

[19004]

哺乳動物の歯を用いた、福島第一原子力発電所事故に伴う 環境汚染による被曝線量の計測

ESR retrospective dosimetry of tooth of the cattle bred in areas contaminated due to the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident

豊田新 ^{#A)}, 戸高安曇 ^{A)}, 夏堀雅宏 ^{B)}, 岡田啓司 ^{C)}, 佐藤至 ^{C)}, 佐藤洋 ^{C)}, 佐々木淳 ^{C)}
Shin Toyoda ^{#A)}, Azumi Todaka ^{A)}, Masahiro Natsuhori ^{B)}, Keiji Okada ^{C)}, Itaru Sato ^{C)}, Hiroshi Sato ^{C)}, Jun Sasaki ^{C)}

^{A)} Okayama University of Science

^{B)} Kitasato University

^{C)} Iwate University

Abstract

ESR tooth enamel retrospective doses were obtained for teeth of 16 cattle bred in the two ranches located in the area contaminated by Fukushima Dai-ichi Nuclear Power accidents in 2011. The obtained doses are up to 1.0 Gy for cattle bred in both two ranches. The doses obtained for cattle in Omaru ranch, with higher contamination, are roughly consistent with the cumulative environmental dose. High dose values are also obtained for those in Okuma-Ikeda ranch, with lower contamination, which are not consistent with the cumulative environmental dose, but can be explained by the records that they were once released from the ranch and were captured in highly contaminated area. The ESR tooth enamel dose distribution within jaws were examined for two cattle of 12 years and 7 years old. The older cattle show rather uniform distribution of the doses with slight increase in frontal teeth while the younger shows larger values in molar teeth, being consistent with the time difference in permanent tooth eruption (enamel formation). These results indicate that the cattle tooth enamel ESR dosimetry works practically and would be useful in estimating the actual environmental doses.

Keyword: Fukushima Nuclear Power Plant accident, ESR, EPR, cattle, tooth enamel, dosimetry

1. はじめに

ヒドロキシアパタイト[Ca₁₀(PO₄)₆(OH)₂]からなる歯のエナメル中に放射線によって CO₂⁻ラジカルが生成する。これを電子スピン共鳴 (ESR, electron spin resonance, EPR, electron paramagnetic resonance と同義) を用いて検出することにより、過去の被曝線量を求める手法は、人の歯については確立されている^[1,2]。哺乳動物の歯を用いても同様に線量計測が行うことができると考えられ、いくつかの試みがあるが^[3-6]、いずれも測定の可能性を示したものであった。実際の放射線事故による被曝の検出については、福島第一原子力発電所事故に伴う汚染によるイノシシの被曝の測定が最初の例であるが^[7]、イノシシが捕獲された場所の環境放射線量とイノシシの推定年齢の積として予想される被曝線量に比べて、ESR を用いてイノシシの歯から実際に検出される線量をはるかに高く、哺乳動物の歯を用いた ESR 線量計測が実際の放射線事故の際に有用であるかどうかについてははっきりしない。

本研究では、福島第一原子力発電所事故による放射性核種の汚染地域で研究用に飼育されてきた黒毛和牛の歯を用いて研究を行った。ガンマ線照射に対する線量応答を調べ、牛の歯について、人の歯に対して用いられているような、検量線を用いて被曝線量を求めるキャリブレーション法が適用できるかどうかを調べた。そして、この手法を用いて、これらの牧場で飼育されていた牛について、実際に歯の被曝線量を求めた。さらに、これらの値を、飼育され

た牧場で計測されてきた環境放射線量から求められる計算値と比較した。

2. 試料と実験方法

2.1 試料の採取

福島県大熊町池田の牧場 (2017 年 11 月における地上 1m における空間線量率 1.0–1.9mSv/h) 及び浪江町小丸の牧場 (同 9.5–19mSv/h) の計 2 か所で飼育されていた黒毛和牛計 19 頭からそれぞれ主に M1 及び P4 の位置の歯を採取した。2 頭については、歯の位置による被曝線量の差異を調べるために左下顎の歯をすべて用いた。顎から歯を取り出し、カッターで半分切断した。その後、象牙質をドリルで削り、象牙質部分を大まかに除去した後、20%KOH 水溶液に浸し、60℃で超音波洗浄機にかけて、象牙質を溶解した。洗浄、乾燥させた後に 1mm の篩に通るまで細かく砕いて測定用の試料とした。

2.2 ガンマ線照射

上記のうち 6 頭の 12 個の歯から抽出したエナメルを 100 mg ずつ 7 つに分け、そのうちの 6 個についてガンマ線照射を行った。量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所コバルト 60 ガンマ線照射施設において、1.03 Gy/h の線量率で 5.2 Gy までの吸収線量とした。

2.3 ESR 測定

粉末のエナメル質試料を石英ガラス管に入れ、岡

[19004]

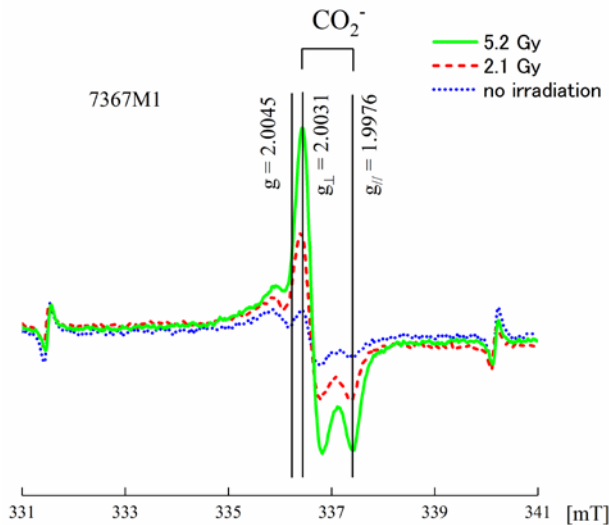


Figure 1 Typical ESR spectra of cattle tooth enamel. The signal increases with doses given.

山理科大学総合機器センターの日本電子製 ESR 測定装置 JES-PX3200 を用いて、室温で各試料について ESR スペクトルを測定した。マイクロ波出力を 2 mW、磁場変調幅を 0.2 mT^[8]、磁場掃引幅 10 mT、時間 30 秒で 40 回掃引、時定数 0.03 秒、拡大率 2000 とした。マンガンマーカがスペクトルの両端に入るように中心磁場を調節した。測定は 3 回行い、スペクトルを加え合わせて、人の歯の線量計測に用いられる信号分離プログラム New-ER^[9]を用いて信号処理を行い、重なって観測される有機物と考えられる信号の成分を取り除いて線量計測に用いられる CO₂⁻ラジカルの信号強度を求めた。

3. 結果と議論

3.1 信号の線量応答

牛の歯に見られる典型的な ESR スペクトルを Figure 1 に示す。人の歯のエナメル信号とほぼ同様の波形が観測され、人の歯の ESR スペクトル解析に使用される New-ER のプログラムを用いて信号の分離を行うことができた。

ガンマ線による CO₂⁻ラジカル信号強度の増大の様子を Figure 2 に示す。どの試料についてもガンマ線の吸収線量に対して信号が直線的に増大した。いくつかの試料については吸収線量 0 (未照射) に対して正の切片となっているが、これは、環境の放射性核種からの放射線による被曝があることを示している。各試料の線量応答に最小二乗法によって直線をあてはめ、傾きを求めた。この直線の傾きがガンマ線に対する感度となる。これら 12 試料の感度の平均値をとって、人の歯に対する感度の比を求めたところ、1.06±0.11 となった。人の歯とほとんど同じ感度があることがわかった。感度のばらつきは 10% となったが、これは報告されている人の歯の感度のばらつき 10%^[10]と同様で、キャリブレーション法によ

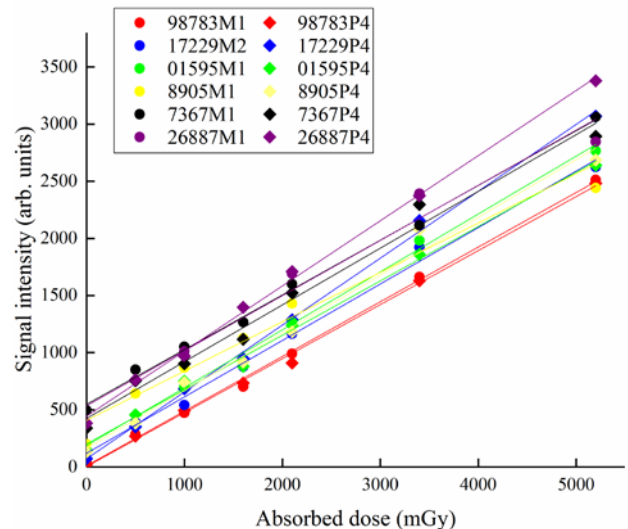


Figure 2 Dose responses of the dosimetric CO₂⁻ signal in cattle tooth enamel.

って、人の歯と同様の精度で線量を求めることができることを示している。

3.2 牛の歯の被曝線量

それぞれの試料に観測された CO₂⁻ラジカル信号の信号強度を、前の節で求めた、ガンマ線に対する感度で割ることによって、それぞれの被曝線量を求めた。これは、被曝がないときの信号強度を 0 と仮定したキャリブレーション法を用いていることになる。結果を Figure 3 に示す。

小丸の牧場の牛の試料については、3 個体で 700 mGy 以上の高い被曝線量となった一方で他の 2 個体では 500 mGy 未満となった。大熊の牧場の牛の試料については、低い値を示すものが多かったが、1 Gy 程度の高い値を示す試料もあった。年齢の高い牛で高い値を示すものがあり、若い牛の被曝線量は小さかった。同じ個体の M1 と P4 の被曝線量を比較すると、試料によっては M1 の方が高い値を示すものがあった。これは、歯の萌出時期と対応している可能性がある。つまり、M1 は P4 のすぐ奥の位置にあるが、乳歯から永久歯になる過程で、乳歯のない M1 の位置に最初に永久歯が萌出し、P4 の位置には乳歯と代わって最後の永久歯が萌出する。外部の放射線にさらされる期間としては、M1 が最も長く、P4 が最も短くなる^[11]。

3.3 環境放射線量との比較

小丸の牧場においては環境放射線量がモニターされており、すでに報告がある^[12]。事故後徐々に減衰してきており、この環境放射線の線量率を積分することによって、牛の被曝を計算によって推定できると考えた。事故直後から蓄積の被曝線量を Figure 4 に示す。歯の形成時期と試料の採取時期がわかれば、図に示すようにこの蓄積線量の計算値の差として被曝線量を推定することができる。各個体の生年と歯

[19004]

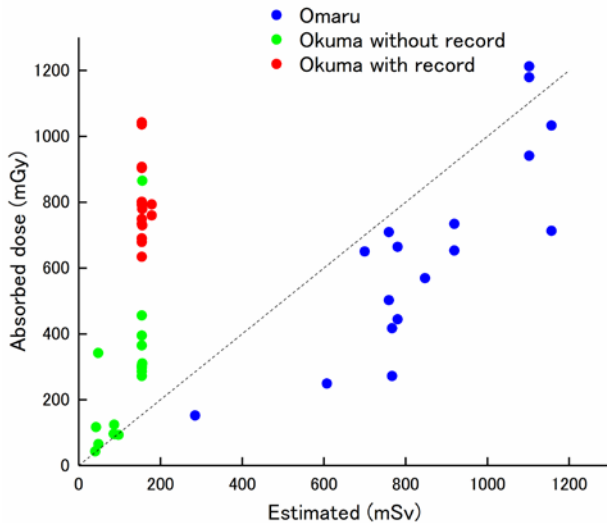


Figure 3 Cattle ESR tooth enamel doses obtained in the present study in the vertical axis, versus the doses estimated from the accumulation of environmental dose rates in the horizontal axis.

の位置から文献^[11]をもとに求めた歯の形成時期と試料の採取時期から Figure 4 を用いて歯の被曝線量を推定した。大熊の牧場については、環境放射線の線量率が小丸の牧場の 7.2 分の 1 であることから、減衰の傾向が同一であると仮定して計算を行った。このようにして求めた推定値に対して計測値を取ると、Figure 3 に示す結果が得られた。

小丸の牧場の試料については、計測値が推定値と相関し、ほぼ一致している試料もある。一方、大熊の牧場の試料については、特に移動履歴がある個体について相関から大きく外れ、推定値よりも大きい計測値が得られた。小丸の牧場の個体については、ほぼその牧場で飼育されてきたのに対して、大熊の牧場の個体には、放浪して環境放射線線量率の高い地域で捕獲されて移動して飼育されてきたものがあり、こうした移動履歴のある個体について高くなっていることがわかる。放浪していた期間に被曝し、計算値よりも高い線量が得られたと考えられる。

3.4 歯の位置による被曝線量の差異

小丸の牧場の 7 歳及び大熊の牧場の 12 歳の 2 つの被曝線量の高い個体について、左下顎のすべての歯を採取し、同様の処理を行って被曝線量を求めた。また、小丸の 7 歳の個体から採取した歯については、形成時期からそれぞれの歯についての被曝線量の計算値を求めた。結果を Figure 5 に示す。

12 歳の個体については、前方の位置の歯の線量が高く、奥の位置に向かって徐々に小さくなるが、全体としてはなだらかな変化となっている。一方、7 歳の個体については、同様の傾向は見られるものの、M1, M2 の位置で線量が高くなっていることがわかる。またこの位置では、計算による値も高くなっている。計測値と計算値の絶対値はあまり一致してい

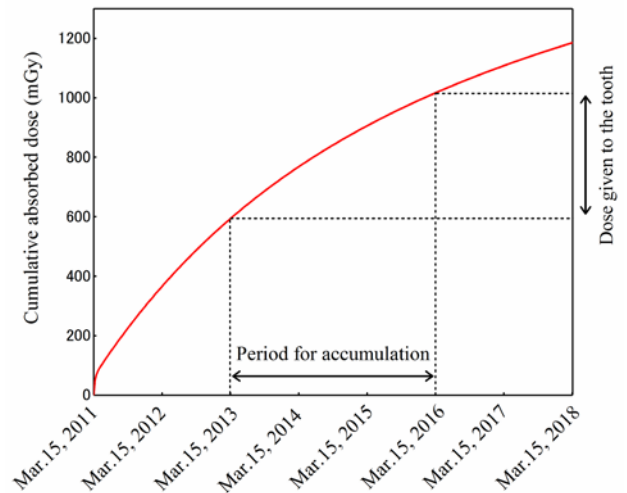


Figure 4 Simulated cumulative environmental gamma ray dose (after Natsuhori et al., 2017). The figure shows the total value including contributions from ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{131}I , ^{132}I , and ^{132}Te .

ないが、大小の傾向は一致している。先に述べたように、乳歯のない位置には、乳歯を置き換えて永久歯が萌出するより先に永久歯が萌出する。12 歳の牛は事故時に 7 歳であり、すべての永久歯が萌出していた。このため、すべての歯が同じように被曝したとすれば、このなだらかな分布になることがわかる。一方、7 歳の牛は事故時に 9 か月であり、乳歯から永久歯に生え変わる前であったと考えられる。このため、小丸の 7 歳の牛については、計算によってその傾向が示されるように、M1、M2 の位置の歯の被曝線量が他の位置の歯より大きくなったのであろう。

前方の歯の線量が奥の歯より高い傾向は、両方の個体で見られるが、この原因は萌出（形成）時期の差異では説明できない。牛が草を食べる際に、口を下に向けるため、前方の歯が放射性核種に汚染された地面に近いために線量率が高かったといったことは考えられるかもしれない。

4. まとめ

哺乳動物の歯のエナメルを用いた ESR 被曝線量計測の可能性は以前から示されていた。本研究によって、牛の歯が人の歯と同様の感度を持ち、被曝線量計測に有用である可能性を示した。

この手法を応用したところ、福島第一原子力発電所事故によって放出された放射性核種に起因する被曝を実際に検出することができた。避難がすぐに行われたため、人に対する被曝は小さかったと言われているが、汚染された環境では動物に対する大きな被曝が予想され、それが実際に測定値として、1 Gy 程度の値を検出した。そして、求められた計測値は大まかにではあるが、モニターされてきた環境放射線の線量率の蓄積からの計算値と一致する結果となった。個体の歯の位置による被曝線量の差異が認

[19004]

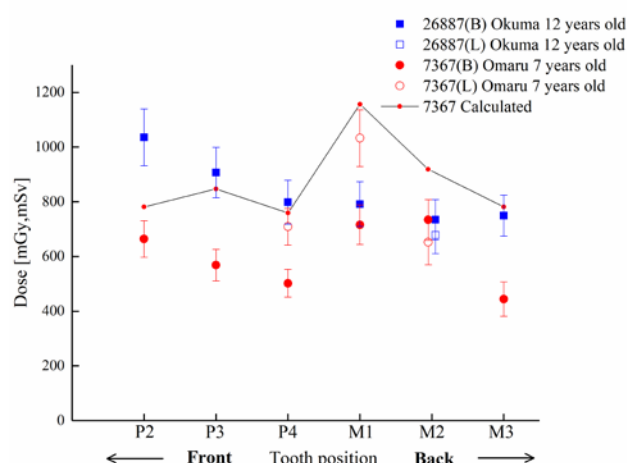


Figure 5 Distribution of the tooth enamel doses according to the position. The measured values are expressed in mGy, and the calculated values in mSv. B: Samples of the buccal side. L: Lingual side

められ、これは歯の萌出（形成）時期を反映した歯の被曝の期間に対応する差異であることがわかった。検出限界を定量的に求めるといった将来の課題はあるものの、本研究の結果は、哺乳動物の歯を用いたESR被曝線量が、少なくとも牛に対して有効であることを明確に示していると言える。

参考文献

- [1] H.Kobayashi, et al., “リニアック技術研究会論文投稿要領”, Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, Tsukuba, Aug. 1-3, 2001
- [1] IAEA, Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment, IAEA-TECDOC-1331, IAEA, 2002.
- [2] ISO, Radiological protection – Minimum criteria for electron paramagnetic resonance (EPR) spectroscopy for retrospective dosimetry of ionizing radiation – Part 1: General principles, International Standard, ISO 13304-1, 2013.
- [3] S. Toyoda, H. Tanizawa, A. A. Romanyukha, C. Miyazawa, M. Hoshi, Y. Ueda, and Y. Nitta (2003) Gamma ray dose response of ESR signals in tooth enamel of cows and mice in comparison with human teeth, Radiat. Meas., 37 (4-5), 341-346.
- [4] Klevezal, G., Serezhnikov, V., & Bakhur, A. (1999). Relationships between ESR-evaluated doses estimated from enamel and activity of radionuclides in bone and teeth of reindeer. Applied Radiation and Isotopes, 567-572.
- [5] Serezhnikov, V., Moroz, I., Klevezal, G., & Vanin, A. (1996). Estimation of Accumulated Dose of Radiation by the Method of ESR-spectrometry of Dental Enamel of Mammals. Applied Radiation and Isotopes, 1321-1328.
- [6] Khan, R. F., Rink, W., & Boreham, D. (2003). Biophysical dose measurement using electron paramagnetic resonance in rodent teeth. Applied Radiation and Isotopes, 189-196.
- [7] Harshman, A., Toyoda, S., Johnson, T. (2018) Suitability of Japanese Wild Boar Tooth Enamel for Use as an Electron Spin Resonance Dosimeter, Rad. Meas., 116, 46-50.
- [8] Zhumadilov, K., Ivannikov, A., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Zhumadilov, Z., Endo, S., Tanaka, K., Hoshi, M.

(2005) Tooth enamel EPR dosimetry: optimization of EPR spectra recording parameters and effect of sample mass on spectral sensitivity, Journal of Radiation Research, 46, 435-442.

- [9] Ivannikov, A. I., Skvortsov, V. G., Stepanenko, V. F., Tikunov, D. D., Takada, J., and Hoshi, M. (2001) EPR tooth enamel dosimetry: optimization of the automated spectra deconvolution routine, Health Physics, 81, 124-137.
- [10] Wieser, A., El-Faramawy, N., Meckbach, R. (2001) Dependencies of the radiation sensitivity of human tooth enamel in EPR dosimetry, Appl. Radiat. Isot. 54, 793-799.
- [11] Dyce K. M., Dack W. O., Wensing C. J. G. eds., (2002) Textbook of veterinary anatomy, Third Edition, Saunder, Pennsylvania, Chapter 25, The head and ventral neck of the ruminants, pp627-648.
- [12] Natsuhori, M., Kojima, T., Sato, I., Okada, K., Sasaki, A., Sato, H., Sajito, M., Kobayashi, E., Kakizaki, T., Wada, S., Ito, N., Sanada, N. (2017) Radioactive contamination profiles of soil, external and internal exposure to Japanese Black Cattle after Fukushima Daiichi Nuclear Plant Accident, Japanese Journal of Large Animal Clinics, 8, 143-147 (in Japanese).