

## 放射線の健康影響に係る研究調査事業 令和3年度年次報告書（詳細版）

研究課題名	浜通り地域を対象とした帰還住民の天然および人工放射性核種からの被ばく線量調査
研究期間	令和3年4月1日～令和4年2月28日

	氏名	所属機関・職名
主任研究者	細田 正洋	弘前大学・教授

	氏名	所属機関・職名
研究協力者	床次 眞司	弘前大学・教授
研究協力者	三浦 富智	弘前大学・教授
研究協力者	赤田 尚史	弘前大学・教授
研究協力者	真田 哲也	北海道科学大学・教授
研究協力者	田副 博文	弘前大学・准教授
研究協力者	大森 康孝	弘前大学・准教授
研究協力者	平良 文亨	長崎大学・助教
研究協力者	クランロッド チュティマ	弘前大学・助教
研究協力者	菊池 和貴	弘前大学・特任助教
研究協力者	小倉 巧也	北海道科学大学・助教
研究協力者	清水 真由美	弘前大学・特任助教
研究協力者	桑田 遥	弘前大学・技術職員
研究参加者	小山内 暢	弘前大学・助教
研究参加者	工藤 ひろみ	弘前大学・助教
研究参加者	山口 平	弘前大学・助教
研究参加者	辻口 貴清	弘前大学・助教

<p>研究要旨</p>	<p>本研究では、実測データを活用したリスクコミュニケーションのために、富岡町、川内村、大熊町において調査を実施する。原発事故から 10 年以上経過する現状において、生活環境中に放出された放射性物質に起因する空間線量率への影響を評価するには、自然放射線量の評価が不可欠である。そこで、天然成分と人工成分とを弁別した空間線量率を評価し、それぞれのマップを作成するとともに、外部被ばく線量を推定する。近年、国際放射線防護委員会ではラドンの吸入摂取に対する線量係数を再評価し、その被ばく線量がこれまでの 2 倍程度になることを報告した。これは、我が国でもラドンの吸入摂取による年間実効線量への寄与が他の被ばく要因と比べて最も大きくなることを意味する。そこで、ラドンやトロンによる住民の吸入被ばくの実態を明らかにし、大気中の放射性セシウムによる吸入被ばく線量と比較する。さらに、飲料水中のラドンと放射性セシウムの分析により、当該地域における経口摂取による被ばくの実態も明らかにするとともに、既存のデータや文献調査によって食事による経口被ばく線量を推定し、事故による内部被ばくの影響を比較する。</p>
<p>キーワード</p>	<p>ラドン、放射性セシウム、外部被ばく、内部被ばく、吸入摂取、経口摂取</p>

## I 研究目的

### 1) 研究の背景・目的

我々は、浪江町において放射線の健康影響に係る研究調査事業「浪江町民のための被ばく線量調査」を2017年度から2019年度にかけて実施した<sup>1,2)</sup>。この調査では浪江町役場の協力を得て、空間線量率や屋内ラドン、河川水や大気中の放射性セシウム濃度を継続して評価し、住民の被ばく線量を評価した。この調査事業ではフィールド調査のみでなく、浪江町民との交流も積極的に行なった。浪江町内での活動の中で、放射線と向き合って生活するためには、自然放射線に関する情報や他地域の放射線量の実態を知りたいとの声を多く聞いた。その一例を以下に示す。

- 自分たちで判断するための材料となるデータが多いと安心できる。他の地域の放射線量はどうなっているのか。
- 今まで自然の放射線について知らなかったから、原発事故由来の放射線と自然由来の放射線の比較ができて参考になった。
- 未来がある子どもたちの健康を守ってほしい。そのためにも、今だけじゃなくてこれからも放射線の調査をお願いしたい。

これまでの浪江町内での活動を通じ、他の浜通り地域において同一手法による包括的な調査を実施することは、住民自身が安全か否かを判断し、安心した生活を送るための情報として不可欠であると考えた。一方、三菱総合研究所は福島県の復興状況や放射線の健康影響に対する東京都民の意識や関心・理解などに着目したアンケート調査を、2017年、2019年及び2020年に実施した<sup>3)</sup>。この調査結果によって、東京都民の福島県の復興や放射線の健康影響に関する理解は進んでいるものの、未だ40%程度が「放射線による福島県民の健康影響が起こる」、「放射線被ばくによって福島県民に遺伝的影響が起こる」と考えていることも明らかとなった。

原発事故から10年以上が経過し、人工放射線の線量が低減したことで、空間線量率に対する自然放射線の相対的寄与が増加している。つまり、自然由来の空間線量率を一定値として差し引くことは、事故による環境の空間線量率への影響を正確に評価することができない。さらに、原発事故以前より自然界にはラドンをはじめとさまざまな放射性物質による被ばくがあったのにも関わらず、その実態は意外と理解されていない。したがって、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意義があり、必要な課題であると考えます。さらに、浜通り地域において多くの研究機関が地域に根付いた調査を実施しているが、機関間の連携も浜通り地域の活性化において重要な課題である。そこで、我々は富岡町、川内村および大熊町において環境放射線調査と放射線リスクコミュニケーションを実施している長崎大学と連携し、両研究グループの実績と経験を融合することで、同町村における自然放射線と原発事故由来の人工放射線からの被ばく線量の実態を明らかにすることとした。

### 2) 環境行政の課題との関連性

- ① 本調査研究終了後は、福島県浜通り地域の自然放射線と人工放射線による被ばく源ごとの年間実効線量が得られる。これらの結果は、統一的な基礎資料（上巻）の第2章「身の回りの放射線」や第7章の「環境モニタリング」へ最新の情報として反映させることができれば、資料

の充実につながり、教育活動などに反映されることで本調査結果が広く普及されると考えられる。

- ② 得られた成果を国際誌に投稿し、原子放射線の影響に関する国連科学委員会（UNSCEAR）が出版する報告書（福島関連や公衆被ばく関連）への掲載を目指す。本調査結果が国際機関の報告書に掲載されれば、我が国だけでなく、同様の問題を抱える国々における環境保健行政にもフィードバックができると考える。
- ③ トロンの吸入摂取による実効線量が明らかとなるとともに、ラドン濃度から実効線量を評価するための重要なパラメータである平衡係数の幅と季節変動も得られる。この結果をUNSCEARが報告している代表値と比較し、ラドンによる吸入摂取による線量評価に反映させることでより現実的な線量評価を可能とする。
- ④ これまで、浜通り地域において個々に展開していた環境放射能調査を、長崎大学や川内村役場住民課及びかわうちラボ、富岡町役場健康づくり課、大熊町役場環境対策課と連携して実施する。その結果、申請者らが把握している住民のニーズだけでなく、様々なフェーズにある住民のニーズを把握することが可能となり、対象地域の被ばく線量の実態を明らかにするとともに、実測に基づく放射線リスクコミュニケーションに必要な基礎情報の取得が可能となる。

## II 研究方法

### 1) 自然放射線と人工放射線による線量率マップの作成

富岡町、川内村及び大熊町の3町村において自動車走行サーベイを実施し、周辺線量当量率（空間線量率）マップを作成する。測定には、3-in × 3-in NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ（EMF-211, EMF Japan）を自動車後部座席に搭載し、走行しながら30秒間隔で計数値と緯度経度情報を取得した。30秒間隔の測定で得られた計数値を2倍して1分間当たりの計数値（cpm）とし、以下の式を用いて計数率から空間線量率へと換算した。

空間線量率（nSv/h）

$$= \text{計数率 (cpm)} \times \text{遮蔽係数 (1.54)} \times \text{線量換算係数 (0.0013 nGy/h/cpm)} \times 1.25 \text{ (Sv/Gy)}$$

浪江町内での調査経験から<sup>2)</sup>、調査対象全域の面積を考慮して各町村のメッシュサイズを2 km × 2 kmとした。3-in × 3-in NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを用いて、1メッシュあたりで最低1箇所において15分間の測定を実施し、γ線波高分布を取得した（図1）。なお、GoogleMYMapsを活用することで、調査地点について研究者間で情報を共有することが可能となり、調査の効率化へとつなげる。γ線波高分布の解析には応答行列法を用いることで、天然成分と人工成分とを弁別した空間線量率を評価した<sup>2)</sup>。なお、この調査は令和3年度から5年度までの3年間をかけて実施し、富岡町や大熊町においては帰還困難区域内でも実施する。



図1  $\gamma$ 線波高分布の測定の様子

## 2) 大気中の放射性セシウム吸入摂取

川内村、富岡町及び大熊町内のそれぞれ2か所（合計6か所）において大気試料を採取する。採取場所については各役場担当者との調整により決定済みである。ただし、令和3年度は新型コロナウイルス感染症拡大のため、川内村のみで実施した（図2）。川内村の採取場所は、第一区集会所及び一般社団法人かわうちラボの敷地内とした。これらの2か所では電源を確保することができるためハイボリュームサンプラ（HV-500R、柴田科学株式会社）を用いた。捕集フィルタとしてフッ素処理を行ったフィルタである PTFE バインダーフィルタ（TF98、柴田科学株式会社）を使用し、捕集流量は500 L/minとした。捕集前後にフィルタを80°Cで乾燥処理を行い、それぞれの乾燥重量を測定した捕集後、フィルタを折り畳み、U8容器（直径:56 mm×高さ:68 mm、容積:100 mL）に詰めた。その後、高純度 Ge 半導体検出器（GCD-25185、株式会社アドフューテック）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1.750 keV（ $^{60}\text{Co}$ の1.33 MeVの $\gamma$ 線）、相対効率率は25.0%（ $^{60}\text{Co}$ の1.33 MeVの $\gamma$ 線）である。測定時間は600,000秒とした。 $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度は、ソフトウェア（PrimePLUS-G、株式会社アドフューテック）に必要な情報を入力し、解析を行った。なお、 $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度の評価には662 keVの全エネルギー吸収ピークの計数値を用いた。



図2 ハイボリュームエアサンプラを用いたサンプリングの様子（左）と高純度 Ge 半導体検出器による大気浮遊塵の測定の様子（右）

### 3) 家屋内外のラドン・トロン吸入摂取

川内村と富岡町の各 30 家屋内及び大熊町内の 10 家屋にパッシブ型ラドン・トロン弁別モニタ (RADUET) とトロン子孫核種モニタを設置する。季節変動を評価するためモニタを 3 ヶ月毎に交換し、4 期の測定を実施する。なお、令和 3 年度は新型コロナウイルス感染症拡大の影響を受け、12 月及び 3 月に川内村の 30 家屋にモニタを設置した。

ラドンの測定には、Tokonami ら<sup>4)</sup>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 3) を使用した。RADUET は、国際的にも多くの国や地域で使用されている標準的なラドンモニタである。その大きさは縦 6 cm、横 11 cm、高さ 3 cm 程度で内容積が約 30 cm<sup>3</sup> 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固体飛跡検出器の一種である 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  $\alpha$  線を検出する。一方、高換気率容器には側壁に直径 6 mm の穴が等間隔に 6 つ開けられているためラドンとトロンは容易に容器内に侵入し、それらから放出される  $\alpha$  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。



図 3 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。

RADUET を用いた測定により、ラドンだけではなくその放射性同位体であるトロンも検出することができる。しかし、トロンの半減期が約 55.6 秒と短いため、その放射能濃度は家屋内において不均一となるため線量評価に用いることは望ましくない<sup>5,6)</sup>。RADUET を用いたトロン計測の主たる目的はラドン計測におけるトロンの寄与を評価することで、より高精度のラドン濃度を評価することにある。そこで、本研究では線量評価のために空間的に均一な分布を示すトロン子孫核種を測定した。Zhuo と Iida によって報告されたパッシブ型トロン子孫核種モニタのプロトタイプを報告した<sup>7)</sup>。本研究では、Tokonami によって改良されたパッシブ型トロン子孫核種モニタを用いた<sup>8)</sup>。トロン子孫核種である <sup>212</sup>Po の  $\alpha$  線エネルギーは 8.8 MeV であり天然放射性核種の中で最も高いエネルギーである。そこで、ステンレス製の本体に CR-39 を装着し、その上にアルミ蒸着マイラーフィルム及びポリプロピレンフィルム (質量厚さ : 7.1 mg/cm<sup>2</sup>、空気換算厚: 71 mm) で被覆することで <sup>212</sup>Po からの  $\alpha$  線のみを検出することができる。

本調査では、RADUET とトロン子孫核種モニタを図 4 (左) に示すように一緒に設置するために治具を作成し、家屋内でのラドン及びトロンの吸入摂取による年間実効線量の推定を行う。一



方、大気試料を採取する 2 か所に RADUET を設置し、屋外ラドン濃度の測定も同時に実施する (図 4 右)。

調査に先立ち、弘前大学被ばく医療総合研究所に設置されているラドン較正場及びトロン較正場 (図 5) <sup>9)</sup> において、CR-39 で得られるトラック密度からラドン及びトロン濃度への換算係数を評価した。積算ラドン (もしくはトロン) 濃度を低レベル ( $\sim 100 \text{ kBq h/m}^3$ )、中レベル ( $\sim 500 \text{ kBq h/m}^3$ )、高レベル ( $\sim 1000 \text{ kBq h/m}^3$ ) の 3 条件に分け、各条件でそれぞれ 5 つの RADUET を曝露した。曝露後の CR-39 のエッチング処理や解析など手法は既報に基づいた <sup>10)</sup>。同様に、本調査で使用する静電捕集型ラドン・トロンモニタ (RAD7、DurrIDGE 社) も同様にそれぞれの較正場において較正した (図 6)。



図 4 家屋内での RADUET とトロン子孫核種モニタの設置の様子 (左) と屋外でのラドン濃度の測定の様子 (右)

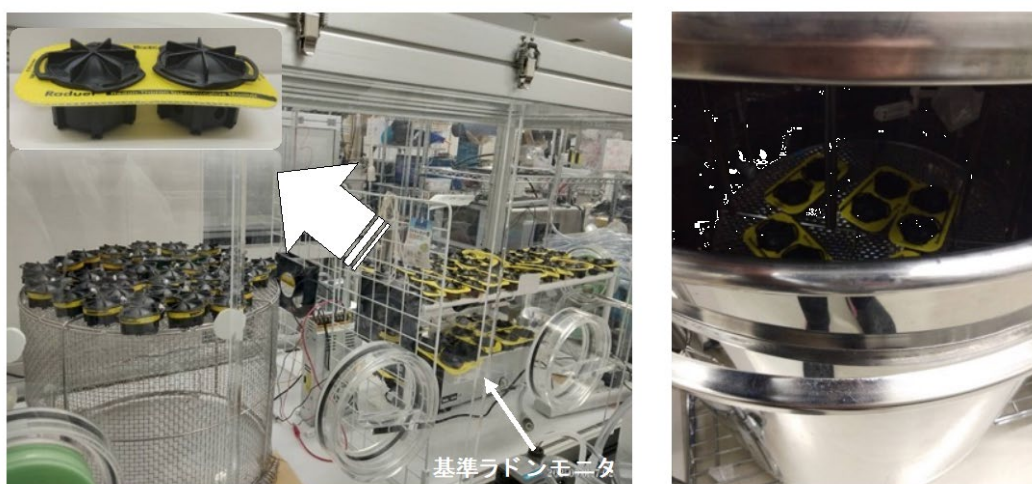


図5 ラドン較正場 (左) とトロン較正場 (右) でのRADUETの較正実験の様子



図6 ラドン較正場（左）とトロン較正場（右）でのRAD7の較正実験の様子

#### 4) 飲料水中の放射性セシウムを経口摂取

屋内ラドン濃度の調査を実施する富岡町、川内村、大熊町の家屋の中からそれぞれ10家屋において、季節変動を確認するために3ヶ月ごとに2Lの飲料水を採水する。ただし、令和3年度は新型コロナウイルス感染症拡大のため、川内村において12月と3月に実施した（図7左）。各家屋から採水した飲料水は大学に持ち帰り、2Lのマリネリ容器を使って高純度Ge半導体検出器（GCD-25185、株式会社アドフューテック）で80,000秒間の測定を行った（図7右）。大気試料と同様に、 $^{137}\text{Cs}$ の放射能濃度は、662 keVの全エネルギー吸収ピークの計数値を用いて評価した。本研究では、飲料水の測定に先立ち、2Lのマリネリ容器を使って高純度Ge半導体検出器で測定した際の検出下限値について検討した。さらに、河川水試料を用いて2017年度から2019年度にかけて実施した浪江町内での調査事業で開発した手法（以降、従来法と呼ぶ）<sup>11)</sup>との比較も行った。



図7 飲料水の採水の様子（左）と高純度Ge半導体検出器によるマリネリ容器での測定の様子（右）

#### 5) 飲料水中のラドンの経口摂取

屋内ラドン濃度の調査を実施する富岡町、川内村、大熊町の家屋の中からそれぞれ10家屋において、3ヶ月ごとに飲料水を採水することで、ラドン濃度の季節変動を確認するとともに、その実効線量を評価する。採水の際に最も注意すべきことは、採水中に気泡が生じないことである。泡立つことによって、水中のラドンが大気中へと散逸し、ラドン濃度を過小評価することになる。



ラドンの半減期が3.824日と比較的短いため、静電捕集型ラドン・トロンモニタ (RAD7) と専用のバブリングシステム (RADH2O) を用いて飲料水中のラドン濃度を現地で測定した (図8左)。この手法は、飲料水中のラドンをバブリングシステムで脱気し、その気体中のラドン濃度を計測することで水中ラドンを評価する。測定の直前に乾燥剤を介してRAD7をパーズングする。その後、バブリングシステムを接続して、5分間のバブリングの後、5分間計測を4回繰り返す。したがって、1試料あたり概ね1時間程度の分析時間が必要となる。さらに、大学内に設置されている液体シンチレーションカウンタ (Quantulus6220、PerkinElmer Co., Ltd.) によってもラドン濃度を評価することでデータの信頼性を担保した (図8右)。液体シンチレーションカウンタでの分析のために、20 mLのガラスバイアルに10 mLのミネラルオイルシンチレータと10 mLの飲用水を加えた試料を1か所あたりに3本ずつ準備した (図9)。液体シンチレーション法によるラドン濃度の評価には積分バイアス法を用いた<sup>12)</sup>。

なお、令和3年度は新型コロナウイルス感染症拡大の影響を受け、12月及び3月に川内村の10家屋において採水を実施した。ラドン濃度は採水時の日時に減衰補正した。現地での採水に先駆けて、<sup>226</sup>Raで値付けがされている液体シンチレーションカウンタを所有する神戸薬科大学との比較実験を実施することで、RAD7 (SN: 5642及び5116) の較正定数を得た。手法は、神戸薬科大学から地下水を輸送してもらい、弘前大学内において250 mLの専用バイアルに6本ずつ試験水を取り分けた。そのうちの3本をSN5642の較正用、残りの3本をSN5116の較正用に用いた。さらに、基準値算出用として10本の液体シンチレーションカウンタ用のバイアルに試験水を取り分け、神戸薬科大学へと返送した。



図8 RAD7とRADH2O (左) と液体シンチレーションカウンタ (右) を用いた飲料水中のラドン濃度測定の様子



図9 飲用水の採水の様子

RAD7や液体シンチレーションカウンタによる分析用ガラスバイアルに気泡が入らないように、水道蛇口にコネクタ、タイゴンチューブを接続して採水を行っている。RAD7用のガラスバイアルの底にタイゴンチューブの先をつけ、気泡が立たないように水量を調整し、250 mLのガラスバイアルから水が溢れるまでしばらく続ける。その後、水を張ったバケツ内に水が溢れたままの状態でもガラスバイアルを入れ、溢れさせた時間以上、水を流し続ける。ガラスバイアルの蓋に空気が入らないように、水を張ったバケツ内で蓋を閉める。一方、液体シンチレーションカウンタ用の試料作成には、注射筒を用いタイゴンチューブを流れる水を12 mL採水した後、2 mLを排水し、液体シンチレータが入ったガラスバイアルに移す。

(倫理面への配慮)

本調査において解析に十分なデータ数を必要とするため、令和3年度から3年間にわたり継続的に同様の調査を実施する。なお、個人の線量評価を行うための行動記録や家屋構造等などの基礎情報を取得するにあたり、弘前大学大学院保健学研究科に設置された倫理委員会の承諾を得た(承認番号: 2020-56)。

### III 研究結果

#### 1) 自然放射線と人工放射線による線量率マップの作成

川内村、富岡町及び大熊町の居住区域(富岡町及び大熊町では帰還困難区域も含む)を中心としてNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを搭載した自動車走行サーベイを実施し、2591データを取得した(図10)。図11に示すように、周辺線量当量率は0.03–4.02  $\mu\text{Sv/h}$ まで広く分布していることが明らかとなった。また、GoogleMYMapsを活用して研究者間でデータを共有できるシステムを構築し、自動車走行サーベイの結果をもとにNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる定点測定によって、自然放射線と人工放射線とを弁別した周辺線量当量率を57地点で評価した(図12)。

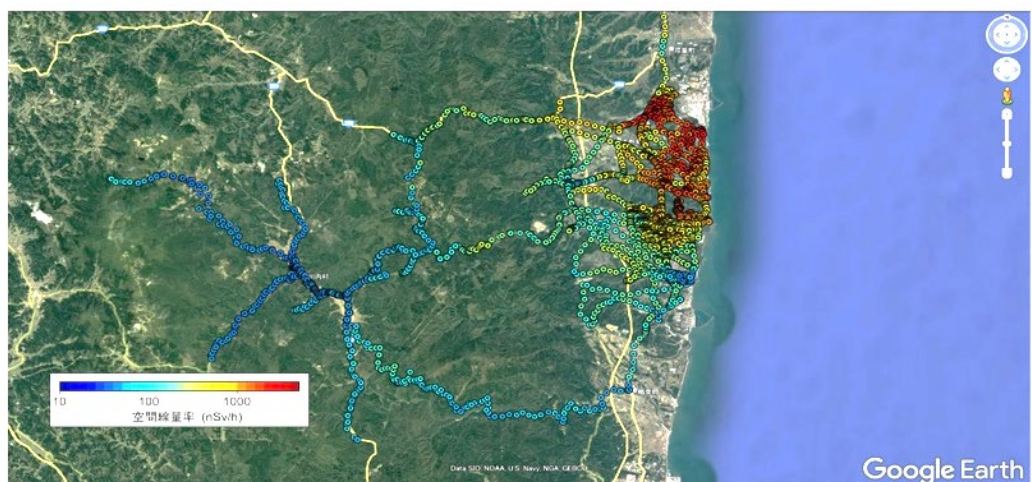


図 10 自動車走行サーベイによる周辺線量当量率マップ

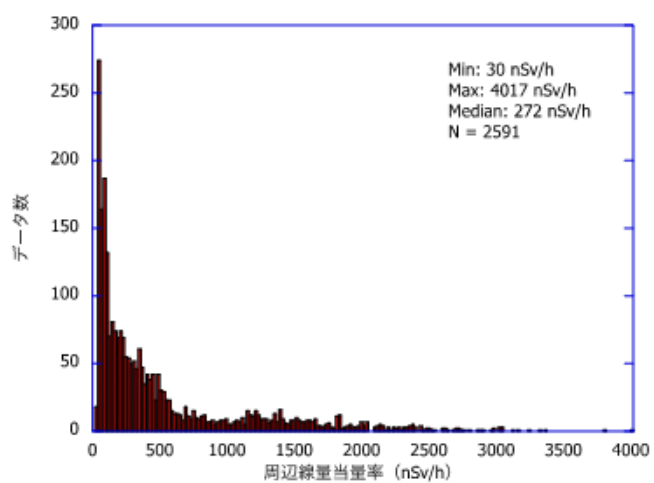


図 11 自動車走行サーベイによって評価された周辺線量当量率のヒストグラム



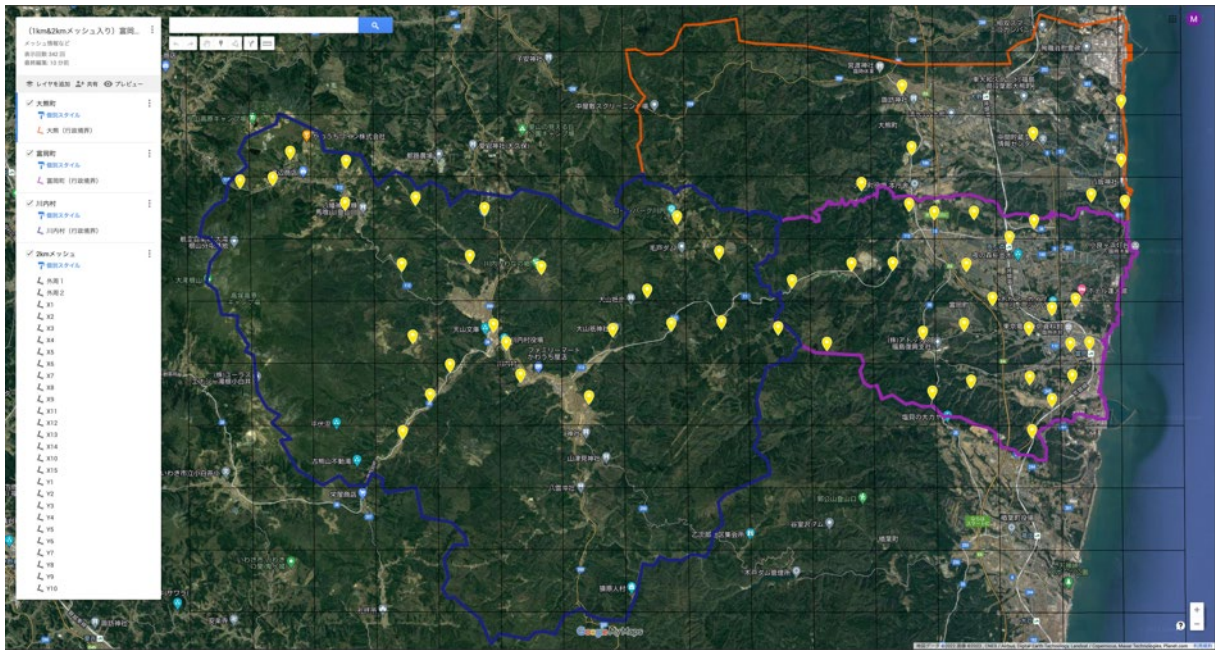


図 12 GoogleMYMaps を使用した周辺線量当量率の定点観測地点のプロット  
(3 町村を 2 km × 2 km に区分)

川内村内の 25 地点における測定の結果、周辺線量当量率は 49 nSv/h から 216 nSv/h まで分布した。自然放射線と人工放射線による線量率の範囲は、それぞれ 25 nSv/h から 51 nSv/h、8 nSv/h から 169 nSv/h であった。また、それぞれの算術平均値とその標準偏差は  $41 \pm 6$  nSv/h、 $36 \pm 39$  nSv/h となり、人工放射線による線量率のバラツキが大きい。特に、居住地域から離れた山間部において人工放射線の寄与が高い傾向にあった。

富岡町内の 24 地点における測定の結果、周辺線量当量率は 35 nSv/h から 359 nSv/h まで分布した。自然放射線と人工放射線による線量率の範囲は、それぞれ 19 nSv/h から 55 nSv/h、10 nSv/h から 322 nSv/h であった。また、それぞれの算術平均値とその標準偏差は  $37 \pm 7$  nSv/h、 $116 \pm 84$  nSv/h であった。

大熊町内の 8 地点における測定の結果、周辺線量当量率は 145 nSv/h から 3390 nSv/h まで分布した。自然放射線と人工放射線による線量率の範囲は、それぞれ 27 nSv/h から 42 nSv/h、114 nSv/h から 3350 nSv/h であった。また、それぞれの算術平均値とその標準偏差は  $33 \pm 6$  nSv/h、 $960 \pm 1061$  nSv/h であった。人工放射線による線量率は測定地点によって大きな幅をもつが、今年度の調査は基本的に帰還困難区域内が多かったことによる。

## 2) 大気中の放射性セシウムの吸入摂取

2021 年 12 月の川内村での調査では、第一区集会所において  $687.0 \text{ m}^3$ 、一般社団法人かわうちラボにおいて  $704.4 \text{ m}^3$  の大気をサンプリングした。高純度 Ge 半導体検出器による分析の結果、 $^{137}\text{Cs}$  の放射能濃度は検出下限放射能濃度以下であった。なお、第一区集会所及び一般社団法人かわうちラボで採取した大気試料の  $^{137}\text{Cs}$  の検出下限放射能濃度は、それぞれ  $0.014 \text{ mBq/m}^3$  及び  $0.016 \text{ mBq/m}^3$  であった。なお、2022 年 3 月の調査の大気試料は現在分析中である。

### 3) 家屋内外のラドン・トロン吸入摂取

ラドン曝露場およびトロン曝露場における曝露試験の結果、低換気率容器と高換気率容器内のCR-39のトラック密度と積算ラドン濃度との関係を得た(図13)。なお、青で示した結果が低換気率容器、赤で示した結果が高換気率容器での結果である。また、上段がラドン、下段がトロンを曝露した結果を示す。低換気率容器のトラック密度と積算トロン濃度との決定係数が低いのはトロンの半減期が55.6秒と短く、容器内に容易に侵入しないためである。それ以外の条件の決定係数がいずれも0.9以上であり、非常に良い直線性を示した。また、低換気率容器と高換気率容器へのラドン及びトロン曝露によって得られたそれぞれの換算係数(トラック密度と積算濃度の比)の算術平均値とその標準不確かさを表1に示す。

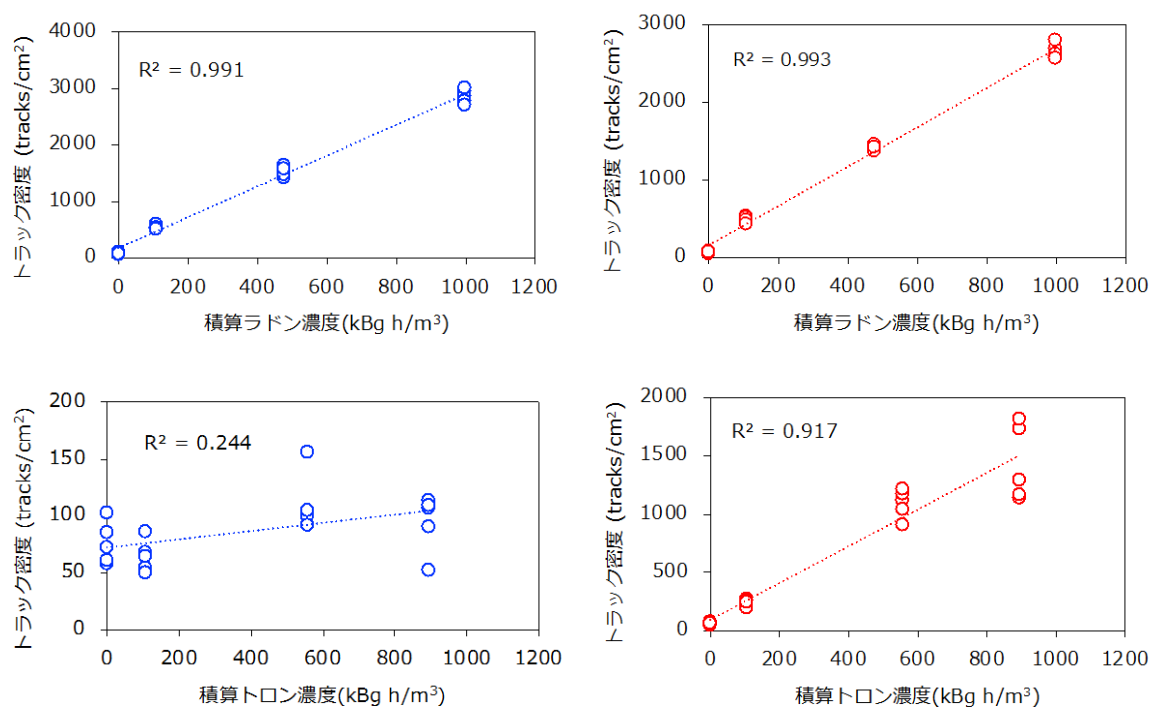


図13 低換気率容器(青)と高換気率容器(赤)内のCR-39のトラック密度と積算ラドン濃度との関係

表1 トラック密度から積算ラドン(トロン)濃度への換算係数

ラドン [(tracks/cm²)/(kBq h/m³)]		トロン [(tracks/cm²)/(kBq h/m³)]	
低換気率容器	高換気率容器	低換気率容器	高換気率容器
3.41 ± 0.20	3.12 ± 0.16	-0.01 ± 0.03	1.68 ± 0.08

ラドン曝露場およびトロン曝露場におけるRAD7(SN:5642)の曝露試験の結果、ラドン濃度及びトロン濃度に対する較正定数は、それぞれ1.12 ± 0.08及び1.97 ± 0.07と評価された。

2021年12月から2022年3月まで川内村内の30家屋に設置したRADUETの解析結果より、屋内ラドン濃度は8 Bq/m³から40 Bq/m³まで分布し、幾何平均値と幾何標準偏差はそれぞれ20 Bq/m³及び1.7 Bq/m³であった。また、トロン子孫核種モニタの解析結果より、屋内トロン子孫核種濃度は0.5 Bq/m³から31 Bq/m³まで分布し、幾何平均値と幾何標準偏差はそれぞれ1.7 Bq/m³及び2.6



Bq/m<sup>3</sup>であった。一方、第一区集会所および一般社団法人かわうちラボの敷地内での屋外ラドン濃度は、それぞれ  $6 \pm 1$  Bq/m<sup>3</sup> 及び  $24 \pm 1$  Bq/m<sup>3</sup> であった。

#### 4) 飲料水中の放射性セシウムの経口摂取

図14（左）にバックグラウンド計数率から評価した2Lマリネリ容器での計測を仮定した場合の検出下限放射能濃度の時間変化を示す。2Lマリネリ容器に試料を充填し、24時間の計測を実施した場合には<sup>137</sup>Cの放射能濃度に対する検出下限値は0.07 Bq/kg程度と評価された。<sup>134</sup>Csに対しても同程度の検出下限放射能濃度であり、本研究での評価手法は、食品衛生法における飲料水に係る放射性セシウムの基準値である10 Bq/kgよりも十分に低い値で評価が可能であることを確認した。さらに、図14（右）には、河川水試料の<sup>137</sup>Cs放射能濃度を本事業で用いる2Lマリネリ容器による測定法による値と従来法<sup>11)</sup>による値とを比較した結果を示す。図14（右）に示すように、本事業法で得た値は従来法とよく一致した。

2021年12月に川内村内の10家屋から採水した2 Lの飲料水中の<sup>137</sup>Cの放射能濃度は、いずれも検出下限放射能濃度以下（0.05～0.07 Bq/kg）であった。なお、2021年3月に採水した飲料水は現在分析中である。

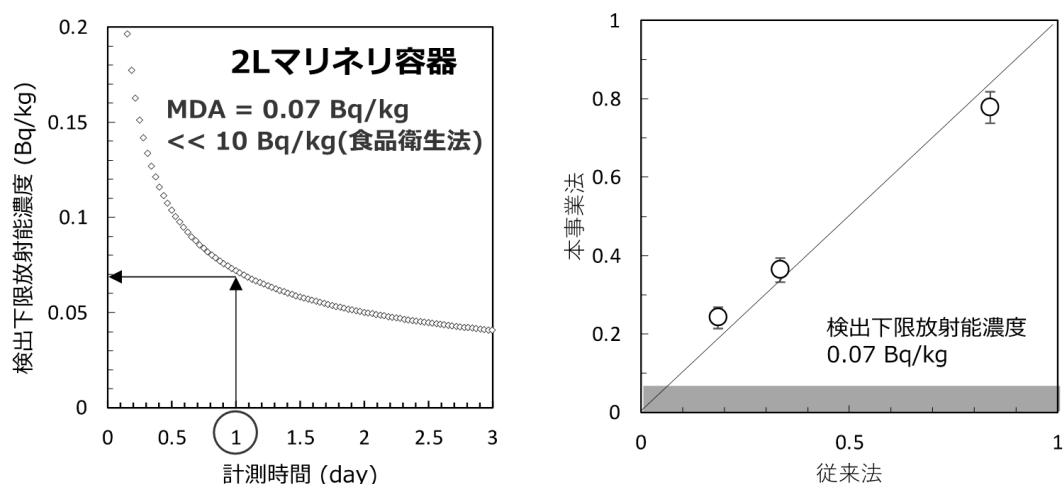


図14 2Lマリネリ容器での計測を仮定した場合の検出下限放射能濃度の時間変化（左）、本事業法と従来法による河川水中の<sup>137</sup>Cs放射能濃度の比較（右）

#### 5) 飲料水中のラドンの経口摂取

神戸薬科大学が所有する液体シンチレーションカウンタによって得られたラドン濃度（ $191 \pm 2$  Bq/L）を基準値としてRAD7で得られたラドン濃度に対する較正定数を評価した結果、SN: 5642では $0.91 \pm 0.30$ 、SN: 5116では $1.30 \pm 0.34$ が得られた。それぞれの相対標準偏差は33%及び26%であった。そこで、測定システムの漏洩ポイントを探し、乾燥剤カラムの接続部をパラフィルム、ガラスバイアルとチューブとを接続するコネクタ部分を粘土でシーリングした（図15）。そして、同様の実験（ラドン濃度： $184 \pm 6$  Bq/L）を改めて行った結果、SN: 5642の較正定数は $0.76 \pm 0.06$ 、SN: 5116では $1.21 \pm 0.08$ となり、相対標準偏差はそれぞれ8%及び6%と大幅に減少した。

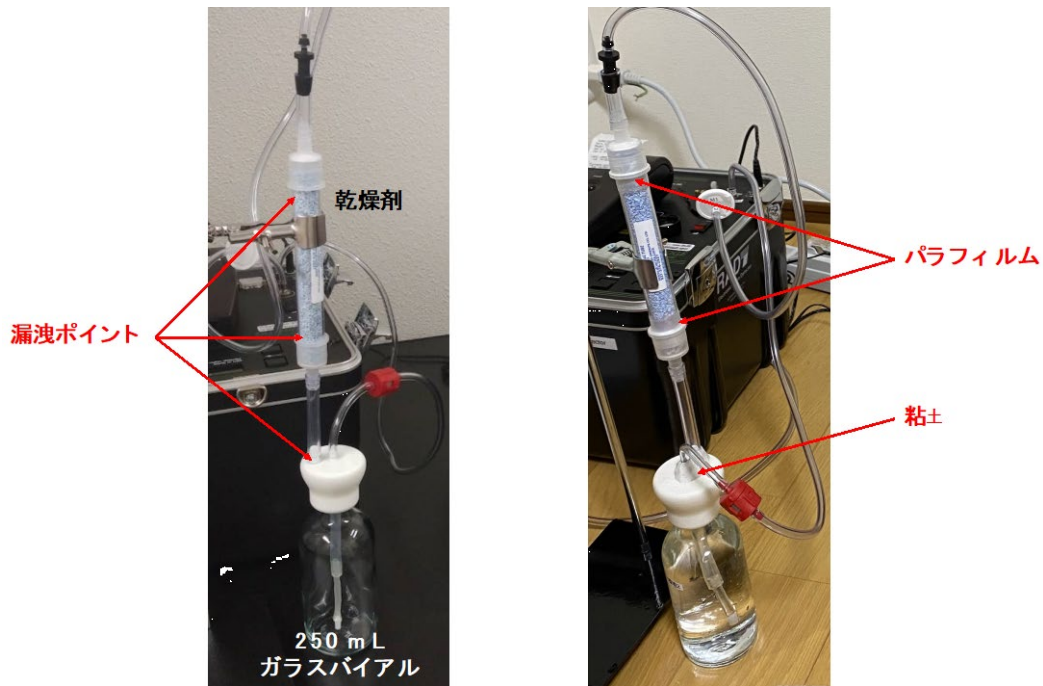


図15 測定システムの漏洩ポイントとシーリングの様子

2021年12月に川内村の10家屋において飲料水を採水して2台のRAD7で分析した結果、ラドン濃度の平均値は $21 \pm 2$  Bq/Lから $368 \pm 23$  Bq/Lまで分布した。さらに、液体シンチレーションカウンタで得られた結果と比較した。図16に示すように、それぞれのRAD7で得られた値に校正係数を乗じて補正したラドン濃度はいずれも液体シンチレーションカウンタによる値とよく一致した。よって、2回目の採水からは各家屋で採水した2つの試料のうちの1試料をどちらかのRAD7で測定し、残りの1試料は予備として調査期間中は保管することで、現地での全ての分析にかかる時間を短縮することにした。

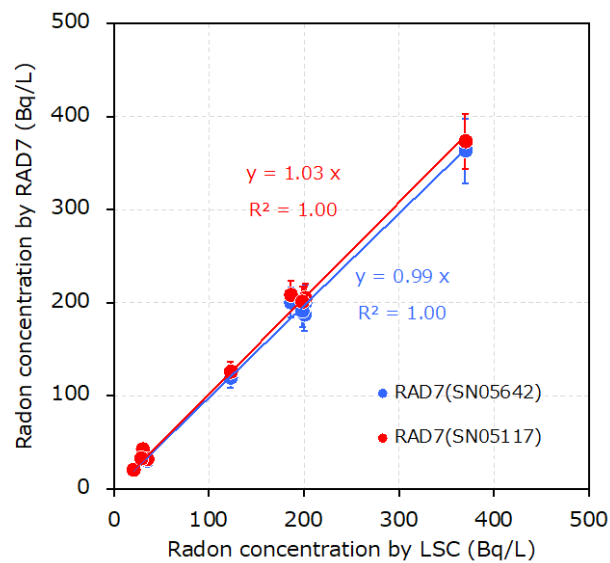


図16 RAD7で得られたラドン濃度に校正定数を乗じた値と液体シンチレーションカウンタで得られた値の比較

2022年3月に川内村の10家屋において飲料水を採水して分析した結果、ラドン濃度は $23 \pm 3$  Bq/Lから $380 \pm 29$  Bq/Lまで分布した。1家屋を除き12月の測定結果と大きくは異ならなかった。

#### IV 考察

本年度は、自動車走行サーベイによって走行可能な主要道路の周辺線量当量率を概ね評価し、その分布図を作成した。その結果をもとに川内村、富岡町及び大熊町の57地点において $\gamma$ 線波高分布を取得し、自然放射線と人工放射線による周辺線量当量率を評価した。

本年度調査した川内村、富岡町、大熊町での自然放射線による周辺線量当量率の算術平均値とその標準偏差は、それぞれ $41 \pm 6$  nSv/h、 $37 \pm 7$  nSv/h 及び  $33 \pm 6$  nSv/h であった。応答行列法による $\gamma$ 線波高分析では、実際には空気吸収線量率が評価される。本調査では、応答行列法で得られた空気吸収線量率から周辺線量当量率へと換算するために、人工放射線と区別することなく東京電力福島第一原子力発電所事故以降に報告された1.25 (Sv/Gy) を線量換算係数として用いた。したがって、既報と比較するために自然放射線による周辺線量当量率を空気吸収線量率に戻すと、それぞれ $33 \pm 5$  nGy/h、 $30 \pm 6$  nGy/h 及び  $26 \pm 5$  nGy/h となる。我が国の大地放射線による空気吸収線量率の平均値は50 nGy/h であると報告されており<sup>13)</sup>。本調査における対象地域の大地放射線による空気吸収線量率は、我が国の平均値の52%から66%程度と低い傾向にある。特に、大地放射線による空気吸収線量率は基盤地質に依存し、特に花崗岩類などの酸性岩が分布している地域において高い傾向にあることがよく知られている<sup>6)</sup>。一方、川内村、富岡町、大熊町での人工放射線による周辺線量当量率の算術平均値とその標準偏差は、それぞれ $36 \pm 39$  nSv/h、 $116 \pm 84$  nSv/h 及び  $960 \pm 1061$  nSv/h であった。ここで、周辺線量当量から実効線量への換算係数を0.6、屋外及び屋内の滞在時間をそれぞれ8時間及び16時間、家屋による線量低減係数を0.4として、年間の実効線量を推定する<sup>14)</sup>。川内村、富岡町、大熊町での人工放射線由来の年間実効線量の平均値は、それぞれ0.11 mSv、0.37 mSv 及び 3.0 mSv と評価された。より詳細な線量評価のためには、各町村において継続したデータの蓄積が必要であり、住民への聞き取り調査によって現実的な滞在時間を評価する必要がある。今回は家屋による線量低減係数を0.4としたが、事故から11年近くが経過したことで、地域によっては線量率に対する人工成分の寄与が大分減り、さらには除染活動や家の建て替えなどによって事故直後とは家屋や周辺環境が大きく異なる可能性がある。周辺線量当量率から実効線量の評価手法には限界があるものの、家屋による線量低減係数の検討も必要であろう。

川内村で12月に採取した2ヶ所の大気試料を分析した結果、<sup>137</sup>Csの放射能濃度は検出下限値以下であった。ここで、2ヶ所の検出下限値の中間値である $0.015$  mBq/m<sup>3</sup>の<sup>137</sup>Csが大気中に存在していたと仮定する。さらに、屋外の滞在時間を8時間、成人の吸入摂取による線量係数を $3.9 \times 10^{-5}$  mSv/Bq、成人の呼吸率を $22.2$  m<sup>3</sup>/dとすると、吸入摂取にともなう預託実効線量は1.6 nSvとなり、1日あたり0.004 nSvと評価される。また、飲料水中の<sup>137</sup>Csの放射能濃度も検出下限値以下であったが、10試料の検出下限値の中央値である $0.06$  Bq/kgを経口摂取したと仮定する。成人の1年間の飲料水の摂取量を50L (=50 kg) とし、線量係数を $1.3 \times 10^{-5}$  mSv/Bqと仮定した場合、 $0.04$   $\mu$ Svとなり1日あたり0.11 nSvと評価される。

2021年12月から2022年3月までの川内村内の30家屋に設置したRADUETの解析結果より、屋内ラドン濃度の幾何平均値は $20$  Bq/m<sup>3</sup>であった。Sanadaらが実施した屋内ラドン濃度の全国調査の結果によれば<sup>15)</sup>、その年間の幾何平均値は $13$  Bq/m<sup>3</sup>であり、冬期のラドン濃度は夏期と比べ

て高い傾向にあることが報告されている。したがって、1年間を通じた調査が終了しなければ幾何平均値を単純に比較することはできない。本年度は、川内村の冬期の屋内ラドン濃度が他の季節と比べて高いと仮定し、保守的な評価にはなるがラドンの吸入摂取による年間実効線量を評価した。年間実効線量の評価には、原子放射線の影響に関する国連科学委員会（UNSCEAR）の報告に基づいた<sup>16)</sup>。ここで、屋内の平衡ファクタを0.4、所在係数を0.8、線量係数を $9[(\text{nSv/h})/(\text{Bq/m}^3)]$ とすると、0.50 mSvと評価される。

一方、川内村内の2ヶ所で測定された屋外ラドン濃度は、それぞれ $6 \pm 1 \text{ Bq/m}^3$ （第一区集会所）及び $24 \pm 1 \text{ Bq/m}^3$ （一般社団法人かわうちラボ）であった。Oikawaらによれば<sup>17)</sup>、福島県内の屋外ラドン濃度の年間平均値を $6.3 \pm 2.6 \text{ Bq/m}^3$ として報告していることから、一般社団法人かわうちラボで得られた値の妥当性に関しては、継続して調査を実施することで、今後検討することとする。ここで、第一区集会所で得られた屋外ラドン濃度の値を用い、屋外の平衡ファクタを0.6、所在係数を0.2、線量係数を $9[(\text{nSv/h})/(\text{Bq/m}^3)]$ とすると、年間実効線量は0.06 mSvと評価される。

さらに、トロン子孫核種モニタの解析結果より、屋内トロン子孫核種濃度の幾何平均値は $1.7 \text{ Bq/m}^3$ であった。我が国においてこれまでトロン子孫核種の放射能濃度に関する全国調査は実施されていない。Tokonamiは近年報告された屋内トロン濃度に関するレビューを報告しており<sup>8)</sup>、その中で高自然放射線地域を含む15の国や地域で測定されたトロン子孫核種濃度をまとめている。その結果によれば、トロン子孫核種濃度は $0.09 \text{ Bq/m}^3$ から $38 \text{ Bq/m}^3$ まで広く分布している。いずれにしても、トロン濃度（特に、被ばく線量評価に影響するトロン子孫核種濃度）に関する情報は国際的にも十分ではない。ラドンと同様に、本年度の調査で得られたトロン子孫核種濃度の幾何平均値を用いて、所在係数を0.8、線量係数を $40[(\text{nSv/h})/(\text{Bq/m}^3)]$ とすると、0.48 mSvと評価された。したがって、吸入摂取による年間実効線量に対するトロンの寄与はラドンと同程度である可能性が示唆された。いずれにしても、線量評価の結果に対する詳細な議論は、1年間を通じた調査が終了した後に行いたい。

2021年12月に川内村の10家屋において採水した飲料水中のラドン濃度は $21 \text{ Bq/L}$ から $368 \text{ Bq/L}$ 、2022年3月の結果では $23 \text{ Bq/L}$ から $380 \text{ Bq/L}$ であった。採水を実施した全て家屋において地下水を使用しており、地下水中のラドン濃度は比較的高い傾向にある。川内村の我が国には飲料水中のラドンに対する規制はないが、世界保健機関（WHO）では参考レベルとして $100 \text{ Bq/L}$ を報告している<sup>18)</sup>。本調査結果より、川内村の10家屋のうち6家屋においてWHOの参考レベルを超えた。ここで、仮にラドン濃度を本調査の最大値である $380 \text{ Bq/L}$ として、飲料水の摂取量を年間50L、線量係数を $3.5 \times 10^{-6} \text{ mSv/Bq}$ とすると、経口摂取による預託実効線量は $0.07 \text{ mSv}$ と評価され、吸入摂取による実効線量と比べれば、飲水にともなうラドンの寄与は少ない。一例として、 $303 \pm 27 \text{ Bq/L}$ と評価された飲料水をバブリング後に再測定した結果、 $27 \pm 4 \text{ Bq/L}$ まで低減した。さらに、飲料水を摂取する前に煮沸させることでラドンが大気中へと散逸し、飲料水中にはほとんど存在しないことが報告されている<sup>19)</sup>。単に線量評価を行うだけでなく、効果的な低減策を住民に伝えることは重要なコミュニケーション手段であると考えられる。

## V 結論

### 1) 自然放射線と人工放射線による線量率マップの作成

富岡町、川内村及び大熊町の居住区域（富岡町と大熊町では帰還困難区域も含む）を中心としてNaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータを搭載した自動車走行サーベイを実施し、2591デー

タを取得した。周辺線量当量率は0.03–4.02  $\mu\text{Sv/h}$ まで広く分布していることが明らかとなった。また、GoogleMYMapsを活用して研究者間でデータを共有できるシステムを構築した。さらに、NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータによる測定によって、自然放射線と人工放射線とを弁別した周辺線量当量率を57地点で評価した。

## 2) 家屋内外のラドン・トロン及び大気中の放射性セシウムの吸入摂取

弘前大学内に設置されているラドン及びトロン較正場において、パッシブ型ラドン・トロンモニタの較正実験を実施し、トラック密度からラドン濃度及びトロン濃度への換算係数を評価した。さらに、2021年12月から2022年3月にかけて川内村の30家屋にパッシブ型モニタを設置し、冬期のデータを取得した。また、川内村内の2ヶ所において冬期の屋外ラドン濃度を得た。現在、同じ家屋において春期のデータを取得するためにパッシブ型モニタを設置している。2021年12月及び2022年3月には川内村において大気ダストのサンプリングを実施し、放射性セシウム濃度を高純度Ge半導体検出器で分析した結果、検出下限値以下であることを確認した。

## 3) 飲料水中のラドン及び放射性セシウムの経口摂取

$^{226}\text{Ra}$ で値付けがされている液体シンチレーションカウンタを所有する神戸薬科大学との比較実験によって、飲用水中のラドン濃度測定に使用する2台のラドンモニタの較正定数を得た。2021年12月及び2022年3月には、川内村の10家屋より採水した飲用水中のラドン濃度を評価し、その結果6家屋でWHOが報告する参考レベルを超えた。さらに、川内村で採水した10家屋の飲用水中の放射性セシウム濃度を高純度Ge半導体検出器で分析した結果、検出下限値以下であることを確認した。

## VI 次年度以降の計画

本年度は、新型コロナウイルス感染症の拡大の影響を受け、パッシブ型モニタの設置や採水等のサンプリングが当初の計画よりも遅れが生じた。調査が進んでいる川内村では、2022年6月及び9月にパッシブ型モニタの設置・回収や採水等のサンプリングを実施する。富岡町と大熊町では次年度（2022年4月~5月）より各自自治体と連携して川内村と同様の調査を開始する計画である。家屋訪問で住民と対話することで、屋内ラドンや飲用水中の放射性物質の測定においてコントロール地域を設定する必要性を理解した。そこで、コントロール地域として30家屋程度を選定して次年度の夏期からパッシブ型モニタの設置を開始する。さらに、一部の家屋では採水も行う。コントロール地域は、弘前市内だけでなく気象や地質情報などを考慮して地域を選択することとする。

この研究に関する現在までの研究状況、業績

- 1) REMPAN e-NEWSLETTER, Issue 23, [https://cdn.who.int/media/docs/default-source/radiation/rempan-newsletters/who-e-newsletter---issue-23---aug-2021.pdf?sfvrsn=1b7443c3\\_21&download=true](https://cdn.who.int/media/docs/default-source/radiation/rempan-newsletters/who-e-newsletter---issue-23---aug-2021.pdf?sfvrsn=1b7443c3_21&download=true)

## 引用文献

- 1) Ploykrathok T, Ogura K, Shimizu M et al. Estimation of annual effective dose in Namie Town, Fukushima Prefecture due to inhalation of radon and thoron progeny, Radiat Environ Med 2021;10: 9–



- 17.
- 2) Ogura K, Hosoda M, Tamakuma Y et al. Discriminative measurement of absorbed dose rates in air from natural and artificial radionuclides in Namie Town, Fukushima Prefecture, *Int J Environ Res Public Health* 2021;18:978.
  - 3) 株式会社三菱総合研究所. 震災から 10 年, 福島県の復興や放射線の健康影響に対する認識をより確かにするために重要なこと-第 3 回の調査結果の報告 (2020 年実施)-. <https://www.mri.co.jp/knowledge/column/20220118.html> (accessed on 9 April 2022).
  - 4) Tokonami S, Takahashi H, Kobayashi Y et al. Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey, *Rev Sci Instrum* 2005;76:113505.
  - 5) Hosoda M, Kudo H, Iwaoka K et al. Characteristic of thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) in environment. *Appl Radiat Isot* 2017;120:7–10.
  - 6) Omori Y, Hosoda M, Takahashi F et al. Japanese population dose from natural radiation, *J Radiol Prot* 2020;40:99–140.
  - 7) Zhuo W, Iida T. Estimation of thoron progeny concentrations in dwellings with their deposition rate measurements, *Jpn J Health Phys* 2000;35:365–370.
  - 8) Tokonami S. Characteristics of thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) and its progeny in the indoor environment, *Int J Environ Res Public Health* 2020;17:8769.
  - 9) Pornnumpa C, Oyama Y, Iwaoka K et al. Development of radon and thoron exposure systems at Hirosaki University, *Radiat Environ Med* 2018;7:13–20.
  - 10) Kranrod C, Tamakuma Y, Hosoda M et al. Importance of discriminative measurement for radon isotopes and its utilization in the environment and lessons learned from using the RADUET monitor, *Int J Environ Res Public Health* 2020;17:4141.
  - 11) Hegedus M, Tazoe H, Yang G et al. Cesium retention characteristics of KNIFC-PAN resin from river water, *Radiat Prot Dosim* 2020;190:320–323.
  - 12) Tanaka R, Araki S, Yasuoka Y et al. A simplified method for improved determination of radon concentration in environmental water samples, *Radioisotopes* 2013;62:423–438.
  - 13) Furukawa M, Shingaki R. Terrestrial gamma radiation dose rate in Japan estimated before the 2011 Great East Japan Earthquake, *Radiat Emer Med* 2012;1:11–16.
  - 14) 斎藤公明, 栗原治, 松田規宏 他. 福島周辺における線量測定と評価に関する問題点 VI. 個人の外部被ばく線量評価の現状と課題. 2016;65:93–112.
  - 15) Sanada T, Fujimoto K, Miyano K et al. Measurement of nationwide indoor Rn concentration in Japan. *J Environ Radioact* 1999;45:129–37.
  - 16) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly with Scientific, Volume1: Sources, United Nation 2000.
  - 17) Oikawa S, Kanno N, Sanada Tet al. A nationwide survey of outdoor radon concentration in Japan, *J Environ Radioact* 2003;65:203–213.
  - 18) WHO, 2017. Guidelines for Drinking Water Quality. WHO, Geneva, Switzerland.
  - 19) Nugraha ED, Hosoda M, Kusdiana et al. Comprehensive exposure assessments from the viewpoint of health in a unique high natural background radiation area, Mamuju, Indonesia, *Sci Rep* 2021;11:14578.

# Dose assessment for residents of the coastal area of Fukushima Prefecture

Masahiro Hosoda<sup>1</sup>, Shinji Tokonami<sup>1</sup>, Tomisato Miura<sup>1</sup>, Naofumi Akata<sup>1</sup>, Tetsuya Sanada<sup>2</sup>, Hirofumi Tazoe<sup>1</sup>, Yasutaka Omori<sup>1</sup>, Yasuyuki Taira<sup>3</sup>, Kuranrod Chutima<sup>1</sup>, Kazutaka Kikuchi<sup>1</sup>, Koya Ogura<sup>2</sup>, Mayumi Shimizu<sup>1</sup>, Haruka Kuwata<sup>1</sup>, Minoru Osanai<sup>1</sup>, Hiromi Kudo<sup>1</sup>, Masaru Yamaguchi<sup>1</sup>, Takakiyo Tsujiguchi<sup>1</sup>

*1 Hirosaki University, Aomori, Japan*

*2 Hokkaido University of Science, Sapporo, Japan*

*3 Nagasaki University, Nagasaki, Japan*

*Keywords:* high natural background radiation; risk; chronic health effect; human exposure

## **Abstract**

In this study, we will estimate annual effective doses due to inhalation, ingestion, and external exposure for residents of the coastal area of Fukushima Prefecture. These dose estimates will cover artificial radionuclides mainly <sup>137</sup>Cs and natural radionuclides such as radon and terrestrial gamma radiation. The doses from artificial and natural sources will be compared to enable residents in the area judge the influence of the FDNPP accident on overall dose. In terms of inhalation dose estimation, we measure activity concentration of <sup>137</sup>Cs in the atmosphere at six public facilities by filter sampling. Indoor and outdoor radon activity concentrations are measured at 70 houses using radon-thoron discriminative monitors name as RADUET. Additionally, drinking water samples are collected from 30 houses to estimate an ingestion dose from <sup>137</sup>Cs and radon. The annual effective doses from inhalation and ingestion will be estimated using these data while also taking into account seasonal variation. An estimate of the effective dose due to ingestion of natural and artificial radionuclides in foodstuffs will be derived from a literature review. In addition, a car-borne survey along main roads is carried out using a 3-in NaI(Tl) scintillation spectrometer to determine the dose rate distribution in the study area. We also measure the gamma-ray pulse-height distribution over the accessible area of the coastal area and assess the annual effective dose of external exposure by distinguishing between natural and artificial radionuclides.