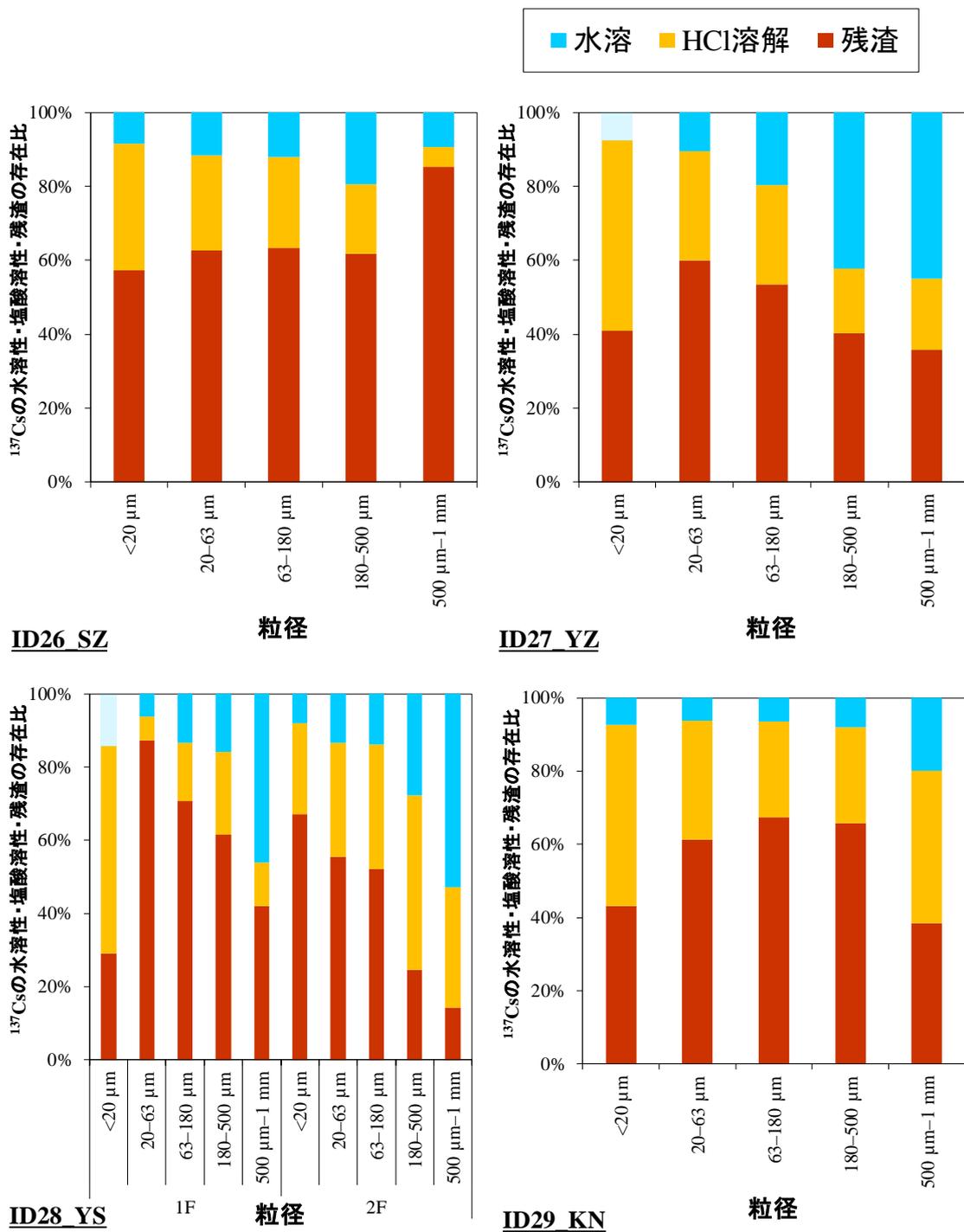


図 III-2 (続き) 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 (分担)。それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。

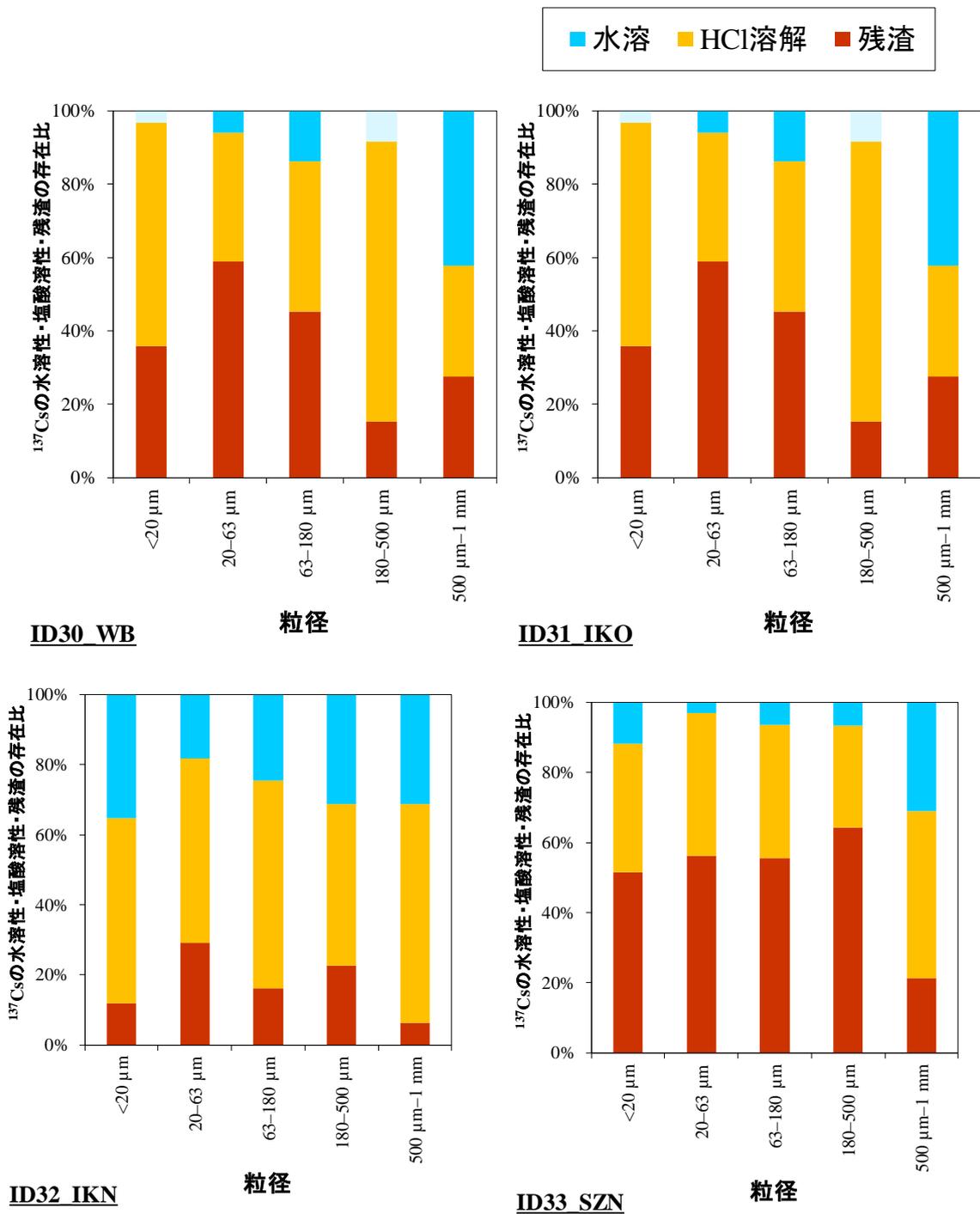


図 III-2 (続き) 各住宅のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合 (分担)。それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。

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（平均±標準偏差）（分担）。

		平均±SD
残渣	<20 μm	39%±20%
	20-63 μm	53%±19%
	63-180 μm	49%±20%
	180-500 μm	40%±19%
	500 μm-1 mm	37%±26%
HCl 溶解	<20 μm	47%±13%
	20-63 μm	32%±11%
	63-180 μm	32%±11%
	180-500 μm	33%±17%
	500 μm-1 mm	28%±16%
水溶	<20 μm	15%±12%
	20-63 μm	15%±12%
	63-180 μm	19%±15%
	180-500 μm	27%±18%
	500 μm-1 mm	35%±22%

2. エアロゾル

① ハウスグリースの有無の検討

結果を表 III-3 に示す。グリース無しのフィルターでは多く検出された<0.25 μm の粒子の放射能が、グリースを付けたフィルターではほとんど検出されなかった。一方、0.25-0.50, 0.50-1.0, 1.0-2.5, 2.5-6.6, >6.6 μm の粒子では、グリース無しのフィルターよりグリース有のフィルターの値が高くなった。PM2.5 の放射能を比較すると、グリースの有無で大きな違いは見られなかった。

表 III-3 併行でグリース有無のフィルターを用いて捕集したエアロゾル中の放射能の比（分担）。

	<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	全粒子	PM2.5
平均	0.16	1.9	2.0	1.9	1.9	5.7	2.0	1.1
SD	0.086	2.2	1.9	1.9	0.80	4.1	0.70	0.46
中央値	0.12	1.2	1.4	1.5	1.7	4.6	1.8	0.91

② エアロゾル中の放射能

24軒の住宅ではたき掛け中に捕集したグリース有の測定結果を表 III-4 に、粒径分布を図 III-3 に示す。PM2.5 の放射能は 1.8 Bq/m^3 であり、粒径が小さいほど室内空気 1 m^3 当たりの放射能は低かった。また、3軒の住宅において、屋外の空気中の放射能濃度を計測した結果、すべての住宅において、すべての粒径のエアロゾルで検出限界以下であり（測定時期：冬と春、風速： $0\sim 1.0 \text{ m/s}$ 、風向：南西～北北西）、気象条件によらず大気中の放射性エアロゾル濃度は低かった。

表 III-4 本年度調査 24 軒で捕集した粒径別気中放射能（分担）。

	<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	全粒子	PM2.5
平均 [Bq/m^3]	0.10	0.28	0.45	1.01	2.39	2.96	7.20	1.84
SD [Bq/m^3]	0.05	0.56	0.90	2.09	3.18	2.36	8.48	3.35
中央値 [Bq/m^3]	0.10	0.11	0.21	0.51	1.61	2.81	5.55	0.97

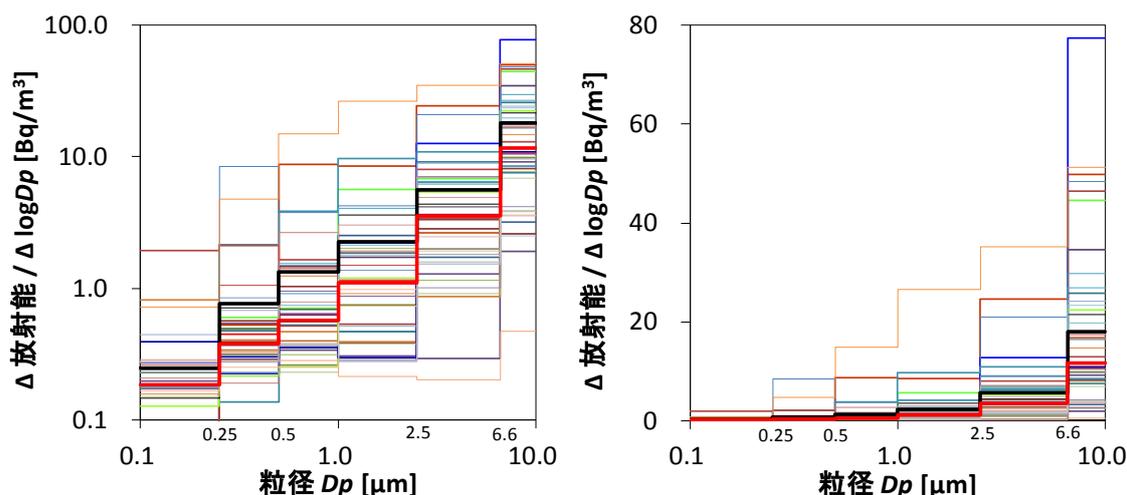


図 III-3 気中放射能の粒径分布（左図は右図の縦軸を対数表記にしたもの）

③ 異なる掃除を行った際の室内空气中放射能

複数の掃除を分けて実施した 14 軒において、はたき掛け中の PM2.5 粒子の室内空气中放射能は 4.6 Bq/m^3 であったのに対し、サイクロン掃除機及び普通掃除機を用いて掃除を行った場合の室内空气中の放射能は検出下限以下であった（図 III-4）。1 軒のみ、普通掃除機による掃除中の $2.5\sim 6.6 \mu\text{m}$ の粒子で 0.36 Bq/m^3 の放射能が検出された。

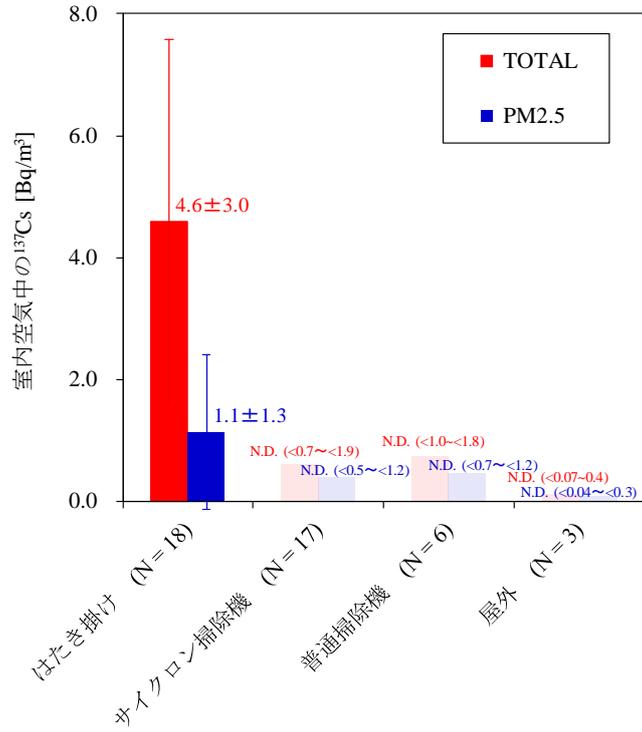


図 III-4 掃除の方法ごとの室内空気中の放射能（分担）

3. 換気

本年度調査 28 軒で測定した住宅の換気回数を表 III-5 に示す。換気回数の平均は 0.32 /h であった。

表 III-5 本年度調査 28 軒で測定した住宅の換気回数（分担）。

ID	場所	換気回数 [h]		ID	場所	換気回数 [h]	
		平均	SD			平均	SD
ID_22	1F	0.34	0.00052	ID_38	奥の和室	0.24	0.007
ID_23	1F	0.40	0.0043		左側和室	0.086	0.00002
ID_24	1F	0.65	0.0048	ID_39	1F	0.10	0.008
ID_25	1F	0.11	0.00036		2F	0.025	0.006
ID_26	1F	0.87	0.067	ID_40A	DK	0.19	-
ID_27	1F	0.29	0.0093		和室	0.18	-
ID_28	1F	0.021	0.0031	ID_40B	DK	1.0	-
	2F	0.11	0.025		和室	0.78	-
ID_29	1F	0.42	0.0028	ID_41A	DK	0.27	-
	2F	0.69	0.0033		和室	0.26	-
ID_30	2F	0.28	0.006	ID_41B	DK	0.20	-
ID_31	1F	0.50	0.0005		和室	0.20	-
	ID_32	2F	0.41	0.0006	ID_42A	DK	0.12
1F		0.23	0.001	和室		0.12	0.001
ID_33	2F	0.31	0.0005	ID_42B	DK	0.32	-
	1F	0.68	0.03		和室	0.31	-
ID_34	奥の部屋	0.64	0.0043	ID_43A	DK	0.29	-
	手前の部屋	0.70	0.0053		和室	0.27	-
ID_35	1F	0.20	0.0039	ID_43B	DK	0.29	-
	2F	0.30	0.016		和室	0.27	-
ID_36	奥の和室	0.23	0.0002	ID_44A	DK	0.22	-
	左側和室	0.11	0.0029		和室	0.24	-
ID_37	奥の和室	0.27	0.007	ID_44B	DK	0.28	-
	左側和室	0.080	0.006		和室	0.32	-

IV. 考察

18 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) 中の放射性 Cs は、 4.7×10^3 , 1.3×10^3 , 7.8×10^2 , 3.2×10^2 , 1.9×10^2 , 1.8×10^2 Bq/g であり、去年測定した 21 軒の放射性 Cs (6.1×10^3 , 2.6×10^3 , 1.6×10^3 , 7.5×10^2 , 5.0×10^2 ,

4.6×10^2 Bq/g) と比べて少し低めであった。これは、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。ただし、昨年度の結果と同様に、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)}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。

11 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、20%、32%、47%であり、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。

エアロゾルの捕集において、フィルター上での粒子の跳ね返りを防止するためにグリースを塗布した場合としない場合で異なる粒径分布になることが示唆された。グリースを塗らない場合には、 $0.25 \mu\text{m}$ 以上の粒子が $<0.25 \mu\text{m}$ のフィルター上へ移行していることが確認された。また、 $>6.6 \mu\text{m}$ の粒子でもグリースを塗布した場合に塗布しない場合より高くなっており、グリースを塗らない場合には、インパクター外や内部壁面へ跳ね返っている可能性がある。ただし、PM_{2.5}に相当する粒子の総放射能は、グリースを塗布した場合と塗布しない場合で大きな違いは見られなかった。粒径分布については、昨年度に実施したグリースを塗布していないフィルターを用いたサンプリング結果については、今年度得られたグリース有無の比を用いて補正を行った。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 $0.7 \mu\text{m}$ 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 $0.7 \mu\text{m}$ にあったが 24 時間後には $2.8 \mu\text{m}$ レンジ、5 日後には $5.6 \mu\text{m}$ 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、本研究では室内空气体積中の放射能は、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 $1 \mu\text{m}$ 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、 $0.5 \mu\text{m}$ の粒子と比べて $0.7 \mu\text{m}$ 、 $1.0 \mu\text{m}$ 、 $4.0 \mu\text{m}$ の粒子で 10 倍、100 倍、1000 倍になったという報告⁸⁾や、 $0.5 \mu\text{m}$ や $0.7 \mu\text{m}$ の粒子と比べて $2 \mu\text{m}$ の粒子で 10 倍になったという報告⁷⁾、 $1 \mu\text{m}$ の粒子と比べて $3 \mu\text{m}$ の粒子で 100 倍になったという報告⁹⁾、 $0.5 \mu\text{m}$ や $1 \mu\text{m}$ の粒子と比べて $2 \mu\text{m}$ 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。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、17 軒の住宅のすべての

粒径のエアロゾルに対して検出下限以下であった。普通掃除機を使用した 6 軒の住宅では、2.5–6.6 μm のエアロゾルで 1 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。一方、はたき掛けを行った 18 軒の住宅の室内空気中のエアロゾルからは、すべて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、12 軒の住宅で放射能が検出された。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、0.32 /h だった。昨年度の調査住宅では、0.69 /h であり、地震や動物により損傷を受けていない住宅が多かったためかもしれない。

V. 結論

本年度は、昨年度より福島第一原子力発電所から離れた住宅でのサンプリングを多く行い、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。エアロゾル測定時に、フィルターにグリースを塗布しない場合には、塗布した場合に見られない $<0.25 \mu\text{m}$ の粒子での放射能が検出され、グリースを使用しない場合には跳ね返り等により大きい粒子が小さい側のフィルター並行していたことが示唆された。住宅内ではたき掛けをしている際の室内空気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。

VI. 次年度以降の計画

来年度は、昨年度と今年度に調査を行わなかった方角の住宅 10 軒での調査を行う予定であり、今年度に引き続きハウスダスト及びエアロゾルの試料採取や換気率の測定等を継続して行う。原発事故から約 6 年が経過しイノシシなど野生動物が住家内に入り込み外の土を持ち込んでいる例が多くなってきている。できるだけ条件の良い（荒らされていない）住家を選んで効率的な試料採取を行う。また、掃除後のエアロゾル濃度の減衰や掃除によるハウスダストの減衰等についても把握し、住民の帰還に際して住宅内の掃除法に関してより実用的かつ有用な助言ができるデータを収集する。

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-Ohuuchi. “Radiocesium contamination in house dust within evacuation areas close to the Fukushima Daiichi nuclear power plant” *Environment International* 2018; 114: 107–114.

B. 論文：査読なし

C. 国内学会発表

- 1) ○篠原直秀, 吉田浩子, 反町篤行.”福島第一原発近傍の住宅室内における清掃時のエアロゾル中の放射性セシウム汚染”. 大気環境学会, 2017/9/7-8 (神戸)

D. 国際学会発表

- 1) ○N. Shinohara, H. Yoshida. “Radiocaesium contamination in house dust and indoor aerosol in residential houses within the evacuation areas in Fukushima prefecture”. *Healthy Buildings Asia 2017*, 2017/9/2-5 (台南, 台湾)

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

Abstract

House dust and aerosol was sampled based on particle size in 23 buildings mainly within the evacuation area close to the FDNPP, in Futaba and Ohkuma, Fukushima Prefecture, Japan. Activities of radiocaesium (^{137}Cs) per gram of house dust were lower than those sampled last year. ^{137}Cs per gram of house dust increased with decreasing particle size as well as the last year survey. ^{137}Cs extracted in water and 1M HCl were 20% and 32%, which were similar value in the last year survey. Radiocaesium activity in aerosol trapped on the filter with grease were much higher than those without grease for $<0.25\ \mu\text{m}$ of particles, while those with grease were lower than those without grease for $0.25\text{--}0.50$, $0.50\text{--}1.0$, $1.0\text{--}2.5$, $2.5\text{--}6.6$, and $>6.6\ \mu\text{m}$ of particles. For $\text{PM}_{2.5}$ particles, however, there were no difference between the total radiocaesium of aerosol trapped on the filter with grease and without grease. The normalized radiocaesium activity in the aerosol (Δ radioactivity/ Δ log (particle size)) were increase with particle size. Radiocaesium in the aerosol during dusting were detected in every building, while those during vacuuming with cyclone handy cleaner and normal cleaner were detected only in 1 room.

Keywords

Indoor, Radiocaesium, house dust, aerosol, cleaning

1-5 乳歯を用いた福島県在住小児の被曝線量評価

東北大学大学院歯学研究科長

佐々木 啓一

研究要旨

[福島県在住小児より得たコントロール乳歯についてのイメージングプレート (IP) による線量評価]

原発事故以前に形成されたコントロール乳歯、3,519 本について、それらの放射線量を IP によりスクリーニングした。その結果について、年齢、性差、居住地、居住地の空間線量率、事故発生からの経過時間、事故後の居住地移動の有無、歯種の違い等の変動要因を考慮したマルチレベル回帰分析を行った。その結果、乳歯中放射線量は、福島県と他県の間、また、福島県内の地方間に差は認められなかった。これらの結果は、今後得られる原発事故以降に形成された乳歯の線量評価を行う上で重要な基礎になると考えられる。

[E S R法の検証]

サル歯のエナメル質を用いて、低線量領域 (100mGy 以下) での検量線を描記した。その結果、精度と再現性に優れ、直線性が良好な検量線が得られた。また、新規エナメル質分離法を開発し、従来の削り出し方よりも良質のエナメル質サンプルの調整が可能となった。その結果、ヒト乳歯についても、低線量領域での検量線が作成できる可能性が示された。

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、Sr-90、炭酸ラジカル、電子スピン共鳴法 (E S R法)

[研究協力者]

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

[研究参加者]

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

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、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。

II. 研究方法

[倫理面への配慮]

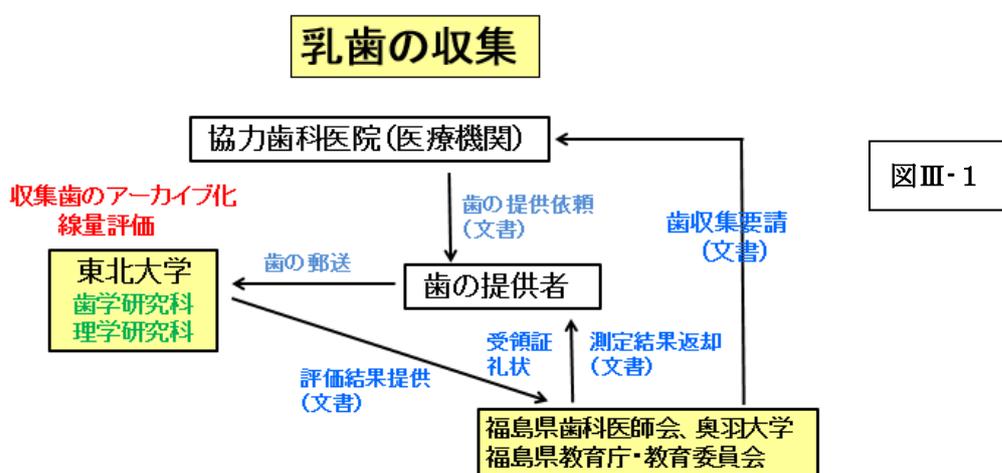
ヒト乳歯の収集に際しては、乳歯提供者の氏名、生年月日、住所等の基本的な個人情報が必要となる。また調査目的、社会的意義、調査結果の還元、開示方法等、保護者からの書面によるインフォームド・コンセントが必要となるので、これらについての同意が得られた検体のみを測定対象とした。本調査研究で遂行する乳歯の収集方法から結果の開示に至るまでの一連の過程については、東北大学大学院歯学研究科研究倫理専門委員会による承認を得た（平成 25 年 1 月 31 日および平成 28 年 12 月 16 日）。また、研究グループにおける乳歯収集・被ばく線量測定に関する倫理面での共通認識ならびに住民への配慮をより徹底させるために、福島県歯科医師会、奥羽大学においても当該倫理委員会での審議・承認を求め、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、奥羽大学倫理審査委員会 平成 26 年 3 月 18 日 承認）。

乳歯収集の過程や研究結果から得られる個人情報は連結匿名化し、連結表は主任研究者及び疫学解析責任者（東北大学歯学研究科 小坂 健教授）のみが鍵を持つ戸棚で厳重に保

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最大限の注意を払い、このため関係者の情報管理を徹底すると共に、東北大学、福島県歯科医師会、および奥羽大学が必要に応じて協議を行った。

[ヒト乳歯の収集とアーカイブ化]

平成 26 年度において本格稼働させた歯の収集体制を引き続き維持し、福島県を中心に全国各地（北海道、新潟県、静岡県、熊本県が中心）より乳歯を収集し、そのアーカイブ化・バンク化を進めた。収集体制は、昨年度と同様、福島県歯科医師会と奥羽大学を中心に福島県教育庁・教育委員会の協力を得て、前年度と同様、図Ⅲ-1 のような体制で実施した。



平成26年1月20日より歯の収集を開始

[ヒト乳歯中に含まれる放射性物質の評価]

(1) イメージングプレート (IP) による歯質中放射性物質含有量のスクリーニングとグレード化

厚さ 5cm の鉛ブロックで作成した鉛箱の内部を、さらに厚さ 1cm の鉄板で覆った遮蔽箱の中に、IP カセットに入れた IP を 1 か月にわたり静置し、環境放射線の影響を極力排除した低バックグラウンド環境下でオートラジオグラフを作成した。使用した IP は BAS-MS 2040 (GE Healthcare 社製)、読み取り装置はフロオル・イメージアナライザー FLA-7000 (富士フィルム社製)を使用した。IP の発光強度を IP 画像読み取りソフト Image Quant TL Ver.8.1 (GE Healthcare 社製) を用いて QL 値 (Quantum Level : IP 読み取り装置で読み取った発光量を 16 ビットの濃度階調 (65536 階調) に変換した値) として測定した。また、KCl 粉末を用い、 ^{40}K を $0\sim 400\text{mBq/cm}^2$ (厚さ 3mm) 含む KCl 基準尺を作成し、 ^{40}K 濃度と得られる QL 値に、直線的な比例関係があることを確認し、この KCl 基準尺を標準試料としてどの IP にも入れて、使用 IP や測定時期の違いによる測定値の変動を補正した。

今年度において、IP による歯質中放射性物質含有量のスクリーニングとグレード化の対象としたのは、平成 26 年の初めから平成 28 年末までの 3 年間に収集した乳歯で、齲蝕病巣や強度の歯石沈着があり、レジン等の充填物があるものは除外し、かつ唇面（IP への接着面）が健全であった、3,519 本の乳歯について詳しい分析を行った。

[ESR 法を用いた歯質中炭酸ラジカルの測定]（歯を用いた外部被ばく量の推定）

放射線被ばくにより歯質中に発生・蓄積する炭酸ラジカル量を ESR 法（電子スピン共鳴法）により測定し、被ばく量を推測する方法は古くから行われてきたが、欧州を中心に行われた ESR 法に関する国際比較研究で報告されているように、検出限界は 200mGy 程度と高く、今回の原発事故で問題となる低線量被ばくの推定には不向きとされてきた。今年度は、検出限界を 50mGy 以下にまで下げることがを目標とし、ニホンザルの歯を用いて X-band の ESR 装置（日本電子社製 ESR 装置 RE-2X）により方法論の改良に取り組んだ。重液分離法で抽出したエナメル質を 1 mm 以下の粒径になるように細かく砕き、複数歯から得たエナメル質を混合したのちに 7 本に分注した。それらのコントロール試料の ESR 測定を行ったのち、⁶⁰Co 線源からの γ 線を 20mGy 照射するたびに ESR 測定を行い、合計 80mGy までの炭酸ラジカル強度を求めた。このようにして得た歯質中に発生する炭酸ラジカルの強度と照射線量との関係式を求めた（検量線の描記）。

III. 研究結果

[ヒト乳歯の収集とアーカイブ化]

平成 30 年 3 月末の時点において、福島県を含め、全国から 5,940 本の乳歯を収集した。そのうち福島県内より収集した乳歯数は 4,947 本であった。図 III-2 にその結果を示す。

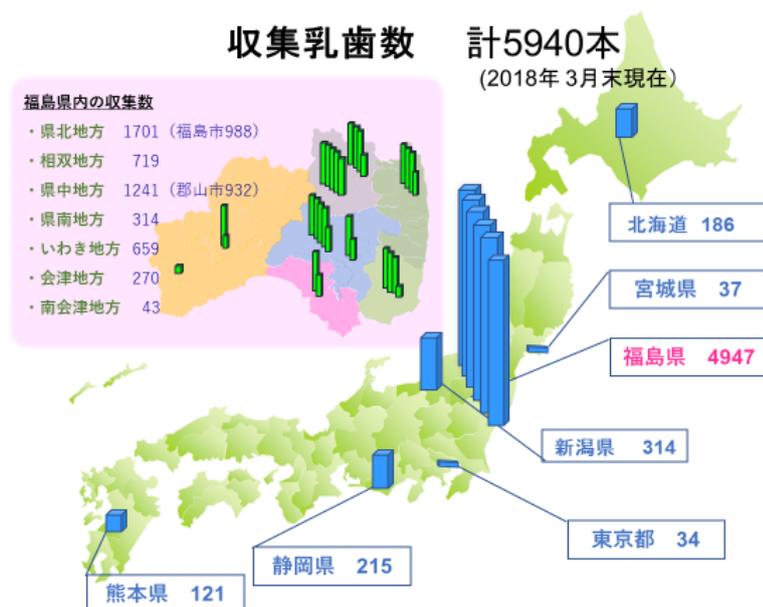


図 III-2

不明 4

収集した乳歯は下記に示す手順に従い、アーカイブ化し、鍵付き保管庫に保管した

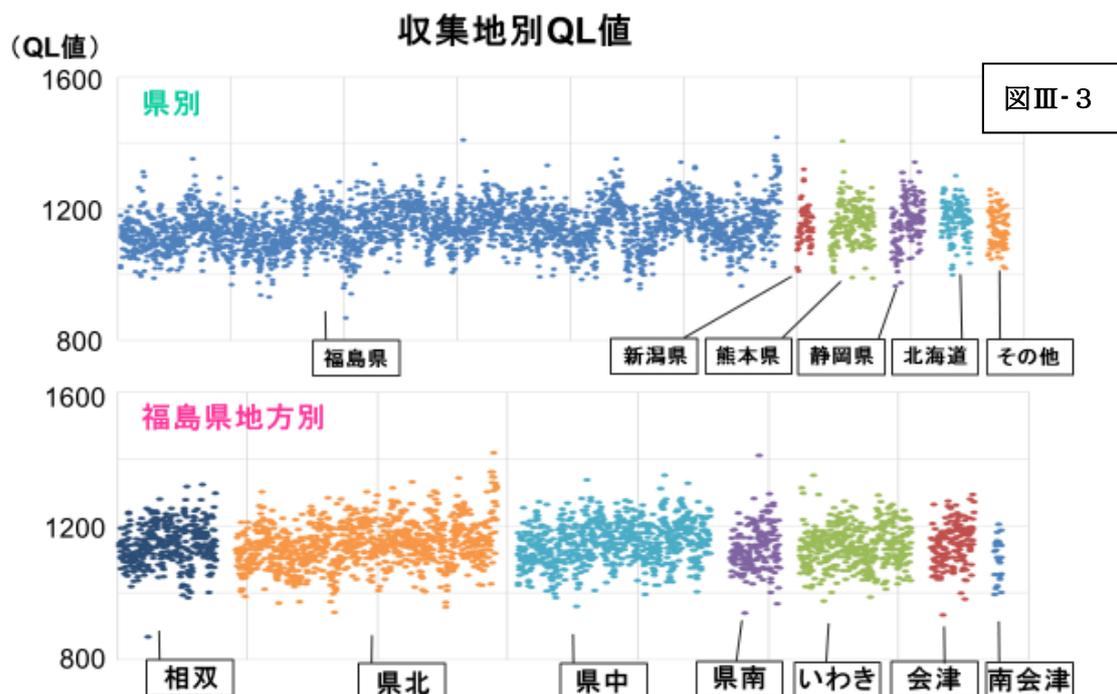
- (1) 基本情報の記録・保管（氏名、年齢、男女別、震災時住所、現住所・連絡先、関係歯科医院、震災後の住所移動の有無など）
- (2) 歯の鑑別（歯種の同定、部位の同定）
- (3) 歯の洗浄・ブラッシング、充填物・齲蝕の有無・程度、歯石沈着の有無・程度、歯根吸収程度の観察
- (4) 実体顕微鏡による写真撮影（歯の近遠心面、頬舌面、咬合面の撮影）と画像の保存
- (5) 鍵付き保管庫に保管

〔ヒト乳歯中に含まれる放射性物質の評価〕（歯を用いた内部被ばく量の推定）

- (1) イメージングプレート（IP）による歯質中放射性物質含有量のスクリーニングとグレード化

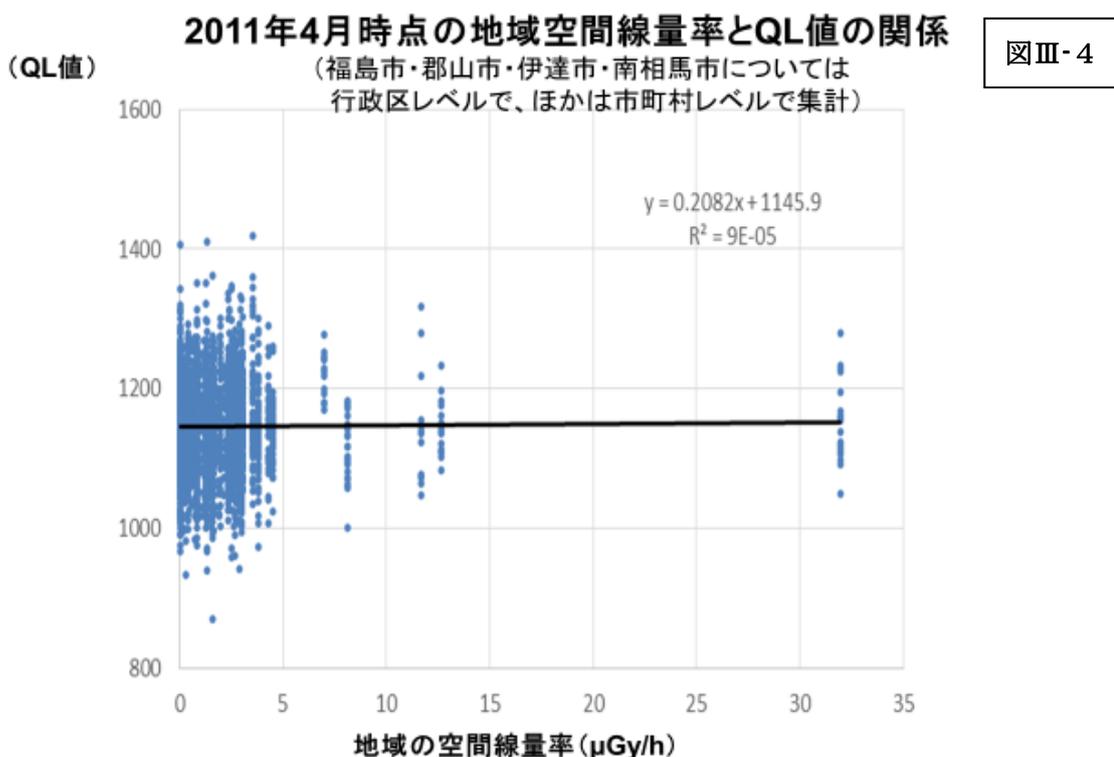
平成 26 年初頭から平成 28 年末までに収集した乳歯のうち、齲蝕病巣や強度の歯石沈着があり、レジン等の充填物があるものはすべて除外し、唇面（IP への接着面）が健全であった 3,519 本について分析を行った。

今年度は、福島県と他県から収集した乳歯試料に含まれる放射性物質の量に違いがあるか、また、福島県内において収集した乳歯について地域差があるか否かを中心に検討した。これまでに収集した乳歯は、いずれも原発事故以前に形成された歯で、コントロール歯に相当し、原発事故以後の環境下で形成された乳歯（永久歯との交換は 6 歳前後始まるので、次年度以降に本格的に入手可能となる）を評価するための基準値となる。

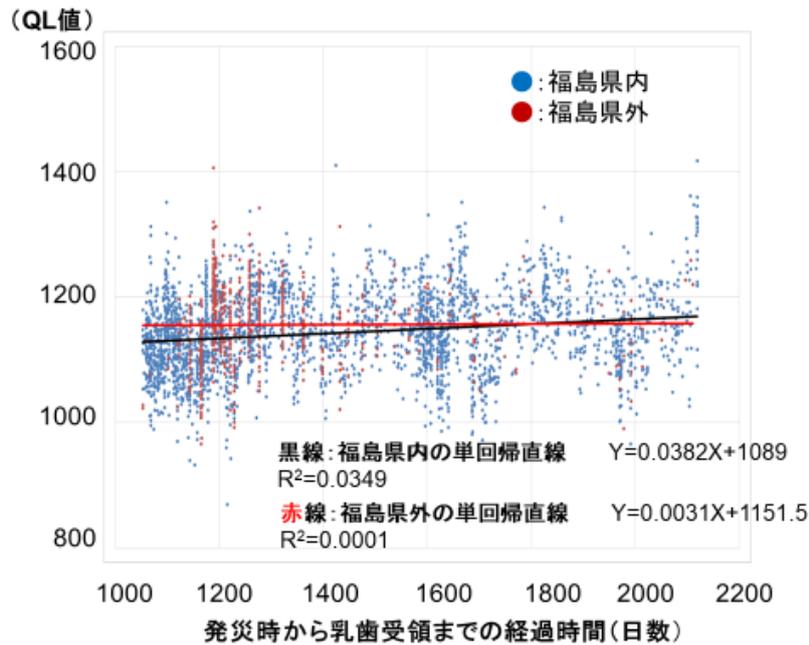


図Ⅲ-3には福島県内からの乳歯の QL 値と福島県以外の各県からの乳歯の QL 値をすべてプロットした生データが示してある。福島県と福島県以外の県（新潟県、静岡県、北海道、熊本県、その他）の乳歯 QL 値には統計学的に有意の差は認められなかった。さらに、福島県内の乳歯について、その地域差について検討したのが図Ⅲ-3の下図である。県内の7つの地域における QL 値にも地域差は認められなかった。なお、図Ⅲ-3で示した地域は、県内、県外を問わずいずれも原発事故発生時の居住地を示している。

図Ⅲ-4には、乳歯の QL 値と歯提供者の居住地の空間線量率との関係を示してある。空間線量率は、福島県全県下で実施された小学校における測定値（福島県環境放射線モニタリング調査、2011（平成23）年4月時点）を基準とし、その値を各自自治体の行政区ごとにとまとめた。小学校の多くはその地域において人が最も多く住む地域の中心に位置しており、また、歯提供者の多くは小学生であること、さらに、小学校およびその周辺地域は



子供の生活空間としてもっとも重要であることを考慮した。原発事故以前に形成された歯についてこの検証を行ったのは、原発事故後に形成された歯について検証を行う際にこの解析手法を採用することを想定したものであり、原発事故前に形成された歯について解析した現時点においては、図Ⅲ-4に示されるように、地域の空間線量率と歯の QL 値の間には、相関は認められなかった。



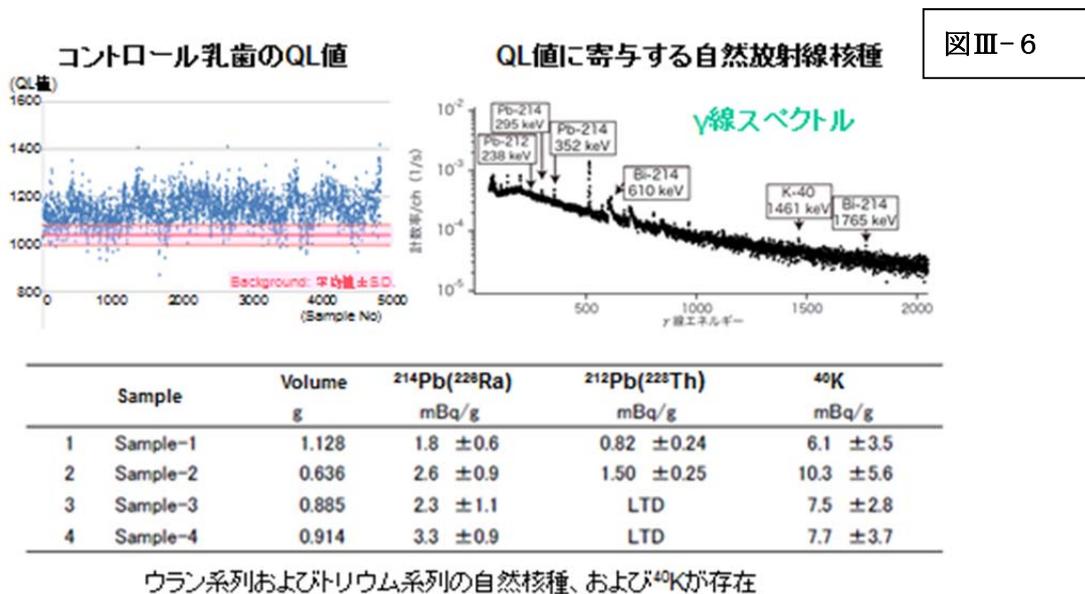
図III-5

図III-5は、震災時から乳歯を受領するまでの日数と、乳歯のQL値の関係を示した図である。福島県内から採取した歯は、県外からの歯に比べて、やや右肩上がりの傾向が認められる。しかし、その差はわずかであり、詳細は不明である。

(2) 乳歯中の自然放射性核種

ゲルマニウム半導体検出器により、乳歯中の γ 線放出核種についての測定を行った。原発事故関連の核種として、現在も環境中に存在する可能性のある核種として ^{137}Cs や ^{134}Cs の存在が考えられるが、これらの核種はコントロール歯のいずれからも検出されなかった。極低バックグラウンド仕様（古い鉛で遮蔽、測定器周辺の空気は窒素ガスで置換し、測定器内へのラドンガスの侵入を抑制）の井戸型のゲルマニウム半導体検出器を用いて、4つのコントロール乳歯サンプル（各サンプルとも、10-15本の乳歯を含む）について、1サンプル100万秒の測定時間を設定し、 γ 線放出核種の測定を行った。その結果、どの乳歯サンプルからも ^{214}Pb (^{226}Ra)を検出し、また、どの歯からも ^{40}K が検出された。従って、通常の歯の中にはウラン壊変系列の自然核種が存在し、また乳歯中には微量の ^{40}K も存在することが確認された。また、図III-6の表に示すように、4本中2本の歯からは、微量の ^{212}Pb (^{228}Th)が認められ、ウラン壊変系列に加え、トリウム壊変系列の自然核種も存在することが確認された。また、図III-6の右上の図には、1本のコントロール乳歯の測定から得られた γ スペクトルの1例を示してある。今後収集が可能となる3.11以後に形成された歯に高いQL値を示すような歯が出てきた場合には、このような γ スペクトルが対照として重要となる。

図III-6の左上図には今回測定した3,519本の乳歯のQL値がプロットしてある(青点)。



これらの歯のQL値は、赤色で示したバックグラウンドのQL値に比べ、明らかに高い値を示している。バックグラウンドとコントロール乳歯のこのQL値の差は、ウランやトリウム壊変系列の娘核種、さらに⁴⁰Kなどの自然核種が歯質中に存在しているためと考えられる。

図III-7

エナメル質サンプル調整法

○ ESR計測に必要なエナメル質を効率よく分離する。化学定量の可能性に備え、象牙質を失わない効率的なサンプル方法を調整開発した。

【従来の方法】

【新たに検討した方法】

[ESR法を用いた歯質中炭酸ラジカル測定法の検証]

(1) ESR測定用エナメル質サンプルの調製法

従来の、ESR法のためのエナメル質サンプルの調製法は、エナメル質を機械的に削り取るという非効率的な方法であった。従来法においては、大量のサンプルを効率よく調製することはできず、

また、化学定量に必要な象牙質部分も失うことも不可避であった。今回我々は、エナメル質と象牙質の比重が異なることを利用し、メタタングステン酸ナトリウム溶液を用い、エナメル質を象牙質と重液分離する方法を開発した。この方法の開発により象牙質を失うことなく、良質な、有機質量の少ない大量のエナメル質サンプルを効率よく調製することが可能となった。

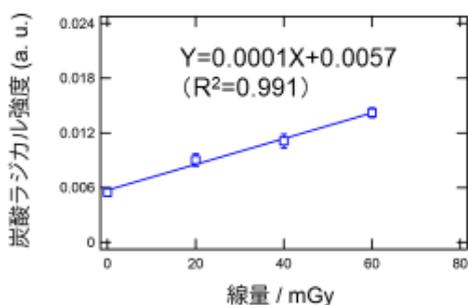
(2) サルの歯を用いた低線量領域における検量線（γ線照射量と歯質中ラジカルの発生との関係）の描記

これまでの研究では、検出限界は 200mGy 程度であり、急性大量被ばく時のような高線量被ばくの検出には有効であるものの、今回の原発事故で問題となるような低線量被ばくの測定には不向きとされてきた。我々は、今年度の研究において、ニホンザルの歯を用い

サル歯エナメル質を用いた低線量領域での検量線

図Ⅲ-8

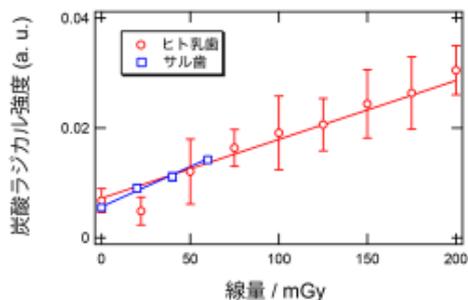
サル歯の検量線を作成した。



ガンマ線20 mGy照射してからESR測定を行う行程を繰り返した。

低線量領域において、精度のよい検量線が作成できた。

未照射のサンプルと20 mGyのサンプルには有意の差があることがわかった。



ヒト乳歯の検量線(赤)とのサル歯の検量線(青)の比較した。

ESRの精密測定(分離方法および測定条件の見直し)によって、ばらつきが改善された。

ヒト乳歯でも同様の精度で検量線が得られると期待される。

て、100mGy 以下の低線量域において、検量線の描記を試みた。図Ⅲ-8の上図は 20mGy 刻みで、エナメル質サンプルに Co によるγ線照射を行い、60mGy までの照射によって発生したラジカル量を測定した結果である。60mGy 以下の低線量領域においても、直線性が良好な精度の良い検量線が描記されている。下図の赤線で描記した検量線は、我々が、ヒト乳歯について、平成 26 年度の文部科学省国家課題対応型研究開発事業（原子力基礎基盤戦略研究イニシアティブ）において描記した検量線である（従来の削り取り法で調製したエナメル質サンプルを使用）。この検量線に比べ、今回サルで得た検量線（重液分離法によ

りエナメル質サンプルを調製)は、低線量領域での直線性、精度ともにもすぐれていることが確認された。

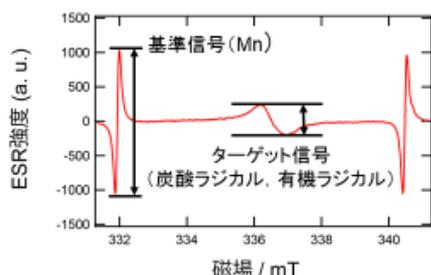
(3) 測定値再現性の検証

図III-9の右図には、同一個体のサルの複数歯から得たエナメル質を混合してから7本に分注して作成した試料を、各サンプルについて7回の測定を行った結果である(1回の測定は、30秒のESR測定を360回繰り返した平均値)。ターゲットラジカルと基準ラジカルの強度比から、ESR測定の再現性が高いこと、エナメル質を混合した際の不均一性に由来するサンプル間のバラツキも小さいことが確認された。また、照射試料についても同様な評価を行ったところ、同程度のバラツキであることが確認された。

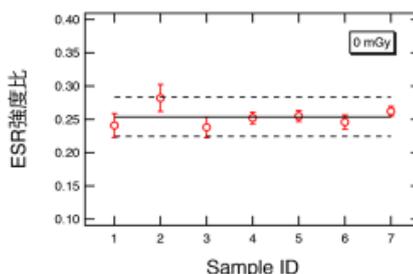
サル歯エナメル質を用いた ESR 測定精度の検証

図III-9

重液分離法で抽出したサル歯エナメルを用いてESR測定自体の再現性を評価した。



0 mGy(未照射)のサルのエナメル質のESRスペクトル。ターゲットラジカルと基準ラジカルの強度(高さ)の比を求めた。



ターゲットラジカルと基準ラジカルの強度比。(各サンプル7回ずつ測定)

ターゲットラジカルと基準ラジカルの強度比から、ESR測定自体の再現性が高いこと、サンプル間のばらつきも小さいことがわかった。

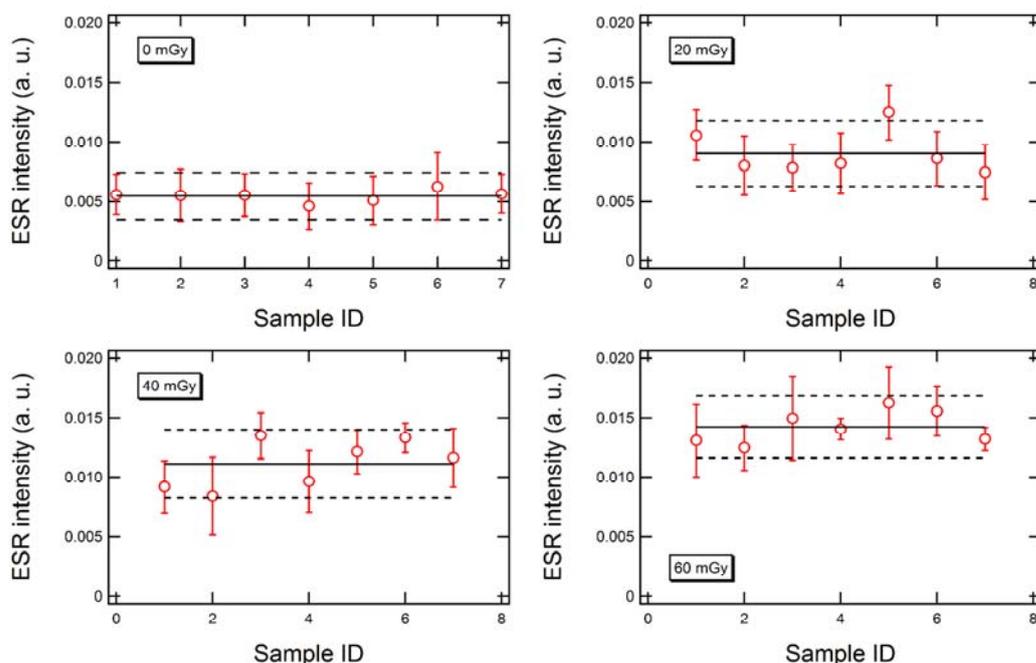
図III-10には、このようにして得られた ESR スペクトルを EPR Dosimetry で5成分の関数を仮定したフィッティングを行い、抽出した炭酸ラジカル強度の測定の再現性を示した。図III-9同様、7本に分注した試料を、各サンプルについて7回の測定を行った結果である。黒の実線と黒の破線はそれぞれ49回の測定結果の平均値(図III-8の検量線に示された値)と平均値±標準偏差を示す。特定の試料の炭酸ラジカル強度が高いということではなく、20、40、60 mGyの全体のばらつきの程度はほぼ同等であることがわかる。

以上の様に、ESR法について、ニホンザルの歯を用い、エナメル質サンプルの調製法、低線量領域での検量線の描記、測定値の再現性について検討を加え、いずれについても良

好な結果を得た。ニホンザルの歯で得たこれらの結果は、ヒト乳歯を用いた検量線の描記にも応用可能と考えられた。

図Ⅲ-10

サル歯エナメル質を用いた炭酸ラジカル強度の精度検証



IV. 考察

歯の中の放射性物質の濃度は、特にカルシウムとその挙動が類似のストロンチウムやラジウムの同位元素など歯に沈着する核種による個人の内部被ばく状況を反映する一つの指標とも考えられる。IP による歯質中放射性物質量のスクリーニングは感度も優れており、大量のサンプルを効率よく測定できる利点がある。得られる情報は歯の形成時期における内部被ばく状況に限られるが、歯の形成期は子供の成長期にも当たり、この時期は放射線に最も感受性が高い時期にも相当している。その点からも歯から得られる情報は十分意味のあるものと考えられる。

我々の ESR 法による検出限界値は、試料調製法や測定条件の改善により、大幅な感度の上昇を得ることができたものの、さらに感度の上昇と試料の個体差や試料調製によるばらつきによる誤差を小さくして精度の向上をはかることが重要と考えており、現在、検量線の再構築や、エナメル質純度の向上などの面から、検出限界値の向上を計っている。歯質中のラジカル測定は、外部被ばくに関する意味のある情報提供手段となり得る可能性がある。

V. 結論

- (1) 福島県歯科医師会、奥羽大学の主導のもとに、福島県在住小児を中心に、全国の子供から 5,940 本の乳歯を収集し（平成 30 年 3 月末時点）、アーカイブ化した。
- (2) 上記乳歯のうち、平成 26 年初めから平成 28 年末に収集し、IP 面が健全な乳歯 3,519 本について、乳歯の放射線量をイメージングプレート（IP）法を用いスクリーニングした。これまでに収集した乳歯はいずれも福島第一原発事故以前に形成された歯であり、福島県と他県の間、また福島県内の地域別に見ても差はなかった。
- (3) ESR 法についてニホンザルの歯を用い、エナメル質サンプルの調製法、測定値の再現性、低線量領域での検量線の直線性や精度について検証を加えた。いずれの検証項目についても良好な結果が得られ、ヒト乳歯の検量線描記についても応用可能と考えられた。

VI. 次年度以降の計画

- (1) 福島県を中心とした全国からのヒト歯の収集とバンク化の継続的实施、特に 3.11 以降に形成された歯の収集
- (2) 収集した歯の IP を用いた歯質中放射性物質濃度のスクリーニング
 - ・ IP イメージングプレートによる歯質中放射性物質濃度のスクリーニングとグレード化
 - ・ 地域、年齢、歯種等を基準とした放射性 Sr, Cs 濃度の測定と評価（必要に応じて個人の歯質中濃度を測定）
- (3) ヒト乳歯を用いた 100mGy の低線量領域での ESR 検量線の描記

VII. この研究に関する現在までの研究状況、業績

論文

- (1) K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. ^{90}Sr specific activity of teeth of abandoned cattle after the Fukushima accident – teeth as an indicator of environmental pollution, *J. Environ. Radioact.*, 183, 1-6 (2018).
- (2) K. Koarai, Y. Kino, J. Nishiyama, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Estimation of environmental pollution after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident by measurement of radioactivities in teeth, *Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity*, 202-207 (2017).
- (3) J. Nishiyama, K. Koarai, Y. Kino, Y. Shimizu, A. Takahashi, T. Suzuki, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Correlation of Sr-90 activity concentration between the tooth and bone of cattle suffered from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, *Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity*, 196-201 (2017).

学会発表(国際学会)

- (1) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda Assessment of ^{90}Sr pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident by measurement of cattle teeth
4th International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA2017)
2017/5/29-6/2 BEST WESTERN Vilnius Hotel, Vilnius, Lithuania (4th International Conference on Environmental Radioactivity (Kazuma Koarai: The Best Student Oral Presentation Award, 2017/6/2)
- (2) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda Can radionuclides in the teeth be used for the assessment of environmental pollution? Tohoku University's Chemistry Summer School 2017 2017/8/21-8/22 Tohoku University
- (3) Junpei Nishiyama, Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Yoshinaka Shimizu, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda Estimation of time course change of Sr-90 distribution in

environment from cattle teeth and bones Tohoku university's Chemistry Summer School 2017 Poster Sendai, Japan, 2017/8/21-22.

学会発表（国内学会）（研究会）

- (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、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 「ウシの歯に記録された福島第一原発事故による Sr-90、Cs-137 汚染状況の推定」第 54 回アイソトープ・放射線研究発表会 2017/7/5-7/7 東京大学弥生講堂
- (2) 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、漆原佑介、鈴木正敏、篠田 壽、福本 学、「サル歯およびヒト乳歯の炭酸ラジカル測定による外部被ばく線量推定」、2017 年日本放射化学年会・第 61 回放射化学討論会、2017/9/6-8、筑波大学 口頭
- (3) 西山純平、小荒井一真、木野康志、金子 拓、清水良央、高橋 温、鈴木敏彦、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、「福島原発事故被災ウシの硬組織中測定による環境中 Sr-90 の動態履歴の推定」、2017 年日本放射化学年会・第 61 回放射化学討論会、2017/9/6-8、筑波大学
- (4) 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、福田智一、磯貝恵美子、岡 壽崇、関根 勉、福本 学、篠田 壽、「環境からウシの歯の形成時期における Sr-90、Cs-137 の移行機構」、2017 年日本放射化学年会・第 61 回放射化学討論会、2017/9/6-8、筑波大学（小荒井一真：日本放射化学会若手優秀発表賞、2017/9/8）
- (5) 岡 壽崇、高橋 温、「ヒト乳歯の ESR 測定による外部被ばく線量の評価」、日本放射線影響学会 第 60 回大会、2017/10/25-28、千葉

（ポスター）

- (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 「発煙硝酸法と Sr resin 法による環境試料からの Sr-90 の化学分離」日本原子力学会東北支部 第 41 回研究交流会 2017/12/8 東北大学
- (2) 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、篠田 壽 「歯の ESR 測定による被ばく線量推定の取り組み」、ESR 応用計測・ルミネッセンス年代測定・FT 研究会 2017 年度合同研究会、2018/2/10-12、東京

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

Keiichi Sasaki

Radiation dose assessment of deciduous teeth collected from Fukushima children using the imaging plate technique

Radiation doses of 3, 519 deciduous teeth collected from children in Fukushima and control areas were measured using imaging plates. The data were epidemiologically assessed using multivariate regression analysis in order to detect differences in age, sex, residential area, and space dose rate. We did not find significant differences in radiation dose levels between teeth collected from the Fukushima Prefecture and control prefectures (Niigata, Shizuoka, Kumamoto, and Hokkaido); similarly, we did not detect significant differences in radiation dose levels among the teeth collected from five major cities in the Fukushima Prefecture (Fukushima, Kohriyama, Iwaki, Soma, and Aizuwakamatsu). Because all of the teeth collected erupted prior to March 2011, these findings may serve as important control data for future studies on teeth formed after March 2011, which will be collected over the next several years.

Verification of the electron spin resonance (ESR) method for the measurement of carbonic radicals in teeth

ESR quantification of carbonic radicals in teeth has been used for teeth exposed to radiation doses above 100-200 mGy. However, the technique was not sensitive enough to detect exposure to radiation doses less than 100 mGy. We are currently optimizing the technique to accurately quantify small amounts of radicals generated by radiation doses less than 100 mGy (20, 40, 60, and 80 mGy) in Japanese macaque teeth. This technical advancement was facilitated by newly developed software that optimized the ESR signal, as well as the development of a method used to separate tooth enamel from dentine based on differences in tissue gravity. The technique should also be useful for ESR dosimetry of human deciduous teeth.

keywords:

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