

テーマ（１）
放射線被ばく線量の評価に関する研究

- 1－1 短半減期核種の寄与と合理的な線量係数を考慮した内部被ばく線量評価の高精度化に関する研究
高橋 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)
- 1－2 住家内汚染の包括的研究及びこれによる内部被ばく線量評価
吉田 浩子(東北大学大学院薬学研究科ラジオアイソトープ研究教育センター 講師)
- 1－3 乳歯を用いた福島県在住小児の被曝線量評価
佐々木 啓一(東北大学大学院歯学研究科口腔システム補綴学分野 教授)

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

研究者 高橋千太郎（京都大学原子炉実験所）

研究要旨

本研究は、「短半減期核種の寄与」と「合理的・実地的な線量係数」の2点を考慮して、東京電力福島第一原子力発電所の事故（以下、福島原発事故）により生じた一般公衆における内部被ばくの線量を高精度に再評価し、被災者の不安の解消と健康管理や健康不安解消への取組の有効性の向上に資することを目的としている。本年度は、事故後に開催された国際シンポジウムや各種の報告等の調査・分析を行い、放出量や半減期、実効線量換算係数（線量係数）などの観点から、これまでの線量評価で考慮されている放射性セシウム等の核種以外では、放射性テルルがもっとも線量寄与の大きい可能性があることを明らかとした。また、放射性セシウムによる内部被ばく線量の評価に関して線量評価モデルについて検討し、消化管吸収率に関するパラメータが被ばく線量の推定値に大きな影響を及ぼすことから、土壌に吸着された放射性セシウムの消化管吸収率を動物実験で求め、国際放射線防護委員会のモデルで使用されている吸収率よりかなり小さいことを見出した。今後、放射性テルルの環境動態と生体内での代謝、ならびに、より現実的な摂取様式・形態における放射性セシウムの消化管吸収率に関して動物実験や文献調査を行い、福島原発事故に伴う一般公衆の内部被ばく線量をより高精度かつ現実的に評価していく。

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

I 研究目的

福島原子力発電所の事故から6年近くが経過した。関係機関の不断の努力により復旧・復興への道筋が見えてきたとはいえ、被災された方々の放射線（能）による健康影響に対する不安感は依然大きい。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。

本研究は、事故により生じた一般公衆における内部被ばくの線量を高精度に再評価することで、被災者の不安解消と今後の健康影響評価に資することを目的とする。被ばく線量は健康影響評価において重要なパラメータであり、本研究では、特に内部被ばく線量を現実に即して高精度に評価するとともに、被災者の不安の一因となっている初期の短半減期核種による内部被ばく線量について、実際にどの程度のものであったかを科学的なエビデンスをもって明らかにすることにより、今後の健康管理や不安解消への取り組みの有効性向上に寄与しようとするものである。

研究は2つの観点から進めることとし、その具体的な目的は以下のとおりである。観点①では「短半減期核種の寄与を考えた内部被ばくの線量評価を行う。事故により環境中に放出された放射性ヨウ素や放射性セシウムについては内部被ばく線量の推定がなされているが、短半減期核種がどの程度の内部被ばくの実効線量をもたらしたかは不明である。この観点から、従来報告されているデータの調査並びに実験的な研究から短半減期核種による内部被ばく線量を明らかにする。観点②では摂取の状況を反映した合理的な線量係数を実験的に求めて、実地的な内部被ばく線量

を評価することを目的とする。さらに、これら①、②の観点からの研究成果を統合し、精度が高く、実際的な内部被ばく線量を科学的知見に基づき、分かりやすい形で提示することにより、住民の不安解消や健康管理等の方策の有効性向上に寄与することを最終的な目標としている。

II 研究方法

本研究は2つの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。

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については、比較的測定が簡単で牛乳等を介しての小児の被ばくが懸念された放射性ヨウ素を除いては、ほとんど環境試料における放射能測定が行われなかった。したがって、線量評価に関する報告も皆無である。平成28年度は、これらの国際シンポジウム¹⁾、日本学会議のデータベース、および学術論文・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、線量の寄与が大きかったと推定される核種を明らかにする。平成29年度は、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。また、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。平成28年度は、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²⁾を修正する。平成29年度は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。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、より実際的で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かを提示する。

平成28年度に実施した動物実験ではラットを用いて消化管吸収率の測定を行い、糞尿を分離して採取して体外への排泄量を明らかにするとともに、NaI検出器を用いて自作した動物用全身計測装置を用いて体内残留率を測定し、それらの値から消化管吸収率を推定した。また、これらの第一、第二のアプローチによるいずれの研究においても、福島県で採取した土壌が必要である。実験に供する代表的な土壌を、実験の実施前に一括して採取しておく必要がある。このため、平成28年度には、適当な採取地の選定、採取の許可の取得、ならびに実際の採取を行った。

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①②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、および不安解消の取り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できる形で提示して行く。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 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に関する研究

環境放射能に関連するデータの調査・分析から線量として寄与の大きかったと推定される短半減期核種を同定することを試みた。内部被ばく線量として寄与の大きかった可能性のある短半減期核種を抽出するための指標として、規制委員会や文科省の発表データ、海洋の測定データ（国際 WS での発表）¹⁾、原研機構の土壌測定データ³⁾などから、放出核種とその量を調査し、これに ICRP の勧告する線量係数を乗じて総線量（放出量のすべてをある集団が経口摂取または吸入摂取したと仮定した時のその集団における預託実効集団線量）を年齢別に求めた。また、農林統計から福島県を中心とする地域における米、葉野菜、根菜の平均生育期間を調査した。

これらの調査結果に基づき、総線量の大きさ、半減期が農作物の平均生育期間をどの程度上回っているかなどの観点から、検討すべき核種を重要度別で ABCD として評価したところ、放出されたと考えられている 30 核種のうち表 1 に示した 10 核種が公衆への線量寄与という点で重要 (A) またはある程度重要 (B) と判断された。すなわち Cs-134、Cs-137、Sr-90、Te-127m、I-131 が重要度 A、Te-129m、Ce-144、Sr-89、Zr-95 がそれに続く重要度 B と判断された。また、規制庁の発表データには放出量が記載されていないが、Ag-110m が事故後初期の土壌の測定において検出されており、これも検討すべき核種と考えられた（表 1 に重要度 A または B と判断された 9 核種および Ag-110m を経口摂取した場合の成人の総線量と重要度分類を示す）。さらに、事故後にいくつかの機関で測定された大気粉塵の放射能データを収集し解析したところ、理化学研究所および都立産業技術研究所の大気浮遊じんの測定においてもこれらの核種のいくつかが有意に測定されていたことを確認した。

表 1 総放出量と線量換算係数からみた重要度（経口摂取）

核種	半減期	総放出量 (Bq)	線量係数 (成人)	総線量 (Sv) *注1	重要度*注2
Cs-134	2.062y	1.80×10^{16}	1.90×10^{-8}	3.42×10^8	A
Cs-137	30.0y	1.50×10^{16}	1.30×10^{-8}	1.95×10^8	A
Sr-89	50.5d	2.00×10^{15}	2.60×10^{-9}	5.20×10^6	B
Sr-90	29.12y	1.40×10^{14}	2.80×10^{-8}	3.92×10^6	A
Zr-95	63.98d	1.70×10^{13}	9.50×10^{-10}	1.62×10^4	B
Te-127m	109d	1.10×10^{15}	2.30×10^{-9}	2.53×10^6	A

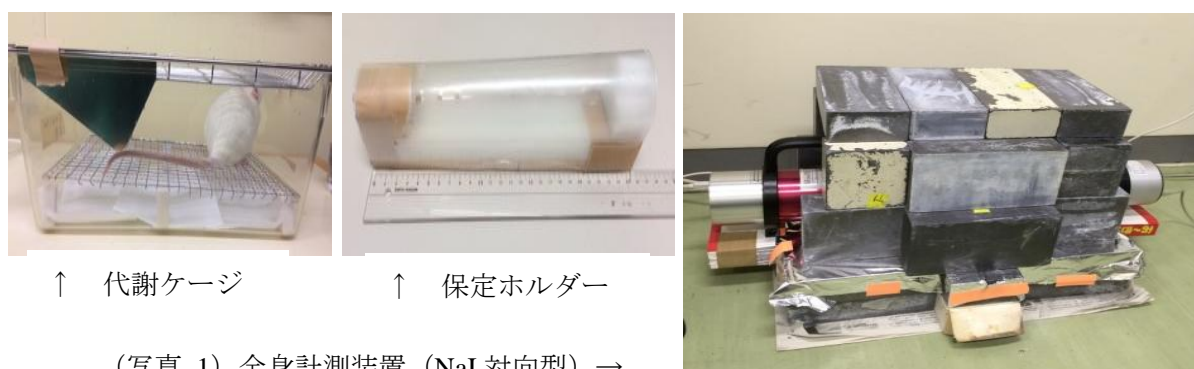
Te-129m	33.6d	3.30×10^{15}	3.00×10^{-9}	9.90×10^6	B
Ce-144	284.3d	1.10×10^{13}	5.20×10^{-9}	5.72×10^4	B
I-131	8.02d	1.60×10^{17}	2.20×10^{-9}	3.52×10^9	A
Ag-110m	249.9d	不明	2.80×10^{-9}	不明	B

*注1 総線量とは、総放出量に ICRP が提示する経口摂取時の成人における線量係数を乗じたものであり、仮に放出量の全量が、ある成人集団によって摂取された場合の集団線量を意味している。

*注2 放出された 30 核種のうち、重要度が A または B の核種のみ記載。これ以外の C または D と判断された 20 核種については省略。

2) 合理的な線量係数を考慮した線量評価に関する研究

セシウムの摂取状態により消化管吸収率が異なると推察できることから、動物実験により吸収率を求めて線量係数の変動を調べることにしている。平成 28 年度は、まず、このような代謝実験に必要な実験設備の整備と手法の確立を行った。具体的には 8 - 10 週齢の Wistar 系雌性ラットを用い、カプセルを用いて胃に直接投与し、糞と尿を分離できるケージで飼育することとした。動物は一定時間後に保定器にいれ、2 台の NaI シンチレーション検出器を用いて体内残存量を測定する装置と手法を確立した（写真 1）。



次に、この装置と手法を用いて土壤に吸着された放射性セシウム（福島県から採取）を上記の方法でラットに経口投与した。図 2 に土壤に吸着されたセシウムの全身滞留率を、可溶性（イオン状）の放射性セシウムおよびバリウム粒子（直径 1mm - 砂糖を芯として表面をメチルセルロースで固めて作製・極めて不溶性）の全身滞留率とともに示した^{4,5)}。イオン状のセシウムではラット体内での生物学的半減期が 30 時間程度であるのに対し、福島より採取した土壤に吸着されたセシウムを経口投与した場合の全身滞留率は不溶性のバリウム粒子に近く、よって消化管吸収率 f_1 は非常に小さいことが分かった。現在、動物数を増やしてデータの精度を高めるとともに、土の種類の影響や動物の生理的な状態（絶食、年齢）などについて検討を行っている。

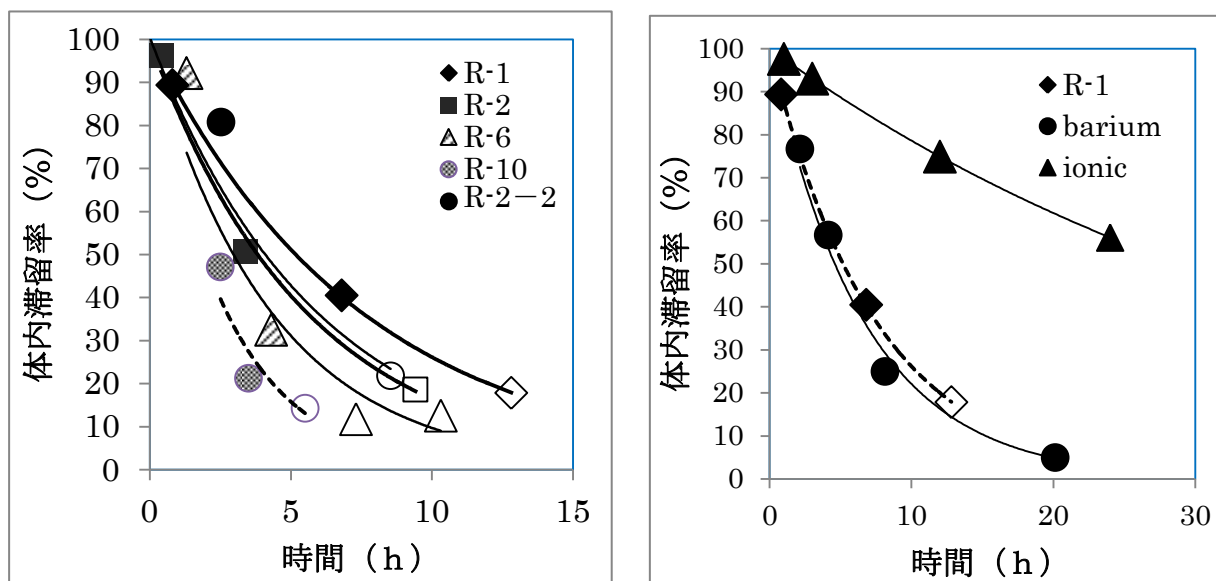


図2 ラットに経口投与した放射性セシウムの全身滞留率。図中 R-1, R-2 などの表示は使用したラットの個体番号を示している。また、■などのマーカの白抜き□は測定値が検出限界以下の参考値である。

IV 考察

事故後の初期（数カ月から1年以内）において内部被ばく線量に寄与した可能性のある短半減期核種を同定しその預託実効線量について明らかにすること、並びにセシウムについては実際の代謝動態を考慮に入れた線量係数を提示することにより、福島原発事故時の内部被ばく線量について従来より高精度で実際的な線量を明らかにするとともに、今後の軽水炉における事故時に重要な環境動態や動物代謝に関する知見を得ることを目的として本年度より研究を開始した。

これまでのデータの調査・分析から、初期に重要となる可能性のある核種としては、Te-127m, 129m, 132m などの放射性テルルや、放射性の銀などがあることが判明し、当面放射性テルルを対象に研究を進めることとした。これらの核種の食品中濃度については事故後に測定されていないので、データのある土壌濃度から食品濃度を推定して預託実効線量を求める必要がある。しかしながら、表2に示したように、IAEAの技術書472などを見ても今回重要と判明したテルルについては、ほとんどデータが無い状況である⁶⁾。このため土壌-植物間の移行係数について実験的に求めることとし、実験装置の整備や手法の検討を行っている。

表2 IAEAの技術書472に示された植物移行係数関係の論文・報告書の数

核種	穀類		トウモロコシ類		野菜			根菜		塊茎	草本	マメ類飼料	牧草	ハーブ	その他	今後の必要性
	種粒	茎	種粒	茎	葉物	茎根	豆類	根	葉							
Ag					5	5		6								○
Ce	20	13			1		2	1		1	2	4	10			○
Cs	470	130	67	101	290	38	126	81	12	138	64	85	401	4	9	

I	1	4			10	5	1	2	1					1		○
Te	1				1	1		1		1				1		◎
Zr	1				1	1		1		1				1		◎

一方、内部被ばく線量評価への寄与が大きな消化管吸収率について動物実験を開始し、土壤に吸着された状態では吸収率が極めて低いことを見いだした。図1に示したように、動物個体差が大きく、その原因については不明であるが、イオン状のセシウムを投与した時に比べ、土壤に吸着したセシウムの消化管吸収率が極めて低い（急速に排泄される）ことは明白である。現在、動物数を増やすなどしてデータの精密化を図っている。今後、食品との摂取などの影響について明らかにしていく。

V 結論

事故後の初期（数カ月から1年以内）において有意な内部被ばく線量を一般公衆に与えている可能性のある放射性核種は、これまでの調査や食品規制値などで考慮されてきた放射性セシウム、放射性ヨウ素、放射性ストロンチウム、プルトニウム以外に、短半減期核種の放射性テルルや放射性銀、放射性セリウム、放射性ジルコニウムなどがあることが調査により明らかにされた。また、放射性セシウムによる内部被ばく線量に関しては、土壤に吸着したセシウムでは極めて消化管吸収率が低いことが動物実験より明らかとなった。これは放射性セシウムに対するICRPの線量係数を使うと土壤吸着セシウムに関しては内部被ばく線量が実際の線量より大きく評価されている可能性を示している。

VI 次年度以降の計画

短半減期核種の寄与に関しては、今年度の調査研究で放射性テルルの寄与が大きいことが明らかとなった。放射性テルルについてはTe-129mの土壤中での濃度についてのみ事故後のデータが取得されていて、食品中の濃度については不明である。そこで平成29年度には土壤から食用植物への移行係数を調査するとともに、葉根野菜については実験的に土壤-植物移行係数を求める。平成30年度には、データの取りまとめと信頼性の確認を行った後、事故後短期間（数カ月から1年以内）における内部被ばくの線量の推定に使用していく。

より実的な線量係数を用いた線量評価に関しては、平成28年度は土壤に吸着されたセシウムについて消化管吸収率を明らかにし、ICRPの線量係数を用いると内部被ばく線量の評価値が課題であることを示した。平成29年度は、動物実験を継続して精度の高い代謝データを取得するとともに、動物の生理的状态（絶食の影響、性差など）および食品に含まれている場合について実験的研究を進める。平成30年度には、実験的に求めた消化管吸収率から合理的な線量係数を求め、これを用いて内部被ばく線量を推定する。最終的には、短半減期核種の寄与も含めて、より精度の高い内部被ばく線量を推定して関係機関等に提示して行く。

被災した方の放射線による健康影響を調査して行く上で、被ばくした放射線量は必須のデータである。また、被災者の中には、事故後の放射線被ばく線量、特に内部被ばく線量について十分なデータが提示されていないことに不安感を持つ方も多い。本研究は、放射線影響評価の基礎となる被ばく線量を科学的な裏付けをもとに高精度に推定し、今後の健康管理や被災者の不安解消への取り組みの有効性の向上に寄与していく。

この研究に関する現在までの研究状況、業績

1) 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, 保健物理. (2016); 51 : 19~26.

引用文献

- 1) Radiation Monitoring and Dose Estimation of the Fukushima Nuclear Accident, S Takahashi ed., Tokyo, Springer Japan, (2014)
- 2) International Commission on Radiological Protection, ICRP Publication 72, Ann. ICRP, 26, (1995)
- 3) JAEA 2012 : JAEA, 文部科学省 平成 23 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第二次分布状況等に関する調査研究」成果報告書
<http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/entry02.html>
- 4) 松岡理 編著, 実験動物からヒトへの外挿 - その考察と資料 - 1980 年版, ソフトサイエンス社, p.156. (1980)
- 5) 田中文彦, 中崎薫, 須藤訓, 他 : バリウム粒子を用いた腸管排出機能検査法の開発 - その基礎的検討と臨床的有用性 - . 慈恵医大誌, 119: 63 - 75. (2004)
- 6) International Atomic Energy Agency: IAEA Technical Report Series 472. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environment, Vienna (2010)

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 plant accident

Abstract

The purpose of this study is to estimate public internal radiation doses following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident more accurately, in order to relieve people's anxiety concerning radiation health hazards and to enhance the efficiency of state measures for health control and victim support. Radiation doses will be accurately estimated using two approaches at the end of this projective study: (i) by considering the contribution of short-lived radionuclides not considered in past estimations, and (ii) using more realistic dose coefficients. During fiscal year 2016, the first year of this project, we analysed existing data reported in relevant documents and scientific meetings and found that radio tellurium might indicate a significant radiation dose to the public comparable to radio caesium. For more realistic estimation of dose coefficients, animal experiments were carried out using radio caesium contained in soil and Wister strain rats. Experimental results showed a very low absorption ratio from the gastro-intestinal tract to body blood, i.e., lower than reported in publications of 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 2017 and 2018, we will continue to study the behaviour of radio tellurium in the environment and in the human body, and work on identifying more realistic dose coefficients for radio caesium by means of animal experiments and plant culture systems. Finally, we estimate more accurate internal radiation dose using these data, and present them to relevant organizations.

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

吉田浩子(東北大学・講師)

住宅室内における放射性物質の挙動の把握と曝露評価

篠原直秀(産業技術総合研究所・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家 21 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、放射性セシウム（放射性 Cs）を測定した。ハウスダストでは粒径が小さいほどダスト重量当たりの放射性 Cs 濃度が高くなる傾向が観察された。また、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ったが、溶解性に粒径依存性は見られなかった。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おり、福島第一原発からの距離との相関は観察されない。室内エアロゾル中の放射性 Cs は、 $0.25 \mu\text{m}$ ～ $0.5 \mu\text{m}$ が谷となる粒径分布となっていることが示された。表面汚染密度は原発からの距離とゆるやかな相関関係を示していたが、住家ごとの表面汚染密度とダスト重量当たりの放射性 Cs に相関は観察されなかった。

キーワード 室内、放射性セシウム（放射性 Cs）、ハウスダスト、エアロゾル、掃除、内部被ばく線量

研究協力者 小林光(東北大学・准教授)

1 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 日に一斉解除する。また、「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、各市町村の实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。外部被ばくの観点から、平成 24～26 年度の原子力災害影響調査等事業において、避難指示区域の木造住家 95 戸について屋内の表面汚染を乾式スミア法による調査を実施した。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、放射性セシウム（放射性 Cs）のレベルは福島第一原発との位置・距離に依存しており、原発周辺の住家では原発からの距離のほぼ二乗に反比例していることを示した¹⁾。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った。

II 研究方法

福島県双葉町及び大熊町の住家 21 軒（福島第一原発からの距離 1.60～6.92 km）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。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り埃等をほうきで掃き集めた室内塵を指す。また、エアロゾルは、ポンプでカスケードインパクトに捕集した空気中の浮遊粒子状物質を指す。

調査住家の場所を図 1 中青い丸印で示す。20 軒が帰還困難区域、1 軒が居住制限区域にある。一部の住家（4 軒）では、①掃除機がけ（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を分けて行い、それぞれの作業中のハウスダスト及びエアロゾルを捕集した。また、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も行った。掃除作業に入る前に、家具平面などに沈着している放射性物質（ダストに付着）をスミア法によりサンプリングし表面汚染密度を測定した。

なお、中間貯蔵施設予定地内の住家については原発に近い位置にあることからハウスダスト及びエアロゾルの放射性 Cs が高い値を示すと想定され、全体の状況を見る上で重要な調査箇所である。予定地内の住家は環境省への引き渡しが進みつつあるため、本年度は予定地内の住家を重点的に調査した。

ハウスダストは、サイクロン式掃除機（DYSON, DC61MH）を用いて、最後段に 4 μm フィルターを取り付けた複数の粒径の篩を通して粒径別に（4-20 μm , 20-63 μm , 63-180 μm , 180-500 μm , 500 μm -1 mm）捕集した。捕集後に振とうによる篩分けを追加で実施した上で、粒径別に秤量し、容器に取り分けた放射性 Cs (^{134}Cs , ^{137}Cs) を高純度ゲルマニウム半導体検出器（EURISYS、EGPC50-195-R）により 100～3,000 秒間測定した。定量解析は Gamma Studio（セイコー・イメージアンドジー、DS-P600）にて行った。

更に、各粒径のハウスダスト（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（5 mL もしくは 2.5 mL）を加えて 200 rpm で 2 時間振とうした。振とう後、直ちに 1 時間 15,000g 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 15,000g 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（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 18,000g で遠心してハウスダスト残渣と溶出液を分離し、1 規定の塩酸 1 mL を加えて 1 時間 18,000g 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。水溶出試料及び塩酸溶出試料については、100

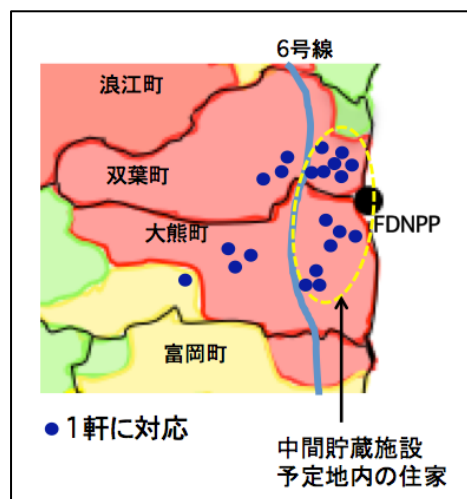


図 1. 調査住家の場所 図中赤は帰還困難区域、黄は区域を示す。（平成 28 年度の時点）

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 20-100 分間測定した。一部のサンプルについてゲルマニウム半導体検出器でも測定を行って放射能を評価し相関関数を作成した。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。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 秒間測定し定量評価した。

室内外空気中のエアロゾルは、カスケードインパクトを用いて粒径別 (<0.25 μm, 0.25-0.5 μm, 0.5-1.0 μm, 1.0-2.5 μm, 2.5-6.6 μm, >6.6 μm) にフィルターで捕集し、それぞれのフィルターについて、プラスチックシンチレータ検出器 (日立アロカメディカル, JDC-5300) で ^{134}Cs , ^{137}Cs からのベータ線を 60 ~ 100 分間測定した。放射能の値付けは高純度ゲルマニウム半導体検出器で行った。

家具平面などの表面汚染を乾式スミア (拭き取り) 法による間接測定で測定した。部屋の大きさに応じて 1 部屋あたり 1~3 箇所について、主に木の表面を JIS Z 4504(2008)²⁾ に準じ 10 cm 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タ検出器 (前述) で ^{134}Cs , ^{137}Cs からのベータ線を 10 分間測定した。放射能の値付けはゲルマニウム半導体検出器で行った。拭き取り効率は実測で評価した 0.75 を用いた¹⁾。

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ピーク検出効率は 796 keV(^{134}Cs)で 0.5455%、662 keV(^{137}Cs)で 0.6326%であるが、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タ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、原試料から分取・調整された放射能が低い溶液試料やエアロゾルフィルターについては、液体シンチレーションカウンタ又はプラスチックシンチレータ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することとした。

住家の換気回数は CO₂ 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 CO₂ を室内に撒き、戸締りをした上で無人の状態 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。得られた CO₂ 濃度の減衰を指数関数でフィッティングすることで住家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

ハウスダスト中の放射性 Cs は、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が観察された (図 2、表 1)。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。図中、ID1_OK は調査住家を識別するために付した ID 番号である。

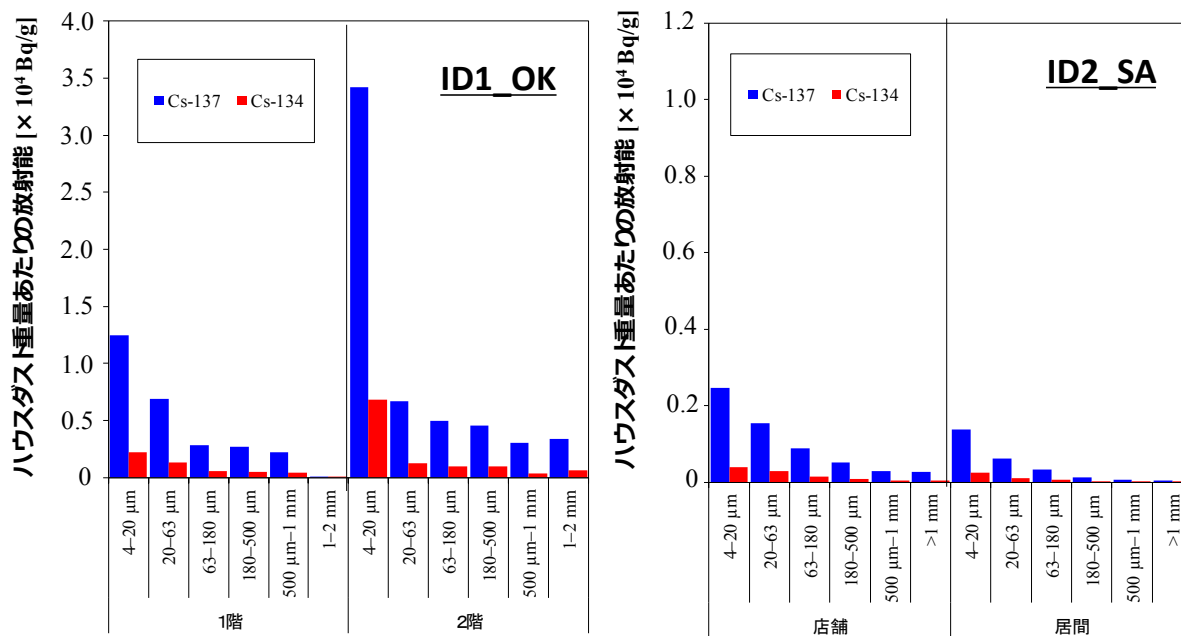


図 2. 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs). 粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

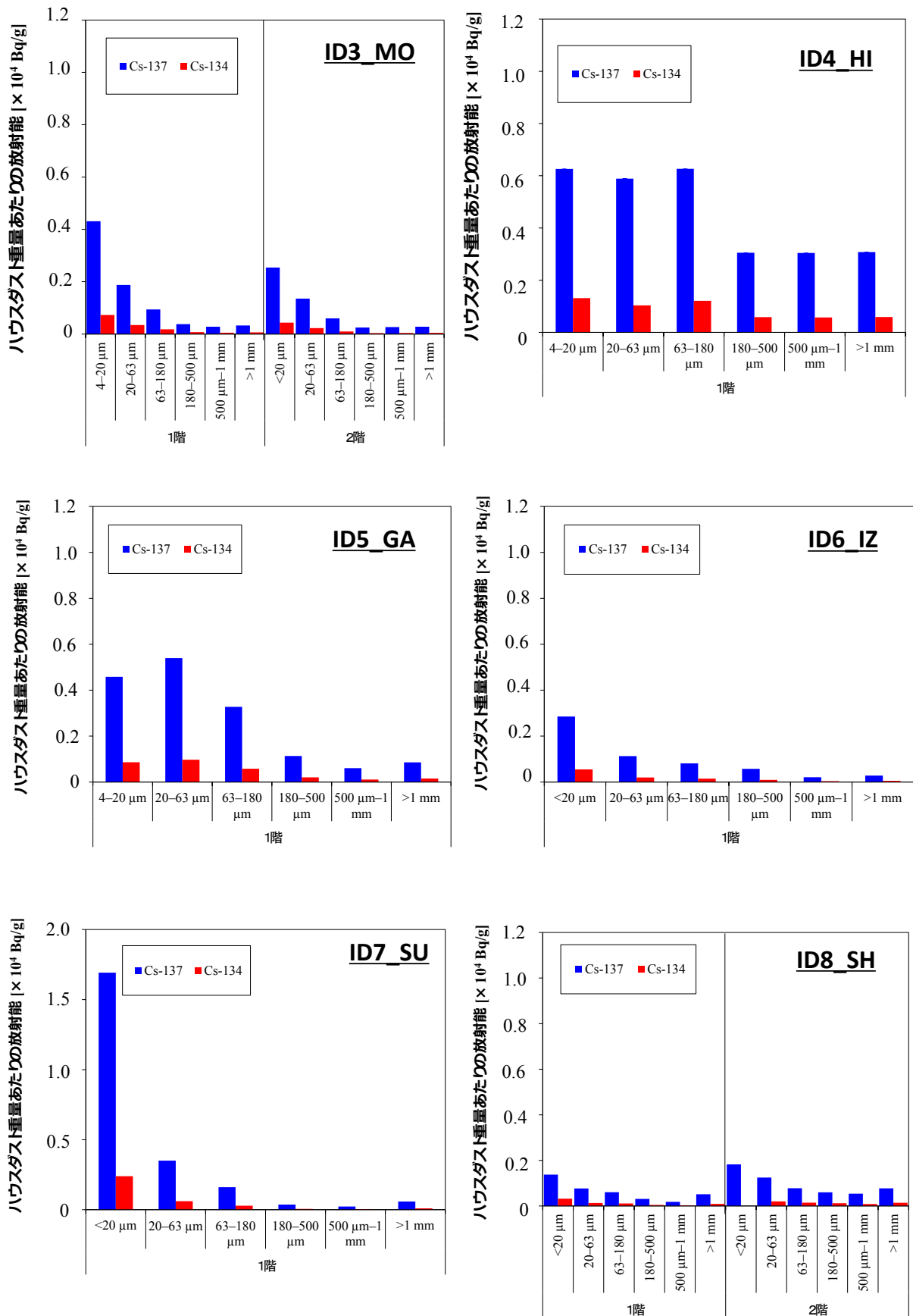


図2 (続き). 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs). 粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性Csは多い傾向が見られる。

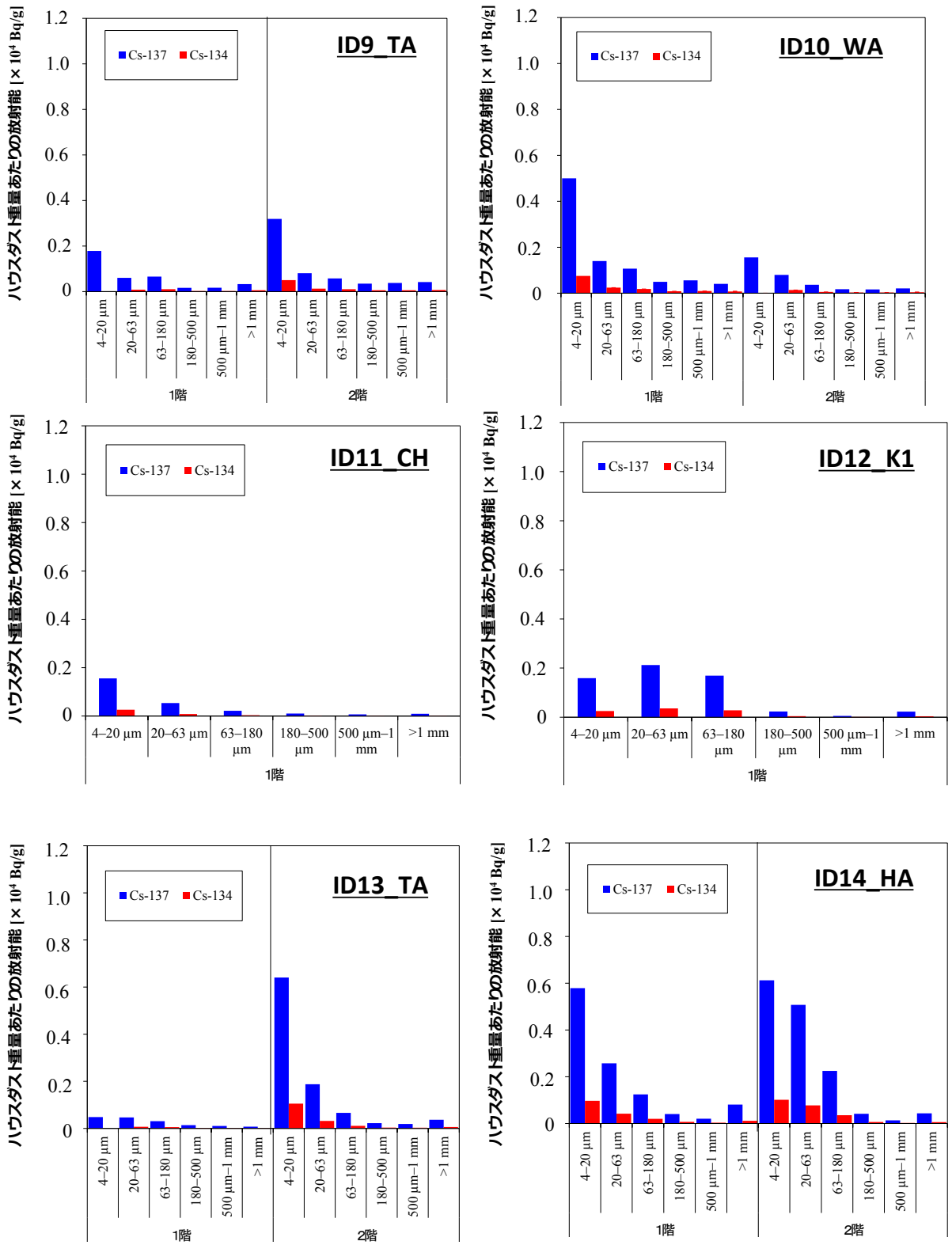


図2 (続き). 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ^{137}Cs , 赤: ^{134}Cs). 粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

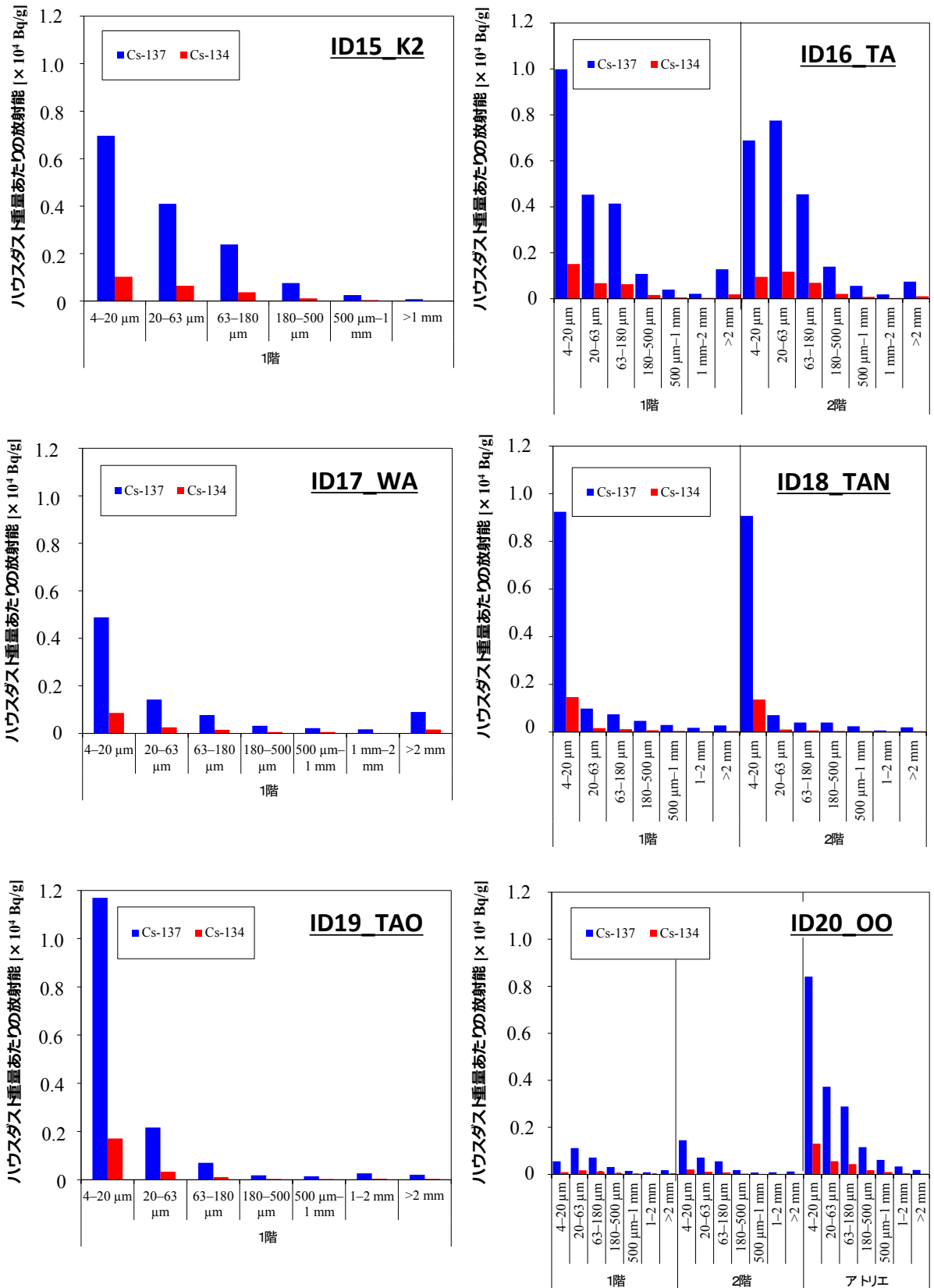


図2 (続き). 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs). 粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

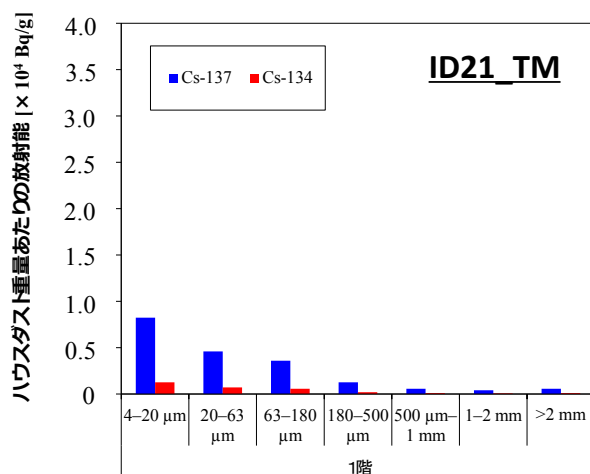


図2 (続き). 粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 Cs (青: ¹³⁷Cs, 赤: ¹³⁴Cs). 粒径が小さいほどハウスダスト重量当たりの放射性 Cs は多い傾向が見られる。

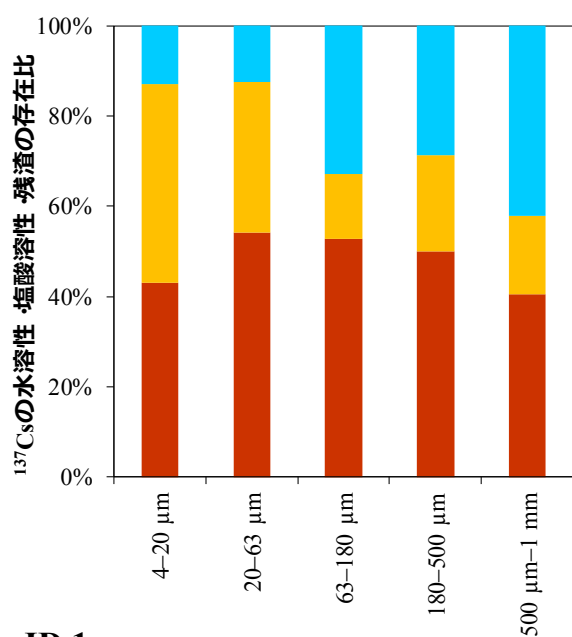
表1. 21軒の住家における粒径別のハウスダスト中の重量当たりの放射性 ¹³⁷Cs 濃度 (平均 ±標準偏差).

		ハウスダスト重量当たりの ¹³⁷ Cs (平均±SD) [Bq/g]
ハウスダスト重量 当たりの ¹³⁷ Cs	4-20 μm	$6.1 \times 10^3 \pm 6.4 \times 10^3$
	20-63 μm	$2.6 \times 10^3 \pm 2.2 \times 10^3$
	63-180 μm	$1.6 \times 10^3 \pm 1.6 \times 10^3$
	180-500 μm	$7.5 \times 10^2 \pm 9.6 \times 10^2$
	500 μm-1 mm	$5.0 \times 10^2 \pm 7.6 \times 10^2$
	1-2 mm	$4.8 \times 10^2 \pm 7.5 \times 10^2$

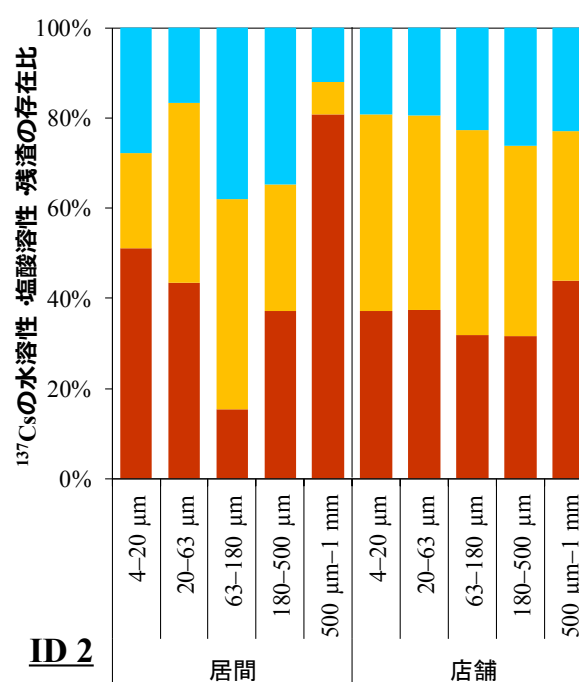
ハウスダスト中の ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs 比 (2011年3月15日時点に換算) の平均は、0.97~1.01で、粒径ごとに顕著な違いは見られなかった (表2)。ハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性、塩酸溶性、残渣の比率は、19%、33%、48%であり、水溶成分、塩酸溶成分の割合は家ごとに大きく異なっていたが、粒径ごとに大きな違いはなかった (図3、表3)。

表2. 21軒の住家における粒径別のハウスダスト中の放射性 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比 (平均 \pm 標準偏差, 2011年3月15日時点に換算した値).

	2011年3月15日時点の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 平均 \pm SD
4-20 μm	0.99 \pm 0.07
20-63 μm	0.97 \pm 0.05
63-180 μm	1.01 \pm 0.07
180-500 μm	0.97 \pm 0.06
500 μm -1 mm	0.98 \pm 0.05
1-2 mm	1.01 \pm 0.07



ID 1



ID 2

図3. 各住家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. (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.)

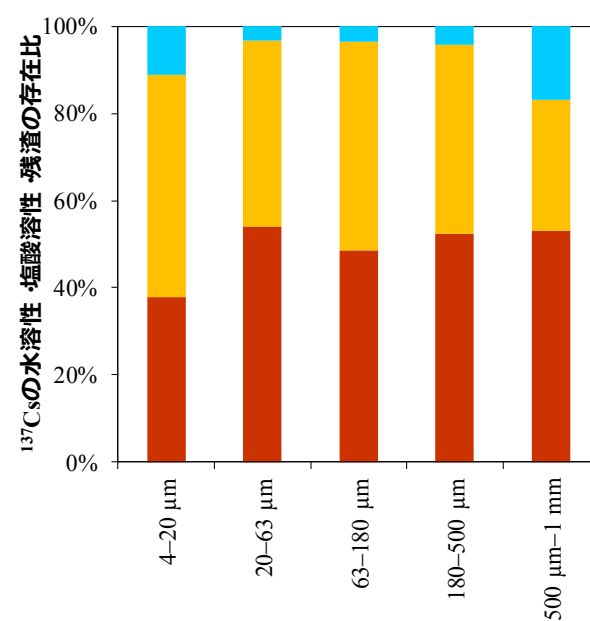
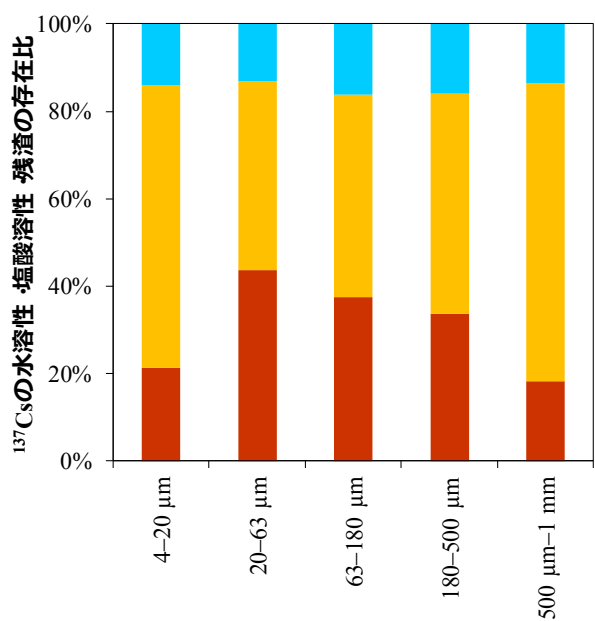
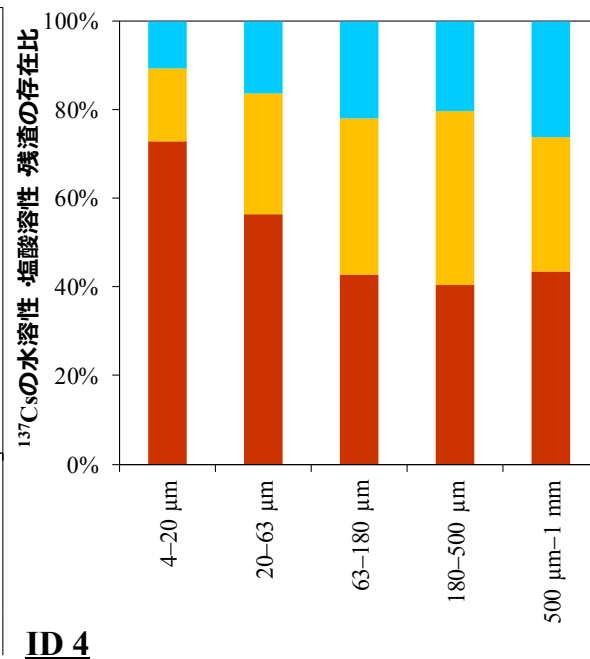
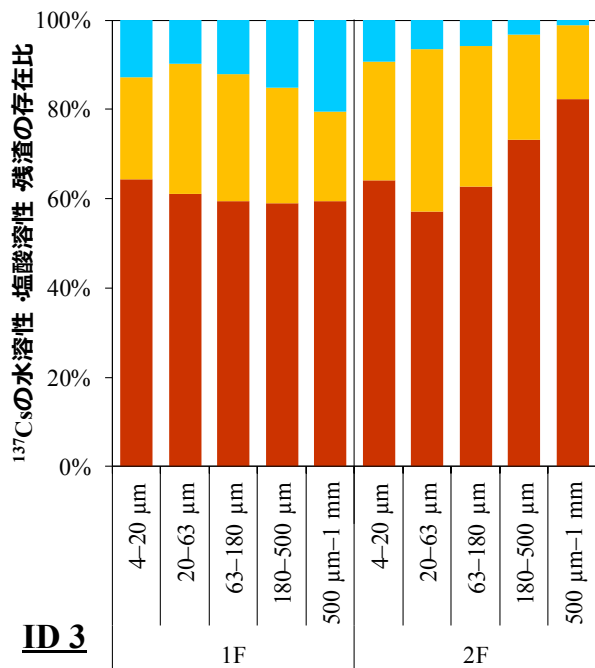
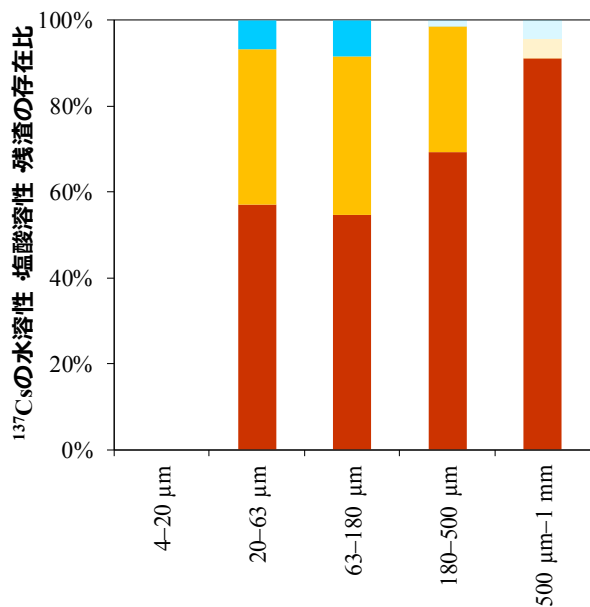
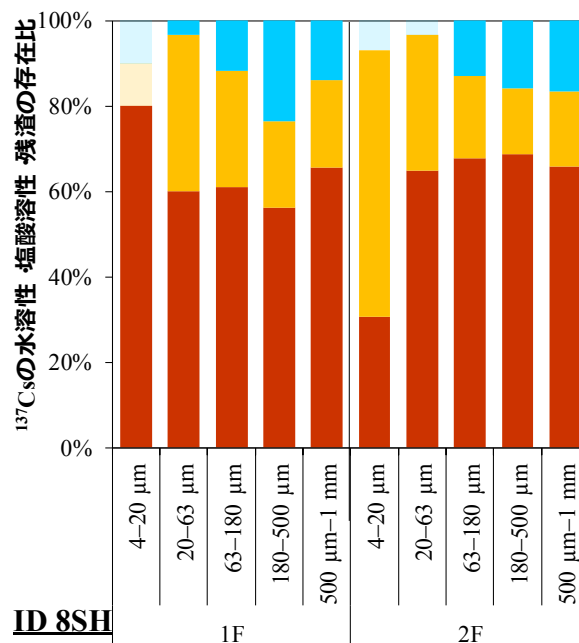


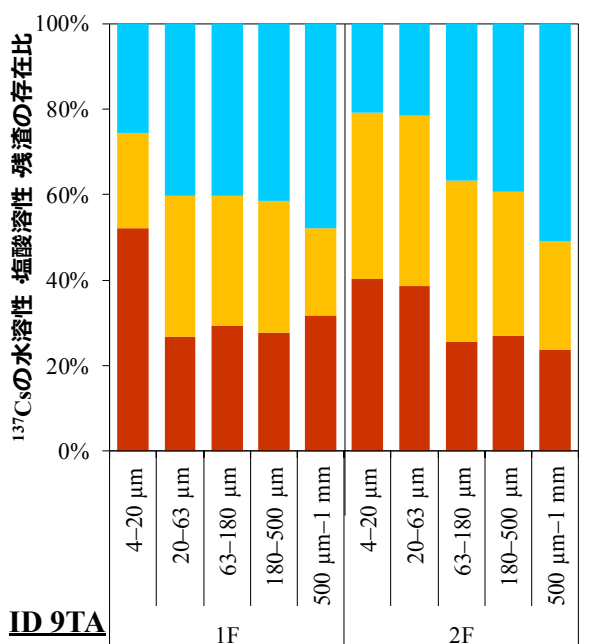
図3. 各住家のハウスダスト中の放射性Csの水溶性・塩酸溶性・残渣の割合。(それぞれ、水色・黄色・茶色で表記。また、検出限界以下の試料については、検出限界値の1/2の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した。)



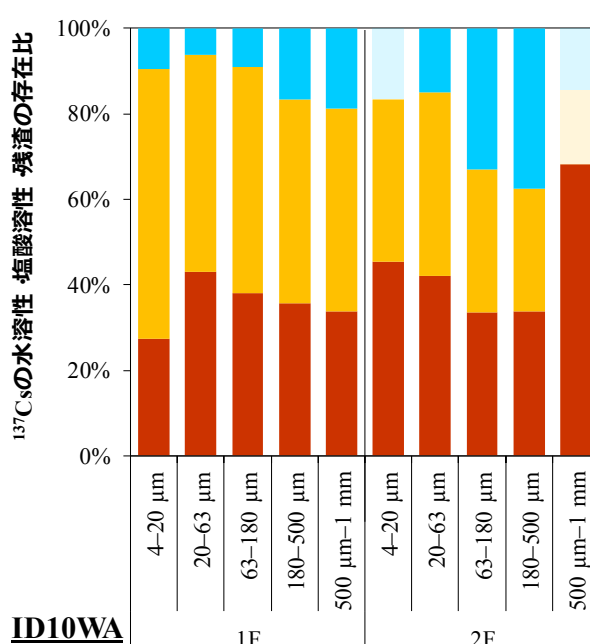
ID 7SU



ID 8SH

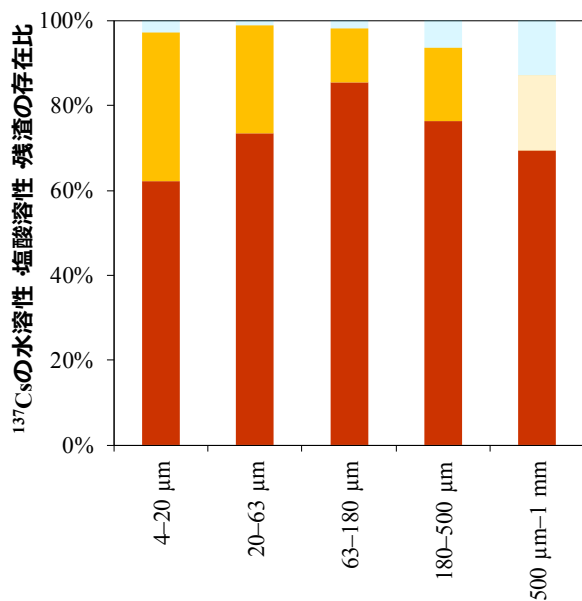


ID 9TA

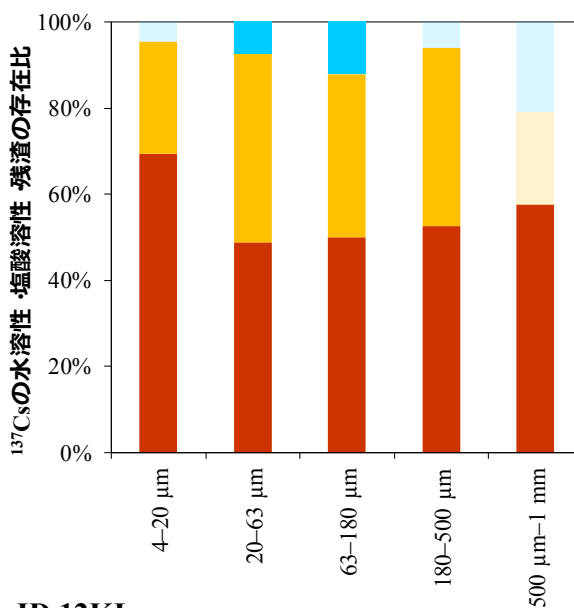


ID 10WA

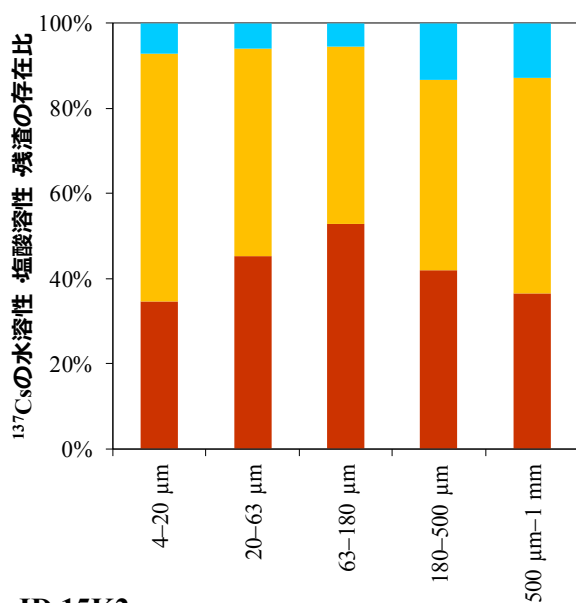
図3 (続き). 各住家のハウスダスト中の放射性 Cs の水性性・塩酸溶性・残渣の割合. (それぞれ、水色・黄色・茶色で表記. また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した.)



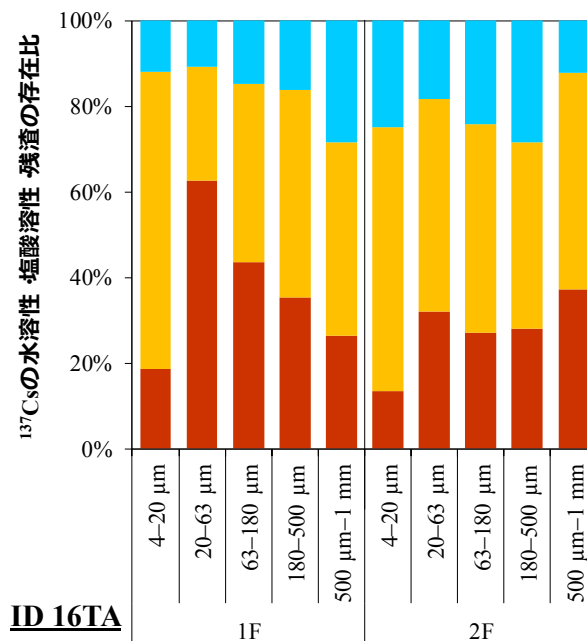
ID 11 CH



ID 12 KI

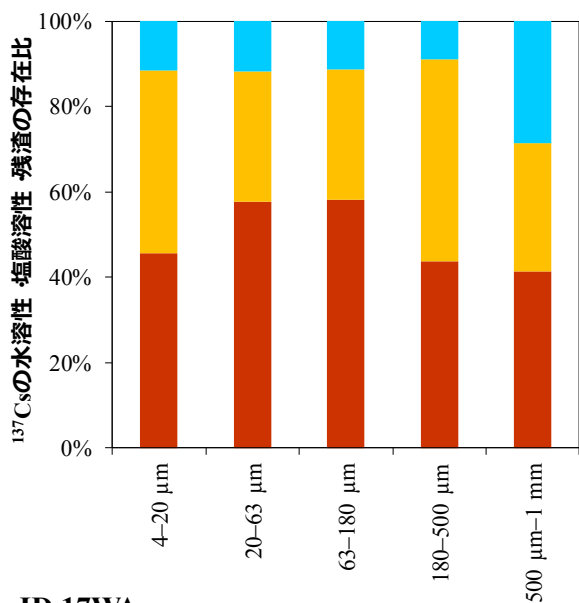


ID 15 K2

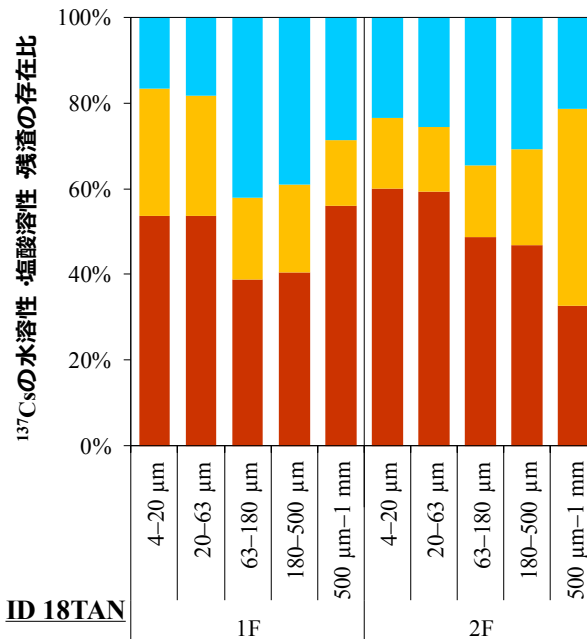


ID 16 TA

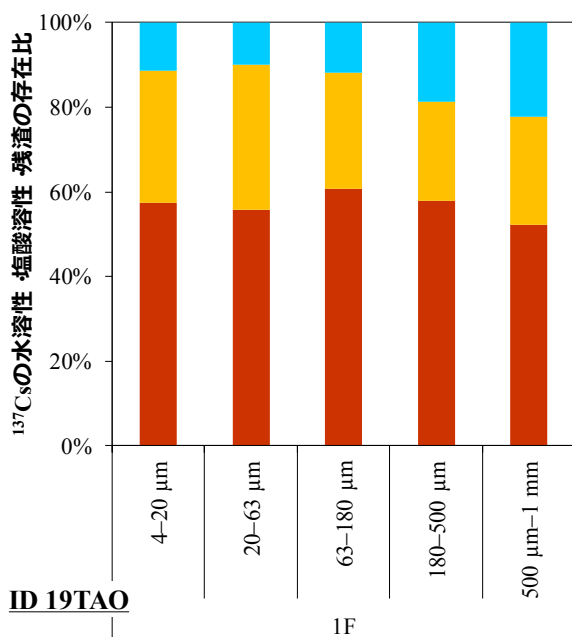
図3 (続き). 各住家のハウスダスト中の放射性 Cs の水溶性・塩酸溶性・残渣の割合. (それぞれ、水色・黄色・茶色で表記. また、検出限界以下の試料については、検出限界値の 1/2 の値を入れて薄水色・薄黄色・薄茶色で描画した.)



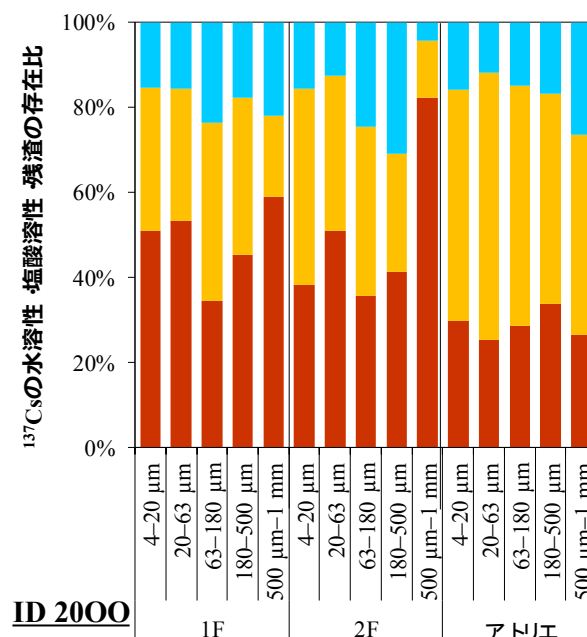
ID 17WA



ID 18TAN

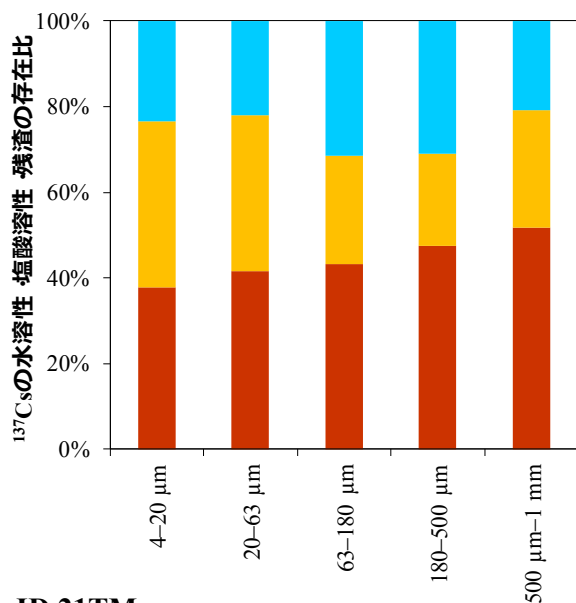


ID 19TAO



ID 2000

図3 (続き). 各住家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. (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.)



ID 21TM

図3（続き）．各住家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．（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3．14軒の住家における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）．

		各成分の全体に対する割合 平均±SD
残渣	4-20 μm	47%±17%
	20-63 μm	48%±12%
	63-180 μm	46%±16%
	180-500 μm	48%±15%
	500 μm-1 mm	53%±18%
HCl溶解	4-20 μm	39%±16%
	20-63 μm	40%±7.7%
	63-180 μm	36%±11%
	180-500 μm	33%±10%
	500 μm-1 mm	27%±14%
水溶	4-20 μm	14%±6.2%
	20-63 μm	12%±8.5%
	63-180 μm	18%±12%
	180-500 μm	20%±11%
	500 μm-1 mm	20%±13%

エアロゾル中の放射性 Cs は、各粒径 (<0.25 μm , 0.25-0.5 μm , 0.5-1.0 μm , 1.0-2.5 μm , 2.5-6.6 μm , >6.6 μm) における検出率は、65%, 20%, 35%, 65%, 95%, 85% であり、0.25 μm 以下と 1.0 μm 以上で検出率が比較的高かった (図 4、表 4)。粒径範囲の対数で規格化した結果、室内エアロゾル中の放射性 Cs は、0.25 μm ~ 0.5 μm (図中赤矢印) が谷となる粒径分布となっていることが示された (図 5)。

サイクロン式掃除機を使用した掃除機掛けとハタキ掛け・掃き掃除の際に別々に集めたハウスダスト中の放射性 Cs 濃度に違いは見られなかった。一方、エアロゾルについては、サイクロン式掃除機を使用した掃除機掛けの際には全て検出下限以下だったのに対し、ハタキ掛け・掃き掃除の際には多くの粒径範囲で放射性 Cs が検出された (図 6)。

表面汚染密度は原発からの距離とゆるやかな相関関係を示しており (図 7)、これまでに得られた知見 ¹⁾ と整合していた。住家ごとの表面汚染密度とダスト重量当たりの放射性 Cs に相関は観察されなかった。

住家が明らかな損傷を受けている住家で局所的に換気回数が高くなっている住家があった。今回調査した住家における換気回数 (平均 \pm 標準偏差) は、0.69 \pm 0.50 回/h であった (図 8)。

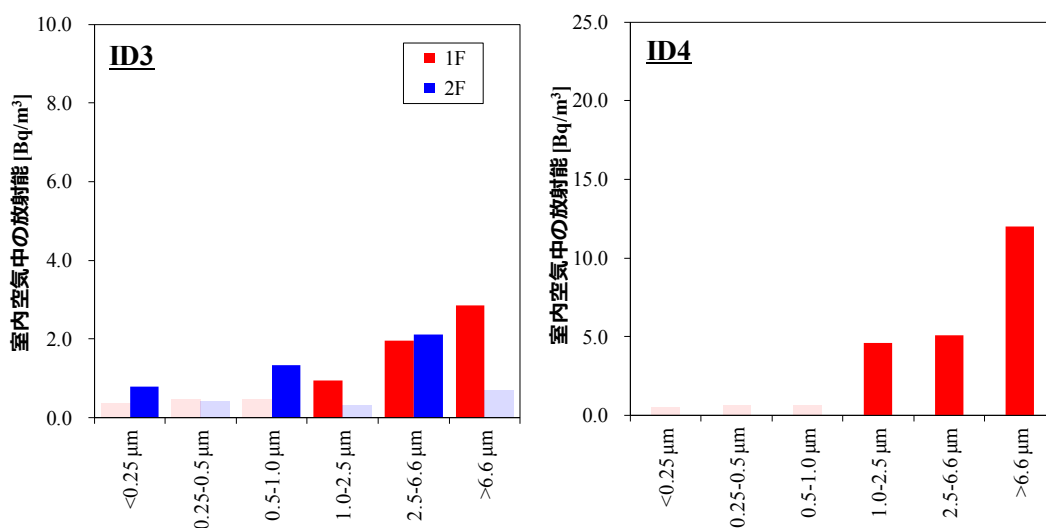


図 4. 各住家のエアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度. 検出限界以下の試料について、検出限界値の 1/2 の値を薄桃色で描画した.

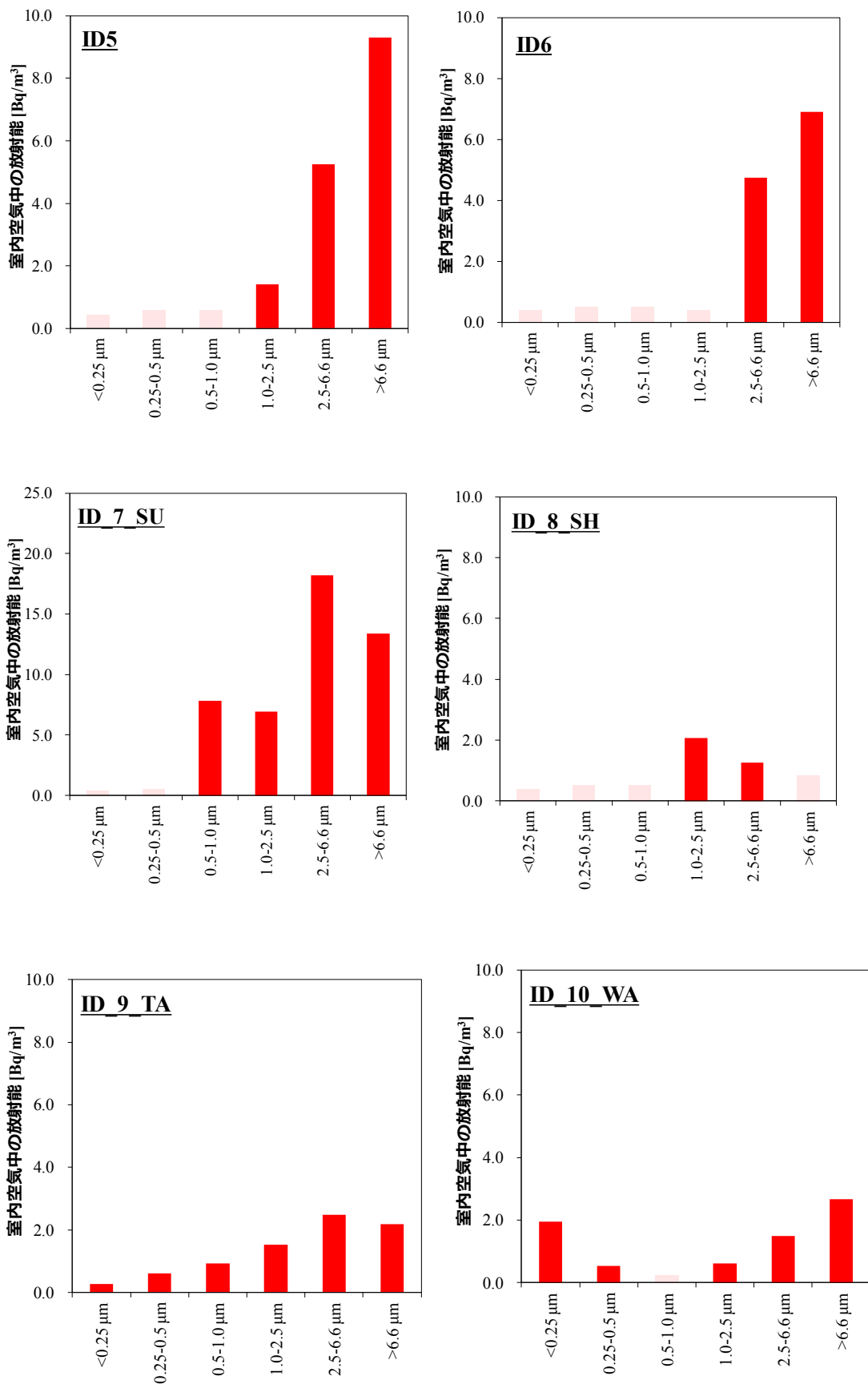


図4 (続き). 各住家のエアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度. 検出限界以下の試料について、検出限界値の 1/2 の値を薄桃色で描画した.

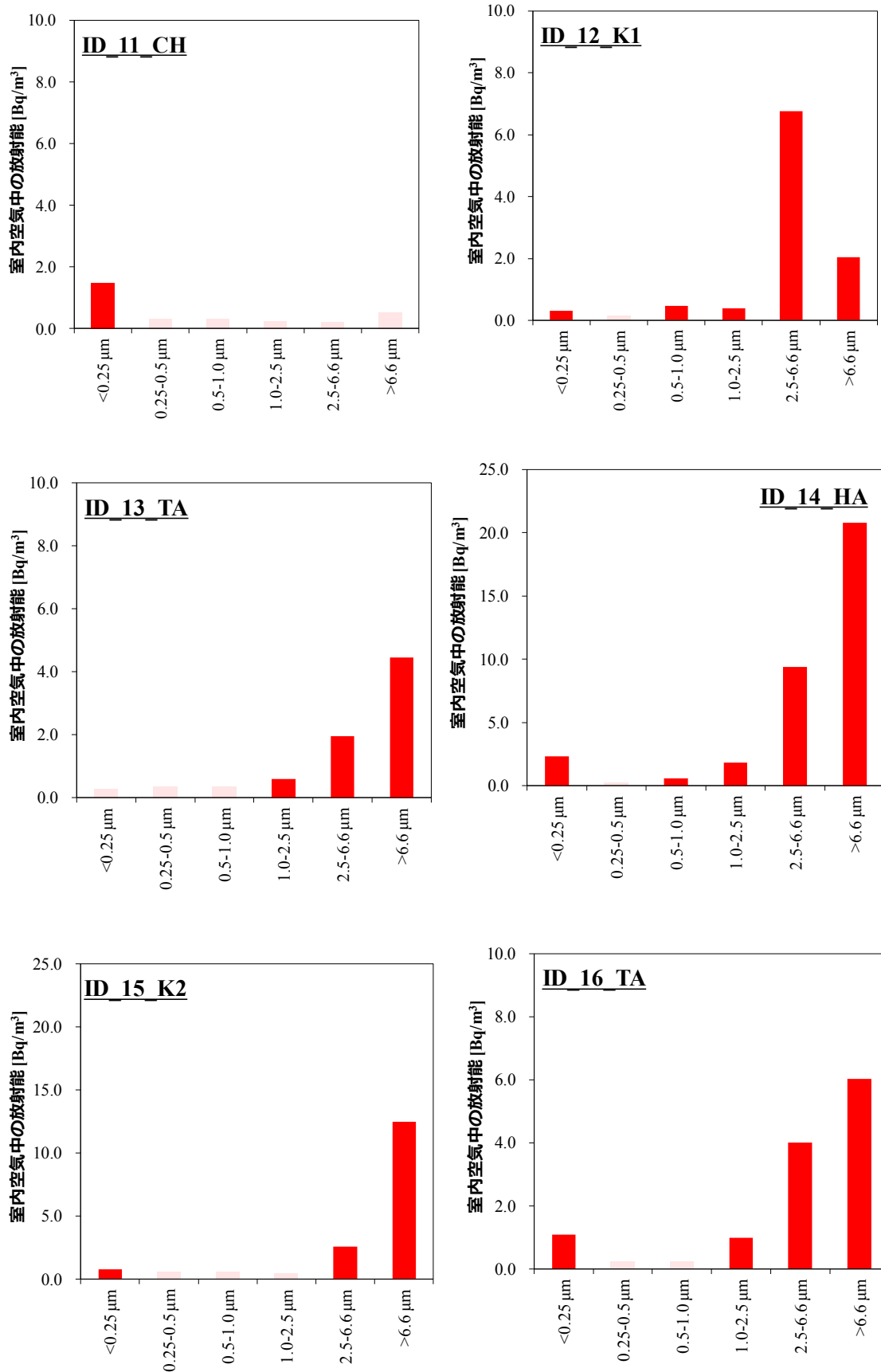


図4 (続き). 各住家のエアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度. 検出限界以下の試料について、検出限界値の 1/2 の値を薄桃色で描画した.

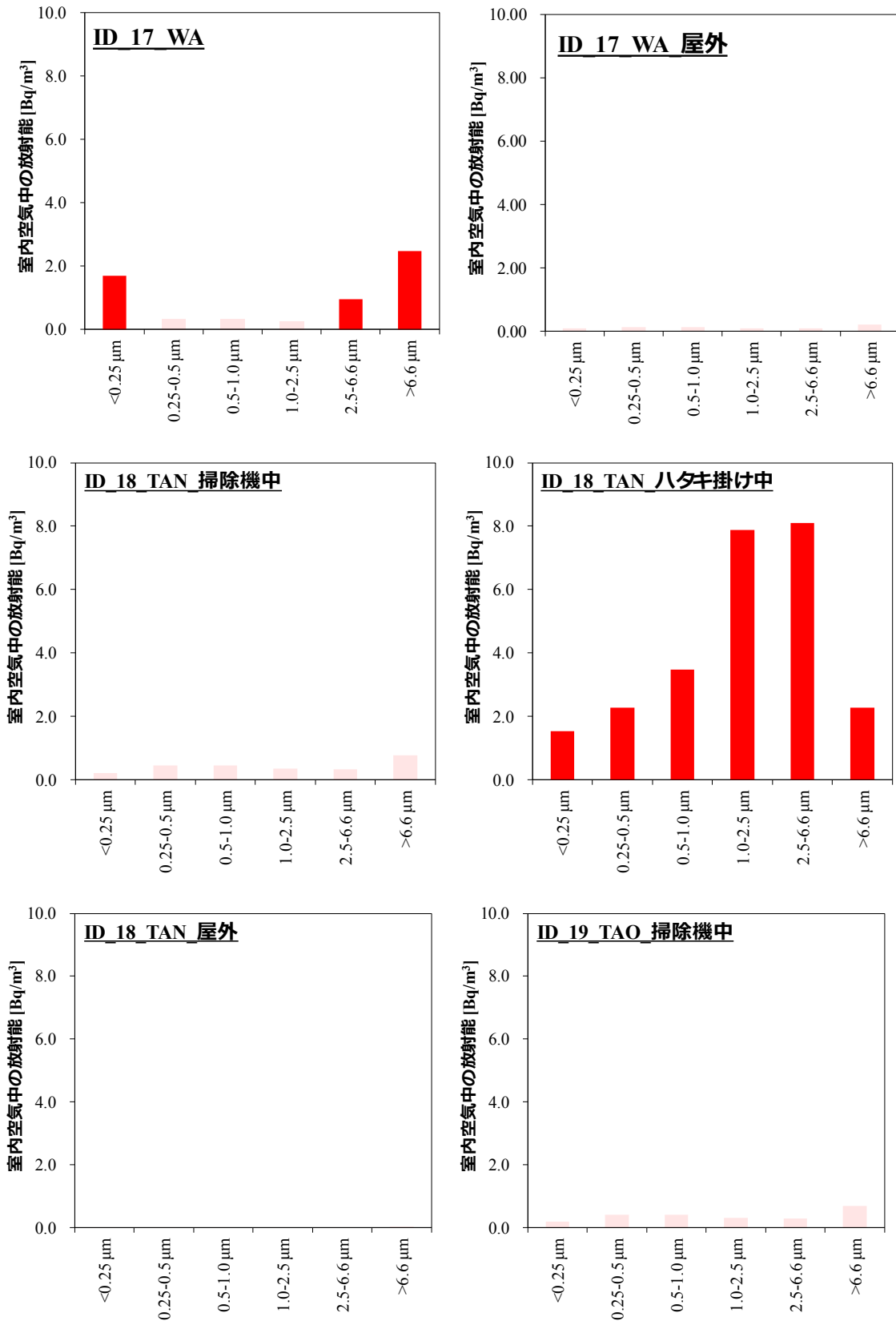


図4 (続き). 各住家のエアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度. 検出限界以下の試料について、検出限界値の 1/2 の値を薄桃色で描画した.

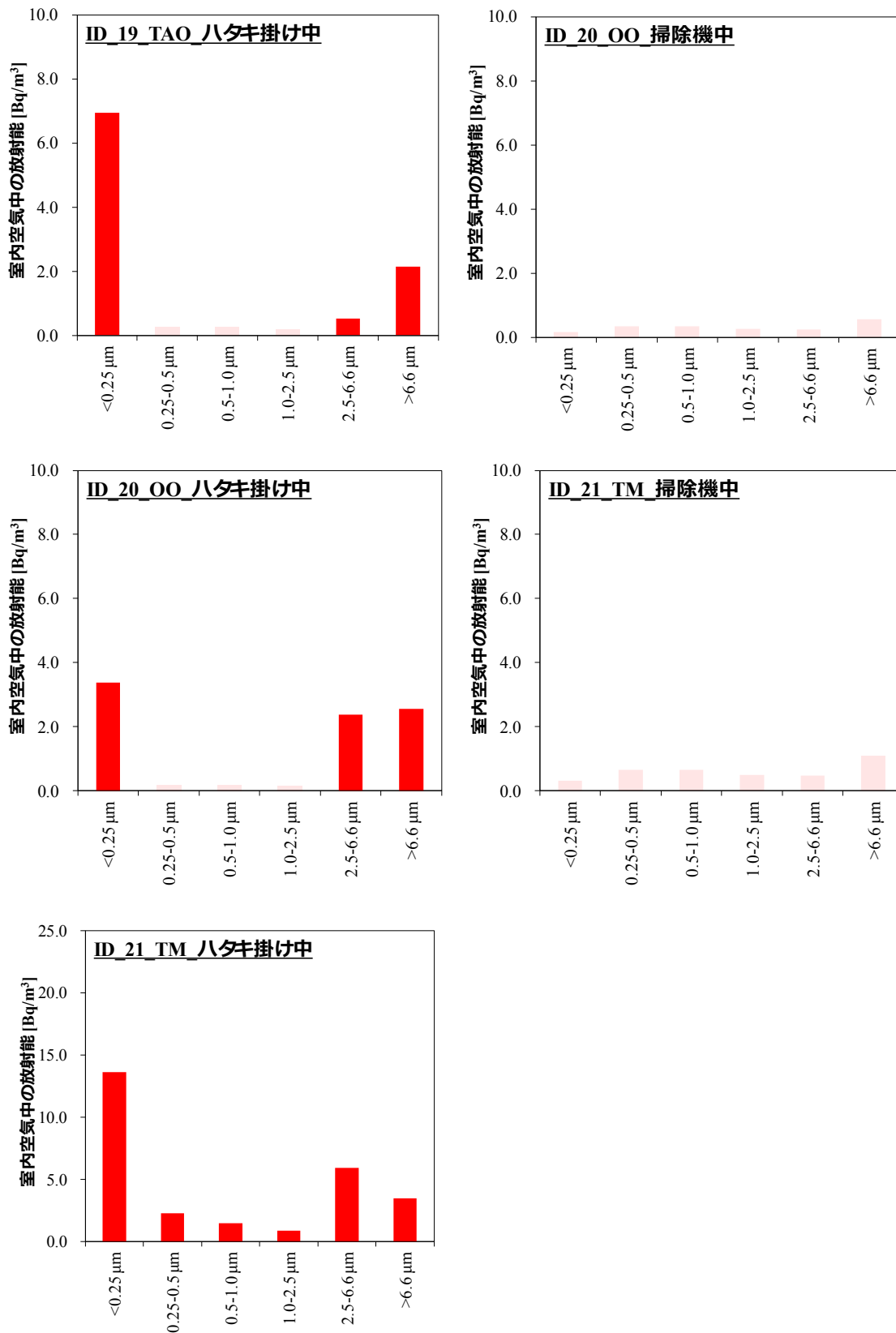


図4 (続き). 各住家のエアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度. 検出限界以下の試料について、検出限界値の 1/2 の値を薄桃色で描画した.

表4. エアロゾルの粒径ごとの室内空气中放射性 Cs 濃度 (平均 ± SD). ただし検出限界以下の試料は、検出限界の 1/2 として計算した.

	エアロゾル粒径ごとの 室内空气中放射性Cs濃度 [Bq/m ³] (平均±SD)
<0.25 μm	0.77 ± 1.3
0.25-0.5 μm	0.18 ± 0.18
0.5-1.0 μm	0.32 ± 0.53
1.0-2.5 μm	0.65 ± 0.89
2.5-6.6 μm	1.8 ± 1.8
>6.6 μm	0.99 ± 0.98

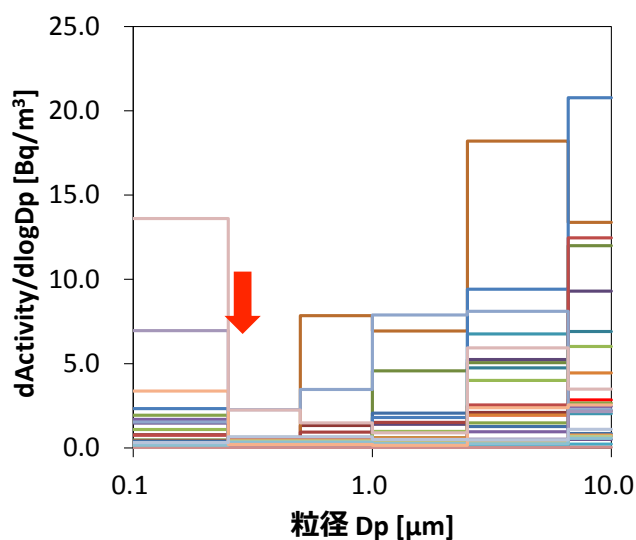


図5. 各粒径範囲のエアロゾルで測定された放射性 Cs 濃度を粒径範囲の対数値で割って規格化した粒径分布. エアロゾル中の放射性 Cs 濃度は、0.25 μm 以下~0.5 μm (図中赤矢印) が谷となる粒径分布になっている.

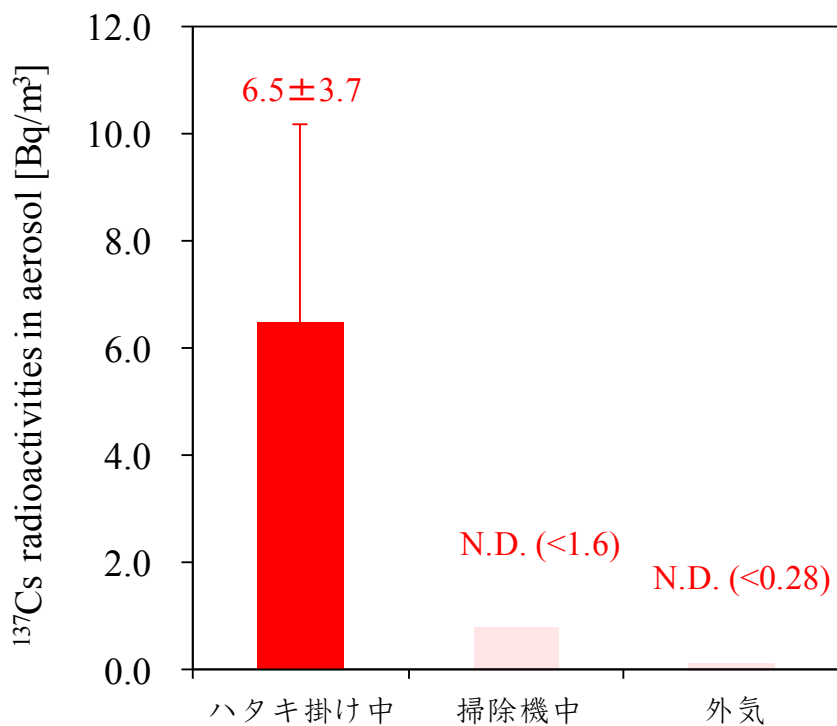


図6. ハタキ掛け・掃き掃除中、掃除機掛け中（サイクロン掃除機を使用）、外気のアエアロゾル中の放射性Cs濃度.

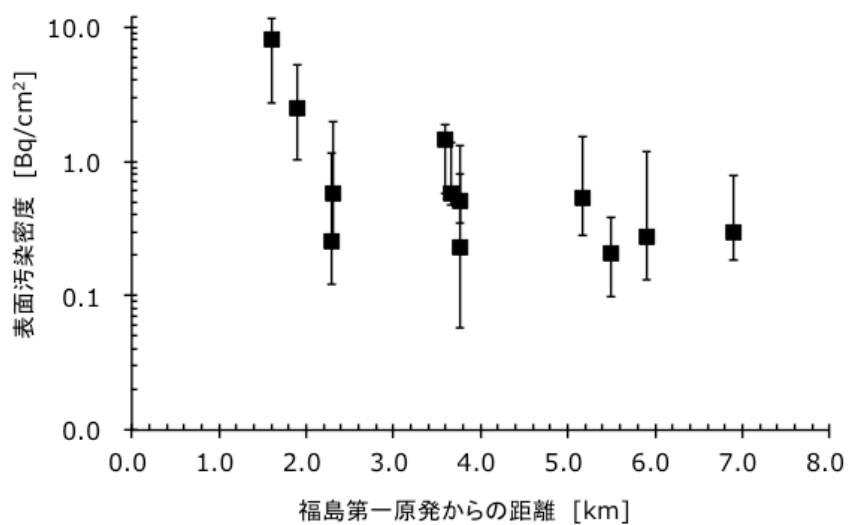


図7. 表面汚染密度と福島第一原発からの距離
表面汚染密度は各住家の中央値■を四分位範囲とともに示す。

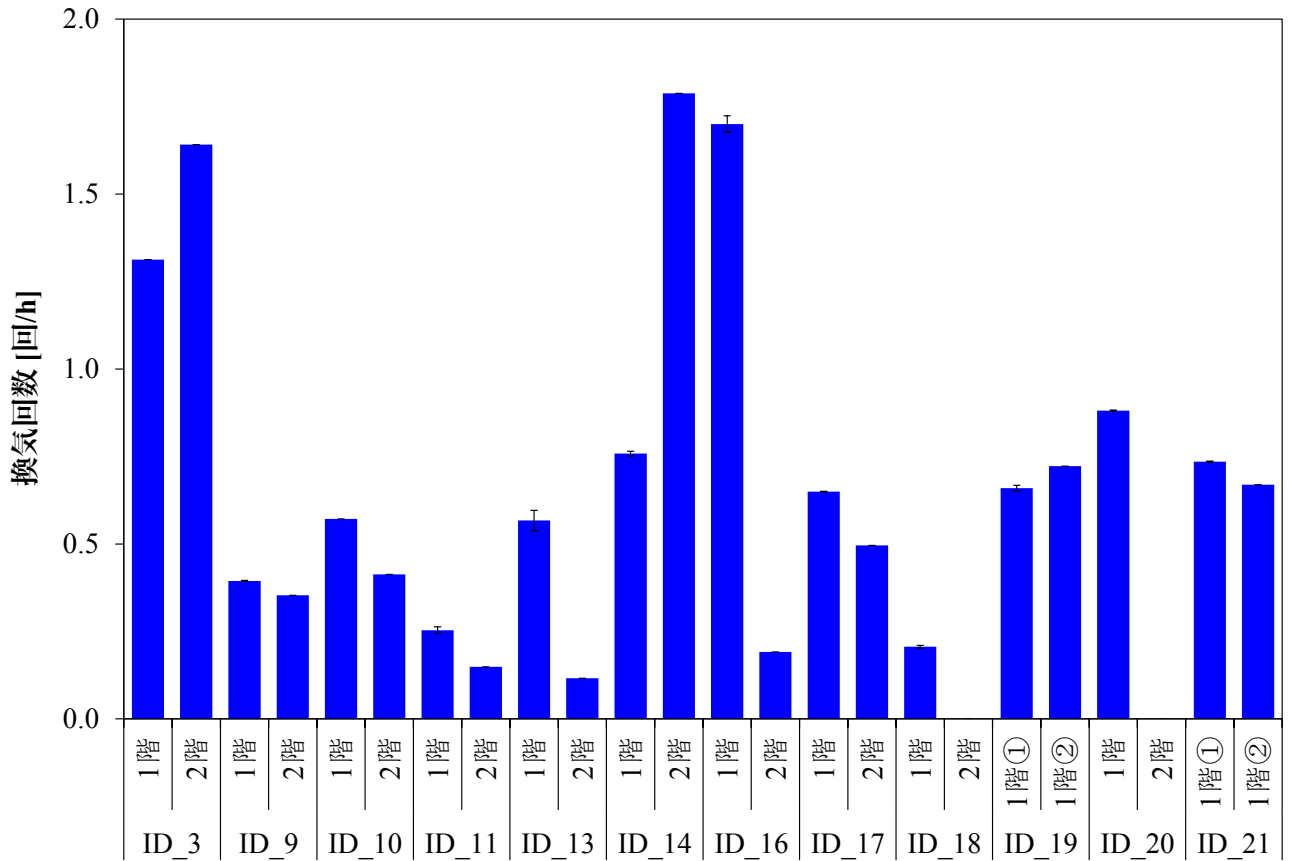


図8. 今回測定した住家の換気回数.

IV 考察 (構成:結果の考察・評価)

ハウスダストでは、粒径が小さいほどダスト重量当たりの放射性 Cs 値が高くなる傾向があった。土壌³⁾や河川水⁴⁾、河川底質^{5,6)}に含まれる Cs 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だった。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。ダスト重量当たりの放射性 Cs 値は、家ごとに大きく異なっていたが、福島第一原子力発電所からの単純な距離との相関は見られず、今後、方角や立地条件等も合わせて解析することが必要と考えられる。ハウスダスト中の放射性 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比の平均は 1.00~1.04 であった。福島第一原発から北側に通過した放射性プルームの放射性 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は平均 0.95 で、西側や南側に流れた放射性プルームの $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は平均 1.05~1.06 だったという報告⁷⁾や、1号炉由来 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比 0.941⁸⁾、0.89~0.93⁹⁾) と 2・3号炉由来 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比 1.082・1.046⁸⁾、0.96~1.05・0.97~1.04⁹⁾) で $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比に違いがあるという報告を考え合わせると、1号機由来と2・3号機由来の放射性 Cs がどちらも室内に存在していることが示唆される。原子力発電所近傍の環境サンプルの $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比は 0.98~1.01 で、1・2・3号機全ての影響を受けていたという報告もある⁹⁾。住家間の違いについては、方角や距離などと併せて、今後より詳細な解析が必要である。ハウスダスト中の放射性 Cs では水溶性成分は 20%以下と小さかった。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と考えられる。福島の樹木を燃やした灰に対して 25°C で 10 倍量の水で 10 分溶出

した場合でも、90%以上が溶出したという報告¹⁰⁾があるが、これは樹木の取込みの際に水溶性のCsを取り込んだことによる違いと考えられる。固体廃棄物の焼却灰中のCsは溶けるが、下水汚泥の焼却灰中のCsは溶けず、その形態がCsClかポルサイトかによって溶解性が異なるという報告¹¹⁾がある。土壌では、粘土鉱物に吸着したCsは0.2%~0.3%程度しか水に溶出しないとされており¹²⁾、本調査のハウスダスト中の水溶性Csの割合よりかなり低い。一方、エアロゾル中のCsの水溶性画分は、48% (2011年3月14-15日) ~89% (2011年3月23-24日) とされており¹³⁾、本調査のハウスダスト中の水溶性Csの割合よりかなり高い。

エアロゾルは、 $<0.25\ \mu\text{m}$ と $>1\ \mu\text{m}$ の粒径で放射性Csが検出されやすい傾向がみられた。2011年4-5月につくばに飛来したエアロゾル中の放射性Csは $0.53\sim 0.54\ \mu\text{m}$ 及び $0.63\ \mu\text{m}$ の粒径のものが主であり、硫酸エアロゾルにCsが吸着して飛来したとされている¹⁴⁾。放射性プルームが通過した際に屋内に沈着した放射性Csも同じ粒径であったと考えられるが、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。Anderssonらはインジウムで標識した $0.7\ \mu\text{m}$ の粒子をアクリルカーペットを敷いた室内に放出し、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¹⁵⁾。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。しかし、一方で $<0.25\ \mu\text{m}$ で放射性Csの検出率が比較的高い傾向も観察されている(図5)。Thatcherらは $1\ \mu\text{m}$ より小さい粒子は掃除機がけや人間の歩行など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¹⁶⁾。本調査の傾向はこの結果と相反しているが、粒径が小さいほど重量当たりの表面積が大きくなり放射性Csの吸着量が増える効果や、粒径が小さいほど重量濃度は少なくなることの効果の兼ね合わせも影響していると考えられる。本件に関しては、今後さらに検討を重ねる。

室内のハウスダストはサイクロン式の掃除機をかけるだけでは舞い上がり量は小さく、サイクロン式の掃除機を掛けている間のエアロゾル中の放射性Csは検出限界以下だった。一方、ハタキ掛けや掃き掃除をすると、ハウスダストが巻き上がり、エアロゾル中の放射性Cs濃度が高くなった。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。

掃除によって舞い上がる量は表面汚染密度と相関しないことが示された。表面汚染密度はスミアで拭き取るため屋内に乾性沈着した量を示すと考えられるが、舞い上がった量は粒径による舞い上がりのしやすさ及び時間経過による粒径変化による舞い上がりしやすさの変化など様々な要因の影響を受けていることが示唆された。また、事故前に屋内に元々あったダスト量によって沈着した放射性Csの希釈度合いも異なることも大きく影響すると考えられる。

今回調査した住家の平均換気回数は、0.69回/hだった。開閉の少ない秋・冬の関東地方の一般住家での換気回数(0.58、0.61回/h; N=26)¹⁷⁾や東北地方の住家の換気回数(0.54回/h; N=34)¹⁸⁾と同程度であり、一部の大きく損傷した住家以外は、一般の住家と変わらない状態だったと考えられる。

V 結論

ハウスダスト重量当たりの放射性Csは、粒径が小さいほど高かった。また、ハウスダスト接触時に少なくとも50%程度は口腔及び胃腸管で溶解されないことが示唆された。エアロゾル中の放射性Csは、 $0.25\ \mu\text{m}\sim 0.5\ \mu\text{m}$ が谷となる粒径分布となった。サイクロン式の掃除機掛けに

よるダストの舞い上がりは非常に少なく、ハタキ掛けや掃き掃除によってダストが舞い上げられることが分かった。住家ごとの表面汚染密度は福島第一原発からの距離とゆるやかな相関関係を示していたが、ダスト重量当たりの放射性 Cs と福島第一原発からの距離に相関は観察されなかった。また、掃除によって舞い上がる Cs 量は表面汚染密度と相関しないことがわかった。

VI 次年度以降の計画

来年度も 20 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を行うとともにスミア法による表面汚染密度、換気率の測定等を継続して行う。調査住家の選定にあたっては、本年と同様に原発近傍の住家に加えて比較対象となりうるように少し離れた地域の住家を含める。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、試料採取にあたっては、子供の被ばくを考え、床面から 1 m 高さだけでなく 50 cm の高さでのエアロゾルの捕集も行うこととする。さらに、浪江など避難指示区域が解除される予定の地域においては電気が供給されるためサイクロン式掃除機以外に通常の掃除機を使用した場合の舞い上がりを調査する。今年度の結果を踏まえて、粒径別の気道・肺への沈着率を用いて吸入経路による被ばく線量及び手に付着したダストの摂食による経口経路による内部被ばく線量の推定を行う。調査計画全般において、住民の帰還に際し、住家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方法を組み込む。

この研究に関する現在までの研究状況、業績
なし

参考文献

- 1) Yoshida-Ohuchi H, Kanagami T, Satoh Y et al. Indoor radiocaesium contamination in residential houses within evacuation areas after the Fukushima nuclear accident Sci. Rep. 2016; 6, 26412:1-10.
- 2) 日本工業規格 JIS Z 4504 放射性表面汚染の測定方法-β 線放出核種 (最大エネルギー0.15 MeV 以上) 及び α 線放出核種 2008.
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.

- 7) Nishizawa Y Yoshida M Sanada Y et al. Distribution of the Cs-134/Cs-137 ratio around the Fukushima Daiichi nuclear power plant using an unmanned helicopter radiation monitoring system, *J Nuclear Sci Technol in print*; 53: 438-474.
- 8) 西原 健司, 岩元 大樹, 須山 賢也. 福島第一原子力発電所の燃料組成評価. *JAEA-Data/Code* 2012-018. 2012 : 1-190.
- 9) 小森昌史, 小豆川勝見, 野川憲夫, 他. 134Cs/137Cs 放射能比を指標とした福島第一原子力発電所事故に由来する放射性核種の放出原子炉別汚染評価. 2013; 62 : 475-483.
- 10) Parajuli D Tanaka H Hakuta Y et al. Dealing with the Aftermath of Fukushima Daiichi Nuclear Accident: Decontamination of Radioactive Cesium Enriched Ash. *Environ Sci Technol*. 2013; 47: 3800–3806.
- 11) Shiota K Takaoka M Fujimori T et al. Cesium Speciation in Dust from Municipal Solid Waste and Sewage Sludge Incineration by Synchrotron Radiation Micro-X-ray Analysis. *Anal Chem*. 2015; 87: 11249–11254.
- 12) 日本農学会、東日本大震災からの農林水産業の復興に向けて一被害の認識と理解、復興へのテクニカル リコメンデーションー第 3 章 放射能被害による農林水産業被害 2.汚染の科学的理解 (1) 土壌中のセシウム 2011:18-19.
- 13) Tanaka K Sakaguchi A Kanai Y. Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river systems. *J Radioanal Nucl Chem*. 2013; 295: 1927–1937.
- 14) Kaneyasu N Ohashi H Suzuki F et al. Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. *Environ Sci Technol*. 2012; 46: 5720-5726.
- 15) 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.
- 16) Thatcher T L Layton D W Deposition, resuspension and penetration of particles within a residence. *Atmos. Environ*. 1995; 29: 1487–1497.
- 17) Shinohara N Kataoka T Takamine K et al. Distribution and variability of the 24-h average air exchange rates and interzonal flow rates in 26 Japanese residences over 5 seasons. *Atmos Environ*. 2011; 45: 3548-3552.
- 18) 三原邦彰, 吉野博, 三田村輝章, 他. 居住状態の住宅 34 戸における換気量測定. *日本環境管理学会誌*. 2004; 52: 166-169.

Indoor radiocaesium contamination and evaluation of internal exposure dose

Hiroko YOSHIDA^{*1}, Naohide SHINOHARA^{*2}

**1Tohoku University*

**2National Institute of Advanced Industrial Science and Technology*

Keywords: Indoor environment, radiocaesium, house dust, aerosol, cleaning, internal exposure dose

Abstract

House dust and aerosol were sampled by particle size during indoor cleaning in twenty-one residential houses in two evacuation areas, the towns of Futaba and Okuma within Fukushima (house dust: 4-20 μm , 20-63 μm , 63-180 μm , 180-500 μm , 500 μm -1 mm; aerosol: <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). Radiocaesium (Cs) levels were determined in these house dust and aerosol. Cs levels per gram-house dust increased with decrease in particle size (Mean: 7.1×10^3 , 2.6×10^3 , 1.7×10^3 , 6.7×10^2 , 4.4×10^2 , and 6.0×10^2 Bq/g for 4-20 μm , 20-63 μm , 63-180 μm , 180-500 μm , and 500 μm -1 mm, respectively). Less than 20% and more than 30% of Cs in house dust were dissolved in water and 1N HCl. Solubility of Cs in house dust did not depend on the particle size. Cs levels in aerosol have bimodal particle size distributions where bottom exists in a region of 0.25 to 0.50 μm particle size (Mean: 0.77, 0.18, 0.32, 0.65, 1.8, and 0.99 for <0.25 μm , 0.25-0.5 μm , 0.5-1.0 μm , 1.0-2.5 μm , 2.5-6.6 μm , and >6.6 μm , respectively). House dust containing Cs were rarely resuspended during vacuuming, while house dust containing Cs were resuspended during dusting and sweeping. There was no relationship between Cs levels per gram-house dust and distance from the Fukushima Daiichi nuclear power plant (FDNPP), while there was a loose correlation between surface contamination and distance from the FDNPP. There was no relationship between the radioactivities of resuspended Cs during cleaning and surface contamination, either.

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・歯学研究科長）

研究要旨

放射性ストロンチウムやセシウムは、歯の形成期に歯質中に取り込まれ、そのまま歯質中に保持される。したがって歯に取り込まれた放射性物質の濃度は、歯が形成される時期の内部被ばく状況を忠実に反映していると考えられる。また、放射線被ばくにより、被ばく量に比例して歯質中には炭酸ラジカルが発生し、そのラジカルも半永久的に歯質中に保持される。したがって、そのラジカル量を測定することにより、歯から外部被ばく量を推定できる可能性もある。本研究は歯の持つ非代謝性・記録性に着目し、歯質中の放射性物質やラジカルを測定することにより、歯から個体の被ばく歴や被ばく量を把握しようとする新しい試みである。

本年度においては、前年度に引き続き福島県を中心に全国各地より 5,000 本を超える乳歯を収集し、バンク化した。それら乳歯のうち、3,600 本について、歯質中に存在する放射性物質の量をイメージングプレートによりスクリーニングした。本年度までに収集した乳歯はいずれも福島第一原発事故が発生する以前に形成された乳歯で、次年度以降に本格的収集が可能となる乳歯（原発事故以降の環境下で形成された歯）のコントロールとなる歯である。乳歯中の放射性物質の量は、福島県と他県の間で現時点では差は認められなかった。また、福島県内の地方別にみても、地域差は認められなかった。歯質中には、測定したすべての歯試料中に過去の大気圏核実験に由来すると思われる ^{90}Sr が検出されたが、その歯質中濃度についても、福島県と他県との間に、また、福島県内の主要都市間で差は認められなかった。これらの結果は次年度以降に収集される乳歯を評価する際の基準値となるもので、重要な基礎データである。

歯質中のラジカルの測定は、ESR 法を用いて行うが、これまでに行われてきた IAEA 等のプロトコールに基づく ESR 法では感度が十分でないため（100-200mGy 以上）、今回問題となる低線量・慢性被ばく状況の把握には十分な感度を有していないのが現状である。本研究では、測定ソフトの改良や試料調整法に改良を加え、その感度を 20-30mGy 以下まで測定可能な技術を確立した。

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、
イメージングプレート、電子スピン共鳴法（ESR 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）

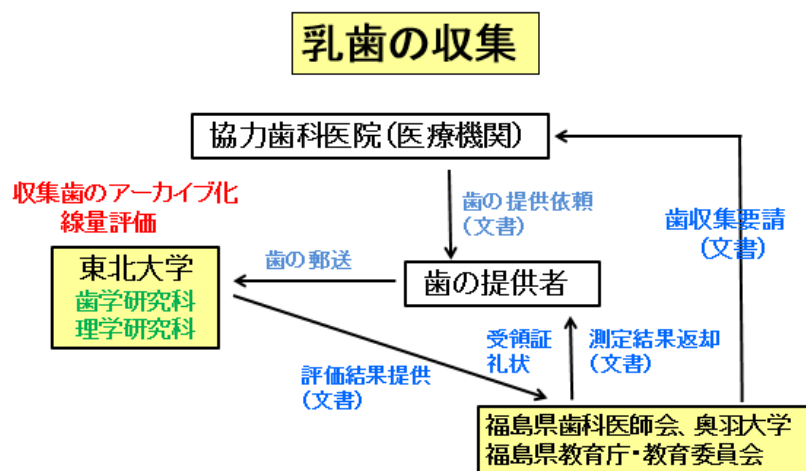
I. 研究目的

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児を中心に、永久歯列への交換過程で脱落する乳歯や、歯科治療により抜去される歯を収集し、それらの歯に蓄積した放射性物質を物理化学的・生物学的に評価することにより、歯を用いて被ばく量や被ばく歴を個体ごとに推測し、原子力発電所災害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

[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、沖縄県が中心）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、一昨年、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下図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]（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

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（富士フイルム社製）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 $0\sim 400\text{mBq}/\text{cm}^2$ (厚さ 3mm) 含む KCL 基準尺を作成し、 ^{40}K 濃度と得られた QL 値の間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バラツキを補正した。

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は、収集したすべての乳歯について実施予定であるが、今年度は、収集した 5,000 本を超える乳歯のうち、平成 26 年度から平成 28 年度前半までに収集した 3,600 本を分析対象とした。さらにそれら 3,600 本のうち、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除外し、かつ唇面 (IP への接着面) が健全であった、およそ 2,700 本の乳歯を中心に詳しい分析を行った。

(2) 歯質中 ^{90}Sr の測定とゲルマニウム半導体検出器による γ 線放出核種の測定

3.11 以前に形成された一部の乳歯について地域別に 3-4 本の乳歯をまとめて 1 サンプルとし、それらの中の ^{90}Sr の測定を行った。 ^{90}Sr の測定は歯粉末を灰化した後、発煙硝酸法により、Sr を化学分離し、低バックグラウンドガスフロー GM 管により β 線を測定した (測定法の詳細については Koarai K, et al, Sci Rep 2016; 6:24077 に記載 (文献¹))。乳歯中の γ 線放出核種の測定は、歯を粉砕することなく 1 本ごと、あるいは複数個まとめて試料管の中に入れ、低バックグラウンド環境下に設置した高感度ゲルマニウム半導体検出器により測定した。

(3) 歯から内部被ばく量を推定するモデルの確立 (^{90}Sr 吸収線量の推定)

当面の対象核種を ^{90}Sr に限定し、歯から、内部被ばく量推定の基礎となる吸収線量 (Gy) を算出するための方法論の確立を目指した。具体的には、①歯質中の Sr 安定同位体濃度と ^{90}Sr 濃度を測定し、歯での比放射能値 ($^{90}\text{Sr}/\text{Sr}$) を求める、②歯質中と骨組織中 Sr 安定同位体濃度の関係を求める (歯質中 Sr 濃度と骨組織中 Sr 濃度との関係は被災動物での実測値から明らかにする。ヒトについては文献値からも推測可能)、④歯から得られた比放射能値を骨組織にあてはめ、骨組織中 ^{90}Sr 量 (Sr の 99% は骨組織中に存在する) を推定し、この値から理論的な吸収線量 (骨髄組織被ばく量) (Gy) を算出する (文献²) という手順により推定モデルの確立を目指した。本研究班では、福島県相双地区の山中において被ばくし、捕獲された野生ニホンザルの標本を数多く保持しているが、それらの中で、歯を含むすべての全身骨格を有している 5 頭の試料を用い、上記方法論の妥当性について検証する作業を開始した。

[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、最近の報告によっても信頼性のある検出限界値は 220 mGy 以上と高く (文献³)、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。今年度においては、従来の検出限界値を 50mGy 以下にまで下げること为目标とし、X-band 法により、方法論の改良に取り組んだ。ラジカルの測定には日本電子社製 ESR 装置 RE-2X を用いた。また、 γ 線照射には Co 線源を用い、100mGy 以下の低線量領域を中心に乳歯エナメル質サンプルに照射を行い、歯質中に発生する炭酸ラジカル量と照射線量

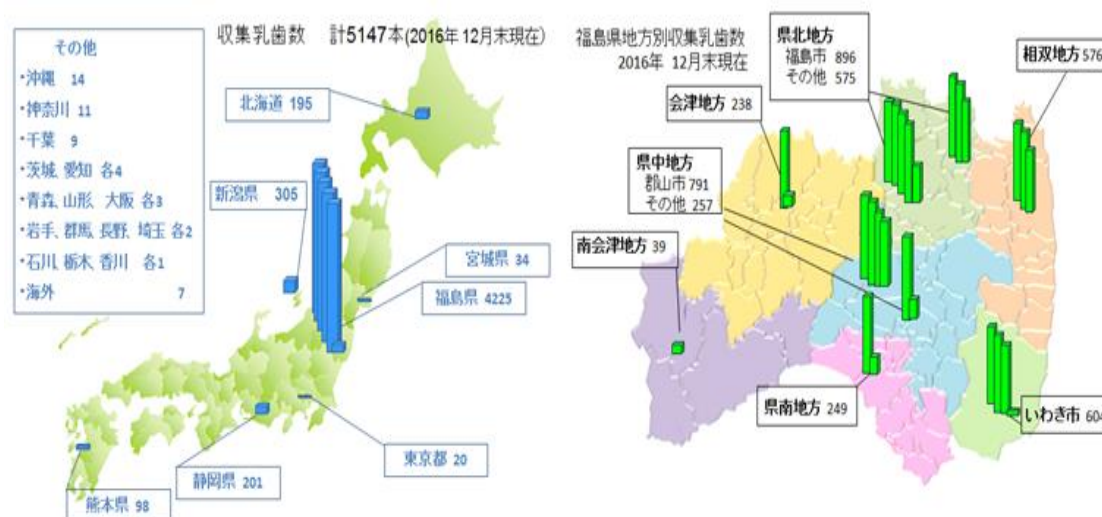
との関係式を求めた（検量線の描記）。

（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、すべてについて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可能匿名化し、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。

III. 研究結果



[ヒト乳歯の収集とアーカイブ化]

平成28年12月末の時点において、福島県を含め、全国から5,147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4,225本であった。上図にその結果を示す。

これらの歯は下記に示したような手順に従い、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 年度から平成 28 年度前半までに収集した 3,600 本の乳歯のうち、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 2,702 本の乳歯を中心に分析を行った。

本年度は、福島県と他県から収集した乳歯の放射線量に違いがあるか、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 5 歳半～6 歳時にはじまるので、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1

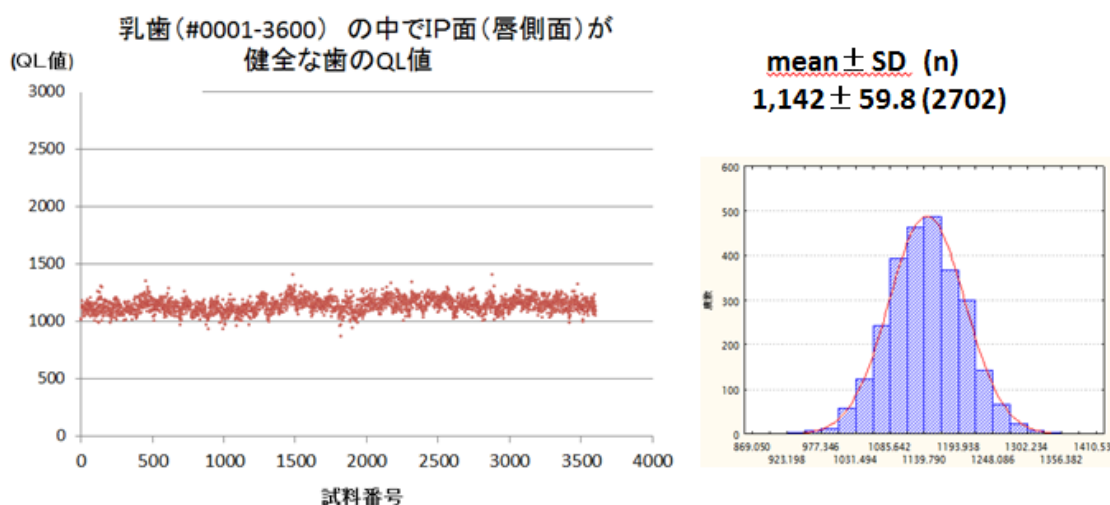
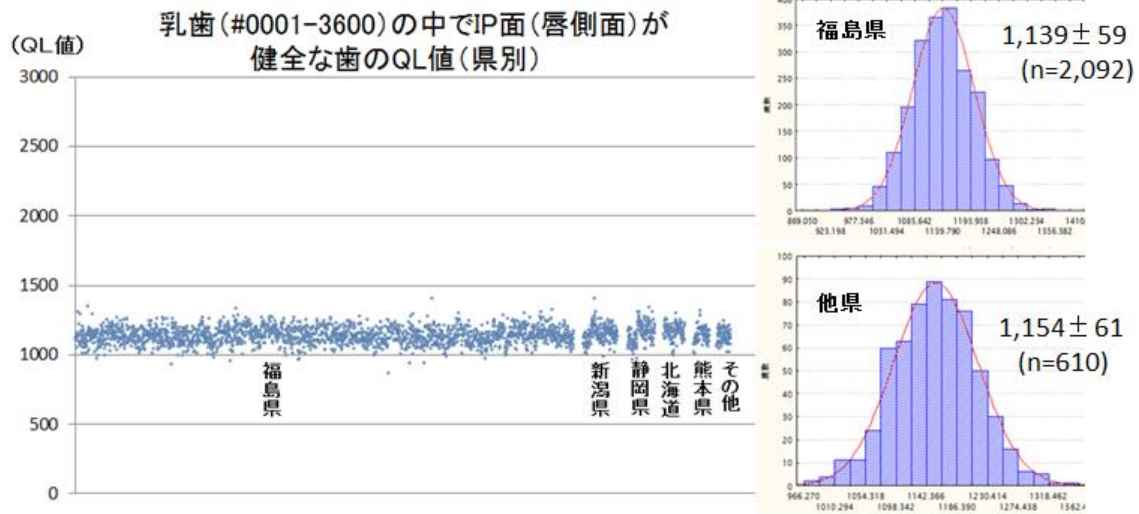


図 1 には福島県内からの乳歯の QL 値と福島県以外の各県からの乳歯、計 2,702 本の QL 値をすべてプロットした生データが示してある。また福島県内と福島県外の乳歯の平均値と標準偏差およびその分布様式については図 2 に示してある。福島県と福島県以外の県（新潟県、静岡県、北海道、熊本県、その他）の乳歯 QL 値には特に差は認められなかった。

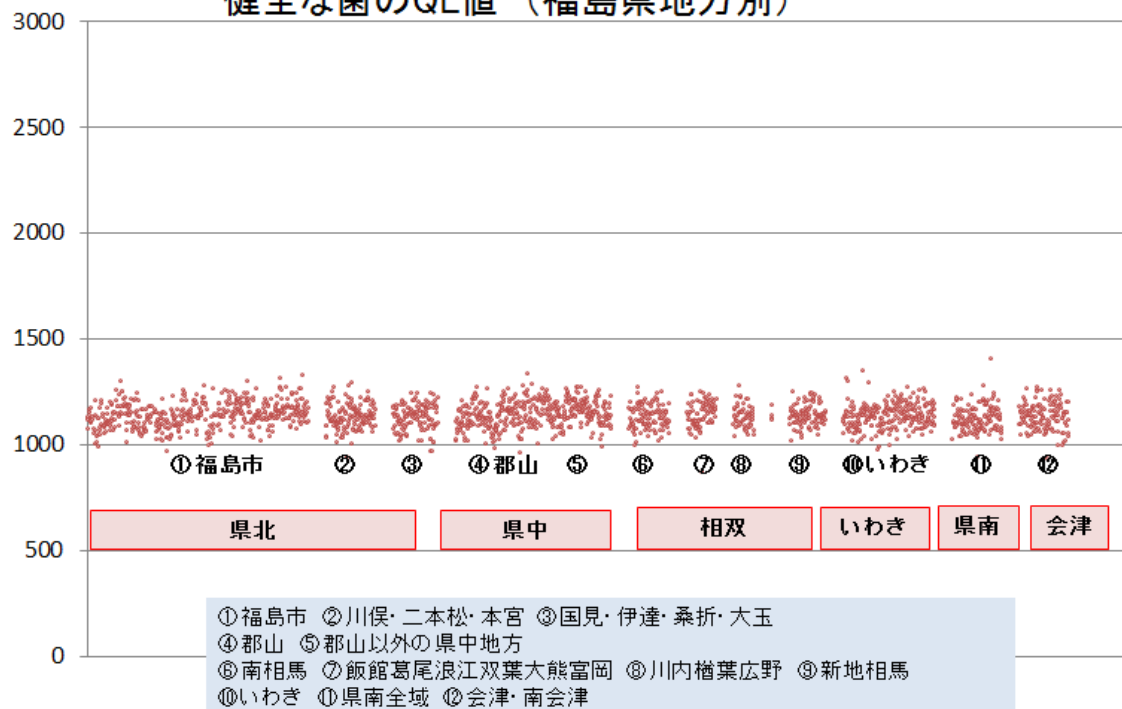
さらに、福島県内の乳歯について、その地域差について検討したのが図 3 である。県内の 6 つの地域についても特に地域差は認められなかった。

図 2



乳歯(#0001-3600)の中でIP面(唇側面)が健全な歯のQL値(福島県地方別)

図 3



(2) 歯質中 ^{90}Sr の測定とゲルマニウム半導体検出器による γ 線放出核種の測定

3. 11 以前に形成された一部の乳歯について地域別に 3-4 本の乳歯をまとめて 1 サンプルとし、それら試料中の ^{90}Sr 濃度の測定を行った。その結果を下の表に示す。

地域	Sr-90 濃度 (mBq/g-ash)	Sr-90 濃度 (mBq/g Ca)	回収率 (%)
福島市	0.61±0.17	1.87 ± 0.51	91.3
郡山市	0.60±0.16	1.61 ± 0.44	88.6
いわき市	0.54±0.18	*	86.8
新潟県	0.82±0.17	2.60 ± 0.54	94.3
静岡県	0.74±0.18	2.24 ± 0.54	98.6
北海道	0.63±0.17	1.89 ± 0.53	83.4
熊本県	0.61±0.14	1.76 ± 0.41	99.7

(いずれも平均値±計数誤差を示す)

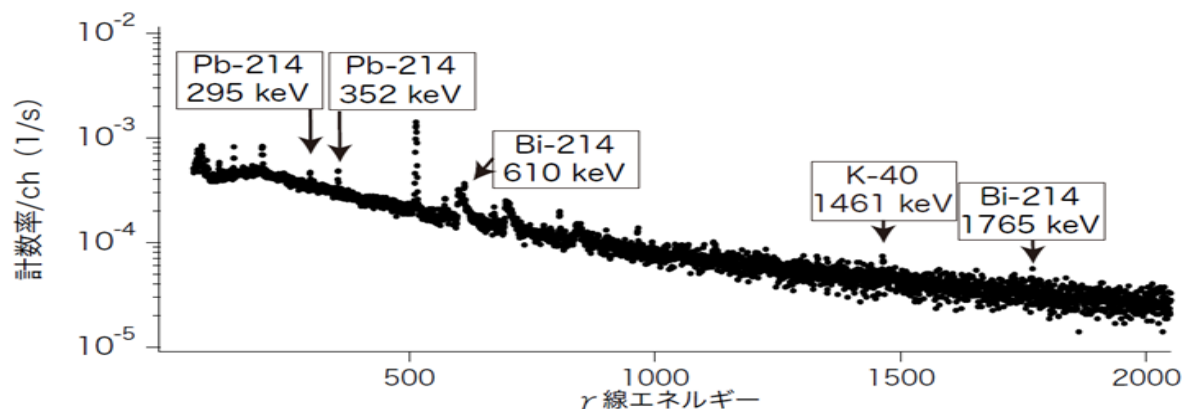
(* :測定中の事故によりデータ欠損)

2 g の歯粉末を用い、Sr 化学分離の回収率を 93% (乳歯測定時の平均回収率) としたとき、検出限界値は 24 時間測定の場合、0.460 mBq/g-ash であったので、乳歯で得られた値はすべてその測定限界値以上であった。 ^{90}Sr は福島県内の歯にも福島県外の乳歯にも同程度に認められた。測定した試料はいずれも原発事故以前に形成されていること、また、県外、県内の歯に等しく認められることから、今回の原発事故には関係していないと考えることができる。これら ^{90}Sr の由来として考えられるのは、過去の大気中核実験による fall out で、日本各地の土壌や動物の硬組織中には現在も ^{90}Sr の存在が報告されている (文献⁴)。なお、ここで得られている歯質中の ^{90}Sr 濃度は、スイスの子供の乳歯についてチェルノブイリ原発事故直前に報告されている値 (およそ 40-50mBq/g-Ca) (文献⁵) と比べ 20 倍以上低く健康への影響が懸念されるレベルとは考え難い。

高感度ゲルマニウム半導体検出器により、コントロール乳歯 50 本をまとめ、 γ 線放出核種についての測定を行った (測定時間 71 万秒)。その結果、 $14.4 \pm 1.1 \text{ mBq/g}$ の ^{214}Pb (^{226}Ra) が認められた。また、自然環境中に存在する ^{40}K は 8 mBq/g の検出限界値 (バックグラウンドの平均カウン

コントロール乳歯の γ 線スペクトル

図 4



ト数に3標準偏差を加えた値)以下であった。また、原発事故関連の γ 線放出核種として現在も環境中に存在する ^{137}Cs や ^{134}Cs はコントロール乳歯からは検出されなかった。さらに、極低バックグラウンドのゲルマニウム半導体検出器(NaI検出器)を用いて、2本のコントロール乳歯を選び、その1本1本について1サンプル100万秒の測定時間を設定し、より詳細な γ 線放出核種の測定を行った。両方の歯から $^{214}\text{Pb}(^{226}\text{Ra})$ ($13.5\pm 3.5\text{mBq/g}$ および $4.0\pm 2.3\text{mBq/g}$)が検出され、他の1本の歯からは $40.0\pm 29\text{mBq/g}$ の ^{40}K が検出された。これらの測定結果より、歯の中にはウラン壊変系列の娘核種が存在し、また乳歯中には微量の ^{40}K も存在する可能性が示された。極低バックグラウンドのゲルマニウム半導体検出器(NaI検出器)を用いた検討によっても、 ^{137}Cs や ^{134}Cs は検出されなかった。図4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例を示す。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値を示す歯が出てきた場合には、このような γ スペクトルを比較対照として用い、検討することになる。

(3) 歯から内部被ばく量を推定するモデルの確立(^{90}Sr 吸収線量の推定)

骨は絶えず新しい骨を形成し、他方において形成された骨と同じ量の古い骨を吸収するため(壊すため)骨量は絶えず一定に維持される(骨代謝、骨のリモデリング)。食物等を介して体内に入ったSrは、骨が形成される時に骨の中に取り込まれ、その骨が吸収される時期まで骨中に留まる。環境がある程度恒常であれば、形成時に取り込まれるSrの量(骨に供給されるSr量)は、ほぼ一定となり、すべての古い骨が新しい骨に置き換わった時点で、骨中濃度は一定となる。一方、歯は骨とは異なり、吸収の過程が無いため、形成期に取り込まれたSrは、歯が何らかの理由により失われるまで、歯質中にそのまま保持される。歯に取り込まれるSrも骨に取り込まれるSrも血行を介して(体内に吸収されたSr量に比例して)それぞれの組織に移行するので、形成期に歯の中に取り込まれた ^{90}Sr の量と骨の中の ^{90}Sr 量は一定の比例関係にあると仮定することができる。

本研究では、この歯と骨のSr濃度の関係を確かめるため、事故前後に生まれた旧警戒区域内での野生ニホンザル(南相馬市、浪江町山中)や野生化したウシ(川内村、大熊町)について、歯と骨中の比放射能値($^{90}\text{Sr}/\text{Sr}$)を測定し、歯から骨の ^{90}Sr 濃度を推定するモデルを構築し検証を行っている。同時に、推定した骨中 ^{90}Sr 濃度から、内部被ばく量(骨髄推定被ばく量)を算出することも目指している。なお、現時点では骨中 ^{90}Sr のみの寄与を考え、臓器中 ^{137}Cs 等からの被ばくは別途評価する予定である。ここでは、南相馬市山中で被ばくした野生ニホンザル1検体について、骨中 ^{90}Sr 濃度($62\pm 11\text{mBq/g}$)から、骨髄被ばく線量の算出を試みた例を示す。今回は、文献から引用した、図5に示すようなヒト骨髄中での吸収線量算出モデルを用いた。また、モデルを単純化するため、ニホンザルが一定の汚染環境にあったと仮定し、このニホンザルが2.5年間被ばくした場合の骨髄被ばく線量を $0.15\pm 0.03\text{mGy}$ であると推定した。

本研究では、歯の中の ^{90}Sr 濃度と骨の中の ^{90}Sr 濃度との関係を、3.11以降に生まれ、比較的安定した一定の環境に棲息していたと推定される被ばくニホンザルを用い、歯と骨の中の ^{90}Sr 濃度の関係を明らかにすることから研究を始めている。一方、歯は歯種ごとに成長期における形成時期が決まっている。従って、3.11前後に歯列が形成された個体について、3.11からの経過時間に伴い、歯の中の ^{90}Sr と骨の中の ^{90}Sr の関係がどのように変化するかについてのデータを得ることができれば、ある歯が形成される時期にどの程度の骨髄被ばくがあったかについて、歯の中の ^{90}Sr 濃度の測定から推測できる可能性がある。歯には汚染状況が時間情報とともに記録されている。

今後、検体数を増やし、それぞれの個体について歯種毎に測定を行うことにより、時間軸に沿って、歯から内部被ばく状況を推定する解析法の確立を進める予定である。

骨髓線量の推定

図5

ICRP Pub 30引用の文献^[8]より

プラググレイの空洞原理による骨髓内での吸収線量率

骨に囲まれた無限大の球形の骨髓を仮定した場合

$$D_0 = \frac{N_m \bar{E}_\beta}{\rho_m} = 0.512 \times \frac{f C \bar{E}_\beta}{\rho_m} \text{ (Gy/day)}$$

D_0 : 吸収線量率

N_m : 骨内単位重量あたりのβ線の粒子数

f : 壊変に伴うβ線の粒子数

C : 放射能濃度 (μCi/g)

\bar{E}_β : 平均β線エネルギー (MeV)

ρ_m : 骨と骨髓の飛程の比≈密度比 = 1.75

推定条件

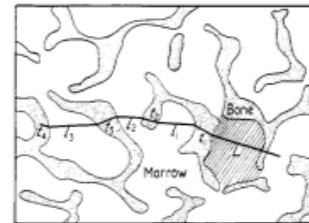
- 骨内平均Sr-90放射能濃度: 61.5 ± 11.3 mBq/g

(誤差は歯の変動幅より)

- 永続平衡時の放射能: Sr-90 = Y-90

- 骨髓線量 D_m への換算係数=0.3(ヒトの場合)

採取したサルが2.5年間被ばくした場合



0.15 ± 0.03 mGy

[8] J. R. WHITWELL et al., *PHYS. MED. BIOL.*, **21**, 16-38 (1976).

29

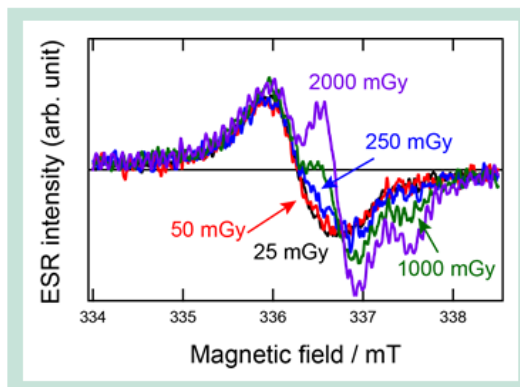
[ESR法を用いた歯質中炭酸ラジカルの測定] (歯を用いた外部被ばく量の推定)

放射線被ばくにより、歯質中には被ばく線量に比例して炭酸ラジカルが発生する(図6)。したがって被ばく線量と炭酸ラジカル量発生をあらかじめ検量線として得ておけば、歯質中の炭酸ラジカル量を測定する(ESRにより測定する)ことにより、この検量線から外部被ばく線量を直接測定することが可能

図6

γ線照射による炭酸ラジカルの増加

である。しかしこれまでIAEA等からの報告に示されているプロトコールでは、検出限界値が高く(測定誤差 1σ は1,000mGyで15%、100mGyで65%(文献6))、急性大量被ばく時のような高線量被ばく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

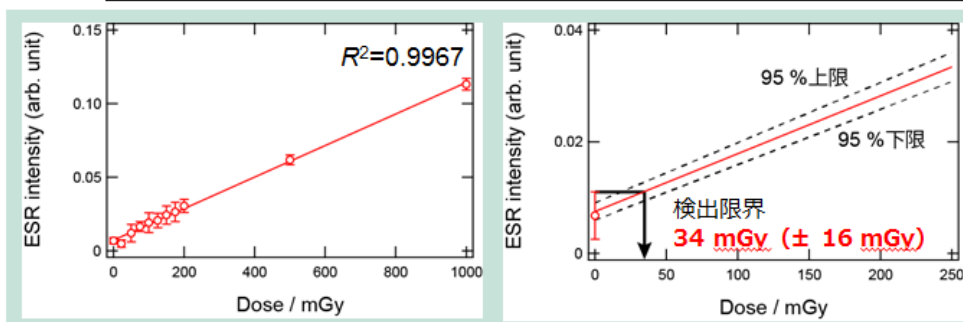


線量が高くなると炭酸ラジカルの強度が増大する

れてきた。ESR 法により検出し得る限界値は 220 mGy までであり、それ以下の低線量被ばくの測定には十分な感度を有していないとの報告もある (文献³⁾)。我々は、本事業での研究に至る以前から歯による ESR 測定の国際比較実施者である Wieser 博士 (ドイツ) や ESR スペクトル分離ソフト開発者の Ivanov 博士 (ロシア) 等の協力を得るなどして、多数のエナメル質サンプルを用いて ESR 測定の感度上昇に取り組んできた。具体的には、ESR スペクトルから炭酸ラジカル強度を抽出するために最も有効とされる EPR-Dosimetry プログラムをソフトの開発者から直接入手し、特に、これまでほとんど検討されてこなかった 200 mGy 以下の低線量領域に焦点を絞り、試料に 25 mGy という低線量照射をくり返しながらか検量線の作成に取り組んだ。ESR スペクトルには、炭酸ラジカルと有機ラジカルのほか、ベースラインの変動、ヒドロキシアパタイトに由来する成分、バックグラウンドとなり得るシグナル 2 種等、合計 6 種類のスペクトルが含まれており、これらの強度比を変えながら、得られた ESR スペクトルを最もよく再現するように強度比を最適化する作業を行うが、EPR-Dosimetry プログラムの導入により、この最適化作業をより効率よく的確に行う事が可能となっている。この方法を用いると、得られた ESR スペクトルの形状やスペクトル同士の差し引きで炭酸ラジカルを抽出する以前の方法 (文献^{3, 7)}) に比べ、より精確に炭酸ラジカルのスペクトルを抽出することが可能となった。その結果、低線量照射で生成するごくわずかな炭酸ラジカルを検出することができ、ESR の検出限界値を大幅に引き下げることができるようになっている。

図 7

ヒト乳歯中の炭酸ラジカルの検量線および検出限界



- ・ 0 mGy (未照射) まで直線性が得られた
- ・ 多重比較検定により 50 mGy から有意差があることがわかった

厳しい条件 (1.96 σ) の下でも・・・

大幅に従来の検出限界を更新

- ・ Polyakov [1] : 44 mGy (信頼して検出できるのは 220 mGy)
- ・ El-Faramawy [2] : 21 mGy (100 mGy 以下の低線量については検証されていない)

検出限界をさらに低くすることも可能

[1] V. Polyakov *et al.*, *Radiat. Meas.*, **24** (1995) 249. [2] N. El-Faramawy *et al.*, *Radiat. Environ. Biophys.*, **44** (2006) 273.

図 7 の左図には、77 検体のヒト乳歯エナメル質サンプルを用いて、コバルト線源より照射した γ 線線量と、エナメル質中に発生した炭酸ラジカル量 (ESR intensity) の関係を求めた検量線である (各 dose, $n=7$)。 $R^2: 0.9967$ という高い直線性が確保されており、この直線式から、理論的には 10mGy, 5mGy 以下の線量の測定も可能といえる。しかし測定値には一定のバラツキが存在し、これを考慮した場合には、最も厳しく見積もった検出限界値は 34mGy となった (図 7、右図)。しかし最も厳しく見積もったこの値を検出限界値としたとしても、従来の ESR 法の感度を 10 倍近

く更新しており、我々の測定技術は国際的にみても最高レベルにあるといえる。我々は、本事業に於いて、ESR サンプルとして用いるエナメル質サンプルの調整法についても重要な改良を加えた。歯からエナメル質サンプルを調整する従来の方法は、手作業による歯からのエナメル質の削り取りであったが^(文献⁸)、この方法は手技の個人差も大きく、切削に時間を要し、多数のサンプルの調整はほとんど不可能に近い状態であった。我々は、歯のエナメル質と象牙質には比重に差があることに着目し、一定粒度に粉碎した歯粉末について、エナメル質と象牙質をメタタングステン酸ナトリウム溶液の中で比重分離（重液分離）する方法を開発した。この方法により、多数の歯から効率よく ESR 用のエナメル質サンプルを調整することが可能となっている。

IV. 考察

本研究の目的は、歯の形成期に歯質中に取り込まれ蓄積する放射性物質を測定することにより、これを内部被ばく量の指標として用いようとする新しい試みである。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、また問題となるような放射性物質の高い体内への取り込みがある場合には確実に歯質中放射性物質の上昇があると考えられる点からも個人の内部被ばく状況を知る重要な手がかりを提供するものと考えられる。得られる情報は歯の形成時期における放射性物質の体内への取り込み状況に限られるが、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。

^{90}Sr は、骨や歯といった硬組織に選択的に取り込まれ保持される。体内に取り込まれた ^{90}Sr の 99% 以上は骨と歯に存在しているので、高い ^{90}Sr が歯の形成期に体内に取り込まれたとすれば、それは確実に QL 値の上昇にも反映されると考えられる。IP によるスクリーニングで高い QL 値が見出された場合には歯の ^{90}Sr 濃度と安定同位体 Sr 濃度を測定し、その比放射能値から骨における吸収線量を推測することも可能と考えられる [“歯から内部被ばく量を推定するモデルの確立 (^{90}Sr 吸収線量の推定)” の項参照] ので、歯の持つ内部被ばく量に関する情報は貴重である。その点からも、3.11 以降に形成された歯の収集が今後極めて重要である。

放射線被ばくにより歯質中に発生する炭酸ラジカル量を測定することにより、歯からは内部被ばくのみならず外部被ばく量を直接推定することが可能である。われわれの ESR 法による検出限界値は、解析ソフトの改良や試料調整法の改善により、大幅な感度の上昇を得ることができたものの、さらに感度の上昇を測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、測定限界値を吸収線量として 20mGy 以下まで下げることが可能と考えている。

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 5,000 本を超える乳歯を収集し、アーカイブ化した。
- (2) 収集した 3,600 の歯について、乳歯中の放射性物質濃度をイメージングプレート (IP) 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みても差はなかった。

- (3) 乳歯中には、過去の核実験に由来すると考えられる ^{90}Sr が検出された。この ^{90}Sr 濃度は、福島県と他県の間、また、福島県内の大都市間で違いは認められなかった。乳歯中には、 ^{137}Cs や ^{134}Cs は検出されなかった。
- (4) 野生ニホンザルを用いて歯質中の ^{90}Sr と安定同位体 Sr 濃度から ^{90}Sr の比放射能値を求め、これから ^{90}Sr に対する骨髄被ばく量を推定するモデルを構築し、その有効性について検証した。
- (5) 放射線被ばくにより歯質中に発生する炭酸ラジカルを測定する従来の ESR 法に、解析ソフトや試料調整法の面から改良を加え、大幅に測定感度を上昇させた。

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) 収集した歯の線量評価、特に内部被ばく歴の評価
 - ・ 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) 被ばく野生ニホンザルと野生アカネズミを用いた歯からの内部被ばく量推定モデルの構築
- (4) 収集した乳歯に関する ESR 法による歯からの外部被ばく量の推定

この研究に関する現在までの研究状況、業績

[原著論文]

Fukuda T, Hiji M, Kino Y, Abe Y, Yamashiro H, Kobayashi J, Shimizu Y, Takahashi A, Suzuki T, Chiba M, Inoue K, Kuwahara Y, Morimoto M, Katayama M, Donai K, Shinoda H, Sekine T, Fukumoto M, Isogai E.

Software development for estimating the concentration of radioactive cesium in the skeletal muscles of cattle from blood samples.

Anim Sci J 2016 Jun; 87(6):842-7. Doi:10.1111/asj.12490

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

⁹⁰Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident
Sci Rep 2016 Apr 5; 6: 24077. Doi:10.1038/srep24077.

[学会発表]

岡 壽崇

歯の炭酸ラジカル測定による生涯被ばく量推定

第 33 回無機・分析化学コロキウム 2016 年 6 月 3-4 日, 東北大学川渡共同セミナーセンター
大崎 (招待講演)

西山純平、小荒井一真、木野康志、清水良央、千葉美麗、佐々木啓一、高橋温、鈴木敏彦、小坂健、福田智一、磯貝恵美子、岡壽崇、関根勉、福本学、篠田壽

福島第一原発事故被災ウシの骨組織中の Sr-90 及び Cs-137 の測定

第 53 回アイソトープ・放射線研究発表会 2016 年 7 月 6-8 日
東京大学弥生講堂、東京 (発表賞受賞)

篠田 壽

歯を用いた被ばく線量評価

第 69 回東北大学歯学会 平成 28 年 6 月 10 日 東北大学歯学部、 仙台
(東北大学歯学会賞受賞講演)

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

Detection of ⁹⁰Sr in the teeth of cattle contaminated by environmental pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident

9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC9)

2016/8/28-9/2 Marina congress center, Helsinki, Finland

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

環境中からウシの歯への Sr-90、Cs-137 の移行と安定同族元素との関係

第 53 回アイソトープ・放射線研究発表会 2016 年 7 月 6 日 8 日 東京大学弥生講堂、東京

西山純平、小荒井一真、木野康志、清水良央、高橋温、鈴木敏彦、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

福島第一原発事故被災ウシの硬組織中の Sr-90 濃度の経時変化

2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会

2016年9月10-12日 新潟大学五十嵐キャンパス、新潟

小荒井一真、木野康志、西山純平、高橋温、鈴木敏彦、清水良央、千葉美麗、小坂健、佐々木啓一、福田智一、磯貝恵美子、岡壽崇、関根勉、福本学、篠田壽
ウシの歯の放射能測定によるウシ生息域での Sr-90, Cs-137 汚染の推定
2016 日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会 2016 年 9 月 10-12 日
新潟大学五十嵐キャンパス、新潟

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
電子スピン共鳴法による小児の外部被ばく線量の推定
2016 年日本放射化学会年会・第 60 回放射化学討論会、2016 年 9 月 10-12 日
新潟大学五十嵐キャンパス、新潟

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
福島第一原子力発電所事故被災サルの歯、骨中 Sr-90 の測定と骨髓線量の推定
日本放射線影響学会第 59 回大会 2016 年 10 月 26-28 日、AMS アステールプラザ、広島
(優秀発表賞受賞)

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
電子スピン共鳴法を用いたヒトの外部被ばく量推定
日本放射線影響学会 第 59 回大会、2016 年 10 月 26-28 日、AMS アステールプラザ、広島

池山 丈二、海野 仁、金子 振、小坂 健、篠田 壽、佐々木 啓一、廣瀬 公治、大野 敬
ヒト歯を用いた被ばく線量評価事業 ー福島県歯科医師会での取り組みー
第 69 回東北地区歯科医学会 平成 28 年 11 月 5-6 日 宮城県歯科医師会館 仙台

高橋 温、清水 良央、千葉 美麗、鈴木 敏彦、小荒井 一信、岡 壽崇、西山 純平、木野康志、小坂 健、篠田 壽、佐々木 啓一
ヒト歯を用いた被ばく線量評価事業 ー原発事故前に形成された乳歯の検討ー
第 69 回東北地区歯科医学会 平成 28 年 11 月 5-6 日 宮城県歯科医師会館、仙台

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
被災動物の歯を用いた福島第一原発事故による Sr-90 の汚染状況の解明
京大原子炉研究会 「福島の実状と今後の課題：炉内外からみえてくるもの」
2016 年 11 月 21-22 日 京都大学原子炉実験所、京都

西山純平、小荒井一真、木野康志、清水良央、高橋温、鈴木敏彦、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
福島第一原発事故被災ウシ硬組織間の Sr-90 濃度の相関
第18回環境放射能研究会 2017年3月14-16日
高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター

[引用文献]

- 1) Koarai K, Kino Y, Takahashi A, Suzuki T, Shimizu Y, Chiba M, Osaka K, Sasaki K, Fukuda T, Isogai E, Yamashiro H, Oka T, Sekine T, Fukumoto M, Shinoda H.
 ^{90}Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident
Sci. Rep., 2016 Apr 5; 6: 24077. Doi:10.1038/srep24077
- 2) Whitwell JR, Spier FW
Calculated beta-ray dose factors for trabecular bone.
Phys med Biol 1975; 21,16-38
- 3) Polyakov V, Haskell EH, Kenner GH, Hutt G, Hayes RB
Effect of mechanically induced background signal on EPR dosimetry of tooth enamel
Radiat Meas, 1995; 24, 249-254
- 4) Regulation Nuclear Authority(NRA)., Japan. The database of environmental radiation.
Available at: <http://search.kankyo-hosphono.go.jp/servlet/search.top>.(accessed:14th January 2016)
- 5) Froidevaux F, Geering JJ, Valley JF,
 ^{90}Sr in deciduous teeth from 1950 to 2002: the Swiss experience.
Sci Total Environ., 2006; 367, 596-605
- 6) IAEA-TECDOC-1331, Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment. IAEA 2002, p.34, Viena
- 7) IAEA-TECDOC-1331, Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment. IAEA 2002, pp.10-13, Viena
- 8) IAEA-TECDOC-1331, Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment. IAEA 2002, pp.17-19, Viena

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

Keiichi Sasaki

Division of Advanced Prosthetic Dentistry, Tohoku University Graduate School of Dentistry

Keywords: Fukushima–Daiichi nuclear power plant accident, Exposure to radiation, Deciduous teeth, Dosimetry, Electron spin paramagnetic resonance (ESR)

Abstract

The Fukushima–Daiichi nuclear power plant (FDNPP) accident released a substantial amount of radionuclides into the atmosphere and resulted extensive contamination of the environment. Radionuclides such as ^{90}Sr and ^{137}Cs are known to be incorporated into teeth during the process of calcification and remain there until the tooth falls out or is extracted.

Because deciduous teeth are formed when children are thought to be most sensitive to radiation, we hypothesized that radionuclide levels in deciduous teeth could serve as an index of internal exposure to radiation during the growth period.

Radiation exposure also generates stable carbonic radicals that accumulate and remain in the teeth for extremely long periods of time. Therefore, the levels of these radicals can serve as an index of an individual's external exposure to radiation.

To assess both internal and external radiation of children, we have been collecting deciduous teeth since the beginning of 2014 from children in the Fukushima area and control areas where the effects of the FDNPP accident were considered negligible. Approximately 5,000 deciduous teeth have been collected through December 2016. We continue to analyze these teeth using autoradiography with imaging plates, physicochemical determination of radionuclides (^{90}Sr , ^{137}Cs , and ^{134}Cs), and carbonic radical quantification with electron spin paramagnetic resonance (ESR).

The deciduous teeth collected so far were formed before March 2011, thus we have not found any significant difference in radionuclide levels between teeth collected from Fukushima and control prefectures (Niigata, Shizuoka, Kumamoto, and Hokkaido), or among the teeth collected from five major cities in the Fukushima Prefecture (Fukushima, Kohriyama, Iwaki, Soma, and Aizuwakamatsu). 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.

ESR quantification of carbonic radicals seemed to be useful for teeth exposed to high radiation doses (>200 mGy). However, the technique was not sensitive enough for exposure to lower radiation doses (<50 mGy). We are currently optimizing the technique to accurately quantify small amounts of radicals (<30 mGy) in teeth.

In this 2016 annual report, we discuss the results obtained to date and address the problems

associated with dosimetry using teeth.