

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：11101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K08766

研究課題名(和文) 火山活動によって放出されたラドンによる住民の内部被ばく線量評価

研究課題名(英文) Internal dose estimation for residents due to radon released from an active volcano

研究代表者

細田 正洋 (Hosoda, Masahiro)

弘前大学・保健学研究科・講師

研究者番号：30457832

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：鹿児島県に位置する桜島の火山活動は2009年以降活発になっている。桜島の火山活動に伴って放出した大気中のポロニウム210の放射能が高い事が1980年代に観測された。ポロニウム210は放射性希ガスであるラドンの子孫核種の一つである。ラドンはタバコに次ぐ肺がんのリスク因子であることが広く知られている。火山活動にともなう地殻変動によって地表面からラドンの放出が増加する可能性があり、近隣住民がラドンの吸入摂取によって肺がんのリスクが増加する可能性が示唆される。本研究では、地表面から散逸したラドンと桜島の火山活動との関係を検討するために、ラドン散逸率や気象データの連続測定を行った。

研究成果の概要(英文)：The Sakura-jima volcano, which is located in southern Japan, has been very active since 2009. High Po-210 activity concentrations were observed in air samples from Sakura-jima volcano collected in the 1980s. Polonium-210 is one of the decay products of Rn-222 (radon) which is a radioactive noble gas. Radon inhalation is believed to increase the risk of lung cancer and is second only to tobacco smoking as a risk factor. Increases in radon concentrations from the soil surface might be associated with the diastrophism caused by the volcanic activity. This may suggest that the increases in radon concentrations associated with the activity of the Sakura-jima volcano may be increasing the lung cancer risk for people living nearby. In this study, radon exhalation rate from the ground surface and meteorological data were measured continuously to investigate the relationship between the exhaled radon and activity of the Sakura-jima volcano.

研究分野：保健物理学

キーワード：ラドン 桜島 火山活動 線量評価 肺がん 気象観測 水分含量

### 1. 研究開始当初の背景

わが国は世界有数の火山国であり火山学や地球科学など様々な自然科学の分野で研究が行われてきた。特に、鹿児島県にある桜島は国内有数の活火山であり、その周辺の鹿児島市、垂水市、霧島市には約 70 万人以上の住民が生活をしている。桜島の火山活動は近年では 1970 年代から 1980 年代にかけて特に活発であり、爆発回数及び降灰量はそれぞれ、合計で 4000 回以上、 $6000 \text{ g m}^{-2}$  以上であった。これは、1990 年代以降と比べると圧倒的に多い<sup>1)</sup>。この時期は、火山灰の吸入摂取による健康影響に関する報告は多かったが、環境放射能の観点からの研究は現在でも少ない。小村らは、旧国分町で生産されているタバコ葉中の  $^{210}\text{Pb}$  及び  $^{210}\text{Po}$  の放射能が高い事を報告し、その要因の一つとして桜島の火山活動を挙げている<sup>2)</sup>。さらに、桜島の火山灰中の核種分析と降灰量から  $^{210}\text{Po}$  の年間放出量を推定した結果、その寄与は世界の火山由来の  $^{210}\text{Po}$  の約 1/20 程度になると報告している。 $^{210}\text{Po}$  は天然に存在している放射性核種であり、ラドン ( $^{222}\text{Rn}$  のこと) が壊変することで生成される。つまり、桜島の火山活動にともない  $^{210}\text{Po}$  の放射能濃度が高くなったという知見から、その親核種であるラドンの放出量も多い可能性が十分に考えられる。ラドンは  $^{226}\text{Ra}$  を親核種とする放射性希ガスであり、吸入により肺内に取り込まれることで肺がんを誘発するとされ、欧米ではタバコに次ぐ肺がんの要因として一般にも認識されている。そこで、世界保健機関は 2009 年に屋内ラドンに関するハンドブックを発行し、その中で屋内ラドン濃度の参考レベルを  $100 \text{ Bq m}^{-3}$  に設定した<sup>3)</sup>。また、国際放射線防護委員会では 2011 年に報告書 115 を刊行し、その中で屋内ラドンの対策レベルとして  $100 \sim 300 \text{ Bq m}^{-3}$  ( $3 \sim 10 \text{ mSv}$ ) を勧告した<sup>4)</sup>。

### 2. 研究の目的

鹿児島県の桜島では、近年火山活動が活発になっており、肺がん誘発物質の一つであるラドンが多く放出されている可能性が指摘されている。本研究では、降灰量が最も多い垂水市内において地表面から放出されるラドンや  $\text{CO}_2$ 、気象データを連続的に観測し、桜島の火山活動との関連について検討した。

### 3. 研究の方法

#### (1) ラドン散逸率の連続測定

鹿児島県の桜島から南南東約 10 km に位置する鹿児島県垂水市内の民家の許可を得て、その敷地内においてラドン散逸率 (フラックス) の連続測定を実施した (図 1)。測定システムの概略を図 2 に示す。ラドン散逸率の測定には換気式ラドン散逸率連続測定システム<sup>5)</sup>を用いた。これは、主にステンレス製蓄積容器 (体積: 約 16 L) とパルス型電離箱 (AlphaGUARD, SAPHYMO, Germany) からなる。土壌から散逸したラドンは蓄積容器に蓄積

され、ポンプ (サンプリング流量:  $0.1 \text{ L min}^{-1}$ ) によって約 20 m のチューブ (内径: 約 8 mm) を通過してパルス型電離箱に到達して測定される。なお、チューブの長さ及びサンプリング流量は、地表面からのラドンの強制的な吸出し (吸い出し効果) やラドン計測における放射性同位体であるトロン ( $^{220}\text{Rn}$ ) の影響を考慮して決定した。ラドンは 60 分間隔で測定した。ラドン散逸率  $J_{\text{Rn}}$  は (1) 式から評価した。

$$J_{\text{Rn}} = 1000 \cdot \frac{1}{S} \cdot \left[ \frac{A_{\text{Rn}} V (\lambda_{\text{Rn}} + Q)}{1 - e^{-(\lambda_{\text{Rn}} + Q)t}} - \left( A_{\text{Rn}}^0 \cdot \frac{v}{60} \right) \right] \dots (1)$$

ここで、 $A_{\text{Rn}}$  は測定されたラドン濃度 ( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $V$  は蓄積容器の体積 ( $\text{m}^3$ )、 $\lambda_{\text{Rn}}$  はラドンの壊変定数 ( $\text{s}^{-1}$ )、 $Q$  は蓄積容器の換気率 ( $\text{s}^{-1}$ )、 $S$  は蓄積容器下の面積 ( $\text{m}^2$ )、 $t$  は測定開始からの経過時間 (s)、 $A_{\text{Rn}}^0$  は屋外のラドン濃度 ( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $v$  はサンプリング流量 ( $\text{m}^3 \text{ min}^{-1}$ ) である。



図 1 観測の様子

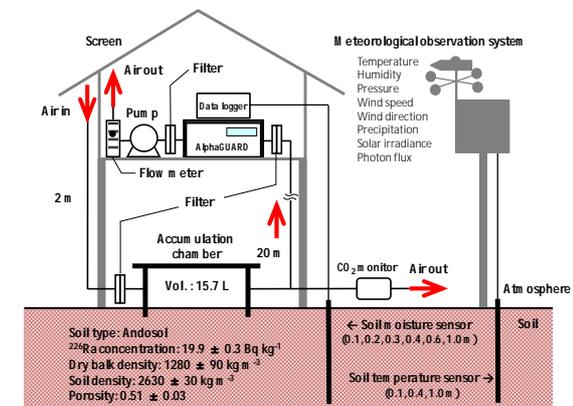


図 2 観測システムの概略

#### (2) 気象データの連続測定

気象データは、気象観測システム (WatchDog 2000 Series Weather Stations, Spectrum Technologies Inc., USA) を用いた。この気象観測システムでは、気温、気圧、相対湿度、風速、風向、降水量等の連続測定が可能であり、1 時間間隔でデータを取得した。ただし、降水量に関しては、雨量センサの定期的な清掃が必要であることから、観測地点から南西に 300 m 程度離れている垂水市消防局の観測データを提供してもらった。

#### (3) 土中温度及び水分含量の連続測定

土中温度の連続測定のために温度センサを地表面から 10 cm、40 cm、100 cm に埋設し気象観測システムに接続した。土中の水分含量はプロファイル水分計 (6 層測定タイプ、

DIK-351E, 大起理化学工業株式会社) を用いて 0.1 m, 0.2 m, 0.3 m, 0.4 m, 0.6 m 及び 1 m の深度における体積含水率を 1 時間間隔で測定した。

#### (4) CO<sub>2</sub> フラックスの連続測定

地表面から放出された CO<sub>2</sub> をラドンと同時にステンレス製蓄積容器内に蓄積し、データロガー機能付き CO<sub>2</sub> モニタ (TR-76Ui, 株式会社ティアンドディ) を用いて 1 時間間隔で連続測定をした。CO<sub>2</sub> フラックス  $J_{CO_2}$  は (2) 式から評価した。

$$J_{CO_2} = 1000 \cdot \frac{Q \cdot V \cdot B}{S} \quad \dots (2)$$

ここで、 $Q$  は蓄積容器の換気率 (s<sup>-1</sup>)、 $V$  は蓄積容器の体積 (m<sup>3</sup>)、 $S$  は蓄積容器下の面積 (m<sup>2</sup>) である。また、 $B$  は補正後の CO<sub>2</sub> 濃度 (mol m<sup>-3</sup>) であり、(3) 式で評価した。

$$B = B_0 \cdot \frac{1}{22.4} \cdot \frac{273.15}{273.15 + T} \cdot \frac{P}{1013} \quad \dots (3)$$

ここで、 $B_0$  は測定された CO<sub>2</sub> 濃度 (ppm)、 $T$  は気温 (°C)、 $P$  は気圧 (hPa) である。

#### (5) 観測地点の土壌型及び土壌物理パラメータの評価

土壌型の評価は、粒度試験 (JIS A 1204) に従って評価した。また、測定地点の土壌粒子密度は土壌粒子密度試験 (JIS A 1202) に従って評価した。乾燥バルク密度は、100 mL のステンレス容器を土中に打ち込み土壌を採取し、110 °C で 24 時間の乾燥処理後、その重さを測ることで評価した。さらに、土壌粒子密度と乾燥バルク密度を用いて、観測地点の間隙率を評価した。

#### (6) 土壌中の <sup>226</sup>Ra 放射能濃度の評価

採取した土壌試料を 110 °C で 24 時間の乾燥処理後、9 メッシュ (2 mm) の篩を用いて土壌粒子サイズを整えた。この土壌試料を U-8 容器 (直径: 48 mm、高さ: 68 mm) に充填し、30 日間以上放置した後、高純度 Ge 半導体検出器 (ORTEC GEM-40190, SEIKO-EG&G 株式会社, 日本) で試料を 80000 秒間測定した。<sup>226</sup>Ra 放射能濃度の評価はその子孫核種である <sup>214</sup>Pb 及び <sup>214</sup>Bi の放射能濃度を荷重平均することで評価した。

#### (7) 家屋内外のラドン濃度の測定

パッシブ型ラドン・トロン弁別モニタ (RADUET, Radosys, Hungary, 図 3)<sup>6)</sup> を観測地点の家屋内、家屋外及び百葉箱内に設置し、約 1 年間の測定を実施した。設置家屋の構造は木造住宅であった。RADUET は高換気率と低換気率の 2 つの容器が組み合わされたものであり、その中に固体飛跡検出器 (CR-39) が充填されている。RADUET の回収後に CR-39 を取り出し、60 °C の 6M NaOH 溶液に 24 時間浸し化学エッチング処理を行った。その後、デジ

タルカメラを取り付けた光学顕微鏡を用いて CR-39 のエッチピットを撮影した。得られた写真を 1 枚ずつ写真解析ソフトである ImageJ によってエッチピット数を数え、ラドン濃度を計算した。

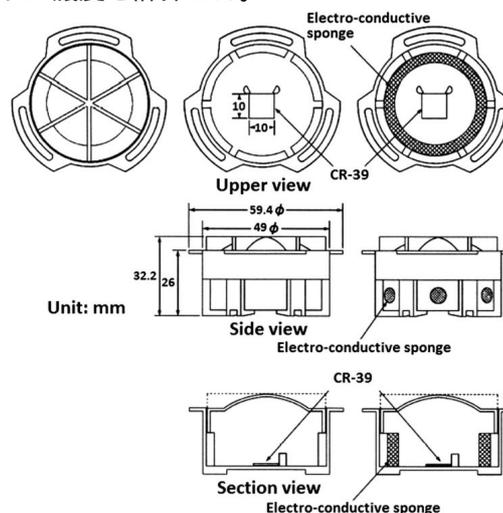


図 3 屋内外のラドン濃度測定に用いた RADUET の構造<sup>6)</sup>

#### 4. 研究成果

##### (1) 観測地点の土壌型及び土壌物理パラメータの評価結果

粒径加積曲線から得られた 12 試料の粘土質、シルト質、砂質の割合を平均すると、粘土質が 7%、シルト質が 4%、砂質が 89% であった。得られた土性の割合の平均値を三角土性図表に当てはめた結果、観測地点から採取した土壌試料の土性は全て砂土あるいは壤質砂土に分類された。農研機構によって公開されている土壌図によれば<sup>7)</sup>、観測地点周辺の土壌は灰色低地土に分類され、その中でも中粗粒灰色低地土 (灰褐色系) に分類される。この土壌は、地表から 35-60 cm にある層の土性が砂質から壤質で土色が灰褐色を呈する沖積堆積物からなり、地下水位が低く、排水は良好である特徴をもっている<sup>7)</sup>。さらに、土壌粒子密度は  $2630 \pm 30 \text{ kg m}^{-3}$ 、乾燥バルク密度は  $1280 \pm 90 \text{ kg m}^{-3}$ 、間隙率は  $0.51 \pm 0.03$  であり、いずれも一般的な土壌の範囲であった。

##### (2) 土壌中の <sup>226</sup>Ra 放射能濃度の評価結果

<sup>226</sup>Ra 放射能濃度 (± 標準不確かさ) は  $19.9 \pm 0.3 \text{ Bq kg}^{-1}$  であった。原子放射線の影響に関する国連科学委員会の 2000 年の報告書<sup>8)</sup>によれば、わが国の <sup>226</sup>Ra 放射能濃度の算術平均値は  $33 \text{ Bq kg}^{-1}$  と報告されており、観測地点は平均値と比べて 60% 程度であった。

##### (3) 家屋内外のラドン濃度の評価結果

家屋内、家屋外及び百葉箱内に設置した RADUET で得られたラドン濃度 (± 標準不確かさ) は、それぞれ  $5 \pm 1 \text{ Bq m}^{-3}$ 、 $7 \pm 2 \text{ Bq m}^{-3}$ 、 $5 \pm 2 \text{ Bq m}^{-3}$  であった。Sanada らは、わが国の屋内ラドン濃度の算術平均値は 15.5

Bq m<sup>-3</sup>であったと報告している<sup>9)</sup>。さらに、Oikawaらは、わが国の屋外ラドン濃度の算術平均値は6.1 Bq m<sup>-3</sup>であったと報告している<sup>10)</sup>。本調査結果では、家屋内外でラドン濃度に差が認められず、わが国の屋内ラドン濃度の算術平均値と同レベルであった。これは調査対象家屋の構造が木造であることや窓の開閉による換気回数が多かった事によると考えられる。ここで、ラドンの吸入摂取による年間実効線量  $E$  (mSv) を(4)式から評価した。

$$E = \{ (Q \cdot F \cdot T \cdot K)_{in} + (Q \cdot F \cdot T \cdot K)_{out} \} \dots (4)$$

ここで、 $Q$  はラドン濃度 (Bq m<sup>-3</sup>)、 $F$  は屋内外の平衡ファクタで、それぞれ0.4及び0.6とした。 $T$  は屋内外の所在係数であり、それぞれ0.9及び0.1とした。 $K$  は線量係数であり、 $(9 \times 10^{-6} \text{ mSv (Bq h m}^{-3})^{-1})$ である。ラドンの吸入摂取による年間実効線量は約 0.16 mSv であると評価された。

#### (4) ラドン散逸率の連続観測結果

ラドン散逸率の測定結果(2016年4月から2018年3月)を図4に示す。CO<sub>2</sub>フラックス、気象観測データも同図に示した。さらに、桜島の火山活動に関連する情報として、火山性地震の回数、火山性微動の回数、爆発的噴火の回数を気象庁のホームページ<sup>11)</sup>からダウンロードした結果も示した。

調査期間中に得られたラドン散逸率は 0.5 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> から 115 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> まで大きく変動した。また、CO<sub>2</sub>フラックスはラドン散逸率と同様の変動を示した。これは、ラドンのトレーサとしてCO<sub>2</sub>のモニタリングが有効であることを示唆する。ラドン散逸率の変動が大きかった時期は、2016年4月から8月頃と2017年1月から11月頃であった。特に、2017年1月以降は火山活動が活発な時期と一致した。一方、2016年4月から8月にかけても2017年以降程ではないものの、火山性地震、火山性微動、爆発的噴火が観測された。しかし、同時に降水量も他の観測期間と比べて多かった。

本調査に用いた手法によって評価されたラドン散逸率は、降雨の影響を受ける可能性がある。つまり、降雨により蓄積容器周辺の土壌表面の水分含量が増え、その下層で発生したラドンは水分含量が相対的に少ない蓄積容器直下の土壌表面から散逸すると考えられる。その結果、降雨後にラドン散逸率が上昇する可能性が示唆される。2017年1月から11月頃にかけても降雨が認められていることから、ラドン散逸率の上昇は火山活動の影響だけであるとはいえない。しかし、体積含水率の変動幅及びラドン散逸率の変動幅が必ずしも降水量に依存しないことから、それ以外の要因についても検討する必要がある。なお、降雨の影響を受けていないと思われるデータから評価したラドン散逸率は5.9

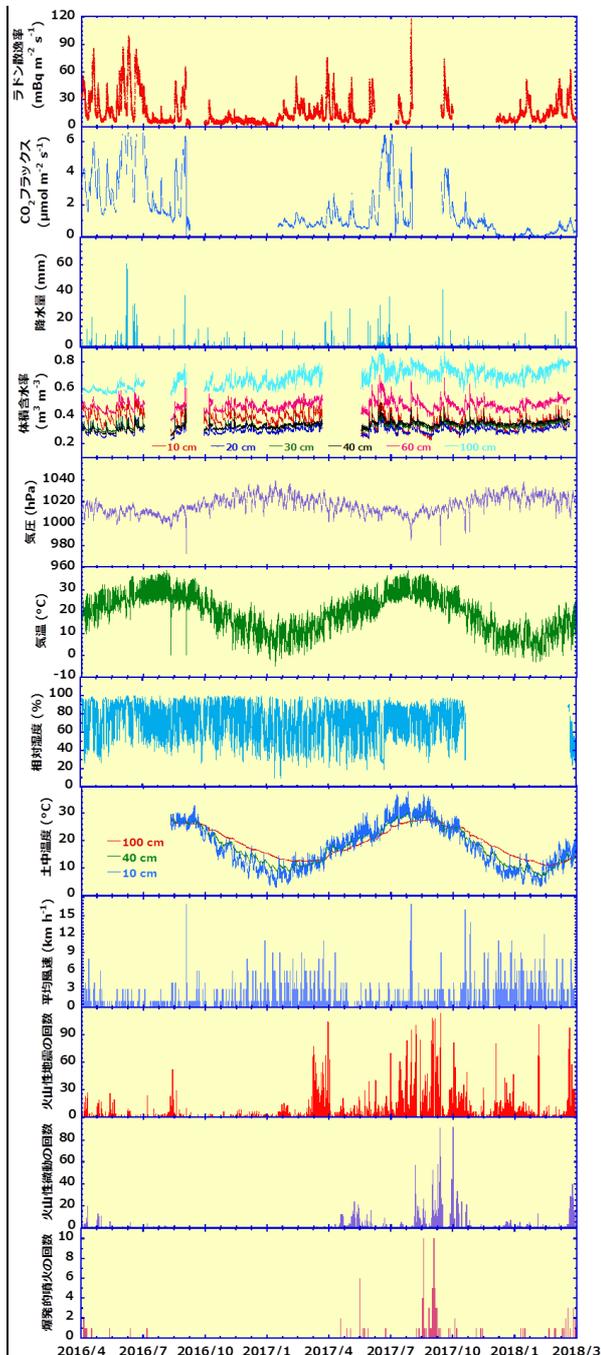


図4 ラドン散逸率、CO<sub>2</sub>フラックス、気象観測データ及び火山活動に関するデータの連続観測結果

± 2.9 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>であった。In-situ型ラドン・トロン散逸率モニターを用いて垂水市内の8カ所で得られたラドン散逸率は1.7-14.6 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>であった。また、その算術平均値(±標準偏差)は5.3 ± 4.5 mBq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>であり、本観測地点で得られたラドン散逸率は同市内の多地点で得られた平均値と同レベルであった。つまり、本調査で観測されたラドン散逸率は明らかに降雨の影響を受けていないと考えられる値の変動幅を大きく上回った。火山活動による影響が否かを検討するために、降雨の影響を補正するための実験治具を作成した。今後は、この実験治具を用いてデータを取得し降雨に対する補正手法

を確立するとともに、継続してデータを取得し、補正手法の有効性を検討していく予定である。さらに、観測ステーション中に感震センサを導入して連続モニタリングを実施することを計画しており、今後の火山活動による防災対策に役立てたいと考えている。

#### <引用文献>

- K. Higuchi, S. Akiba. Chronic Respiratory Disease Mortality in the Vicinity of Mt. Sakurajima. *Med. J. Kagoshima Univ.*, 63(3), 43-58 (2012).  
小村和久, 内田賢吾, 山本政儀, 上野馨, 坂元隼雄; 桜島から放出されるラドンの娘核種, 下道國, 辻本忠(編)“環境ラドン”, pp. 167-178 (1992), 電子科学研究所, 大阪.
- World Health Organization; WHO Handbook on Indoor Radon, A public health perspective (2009).
- International Commission on Radiological Protection; Lung Cancer Risk from Radon and Progeny, ICRP Publication 115 (2011).
- M. Hosoda, T. Ishikawa, A. Sorimachi, S. Tokonami, S. Uchida. Development and application of a continuous measurement system for radon exhalation rate. *Rev. Sci. Instrum.*, 82(1), 015101 (2011).
- S. Tokonami, H. Takahashi, Y. Kobayashi, W. Zhuo. Up-to-date radon-thoron discriminative detector for a large scale survey. *Rev. Sci. Instrum.*, 76, 113505 (2005).
- 農研機構ホームページ、日本土壌インベントリー、土壌図: <https://soil-inventory.dc.affrc.go.jp/figure.html>
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation; UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes Volume I: Sources, Scientific Annexes B Exposures from natural radiation sources. pp.115-116, United Nations, New York (2000).
- T. Sanada, K. Fujimoto, K. Miyano, M. Doi, S. Tokonami, M. Uesugi, Y. Takata. Measurement of nationwide indoor Rn concentration in Japan, *J. Environ. Radioact.*, 45(2), 129-137 (1999).
- S. Oikawa, N. Kanno, T. Sanada, N. Ohashi, M. Uesugi, K. Sato, J. Abukawa, H. Higuchi. A nationwide survey of

outdoor radon concentration in Japan. *J. Environ. Radioact.*, 65(2), 203-213 (2003).

気象庁、気象庁ホームページ、火山の状況に関する解説情報の発表状況：  
[http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/volinfo/506\\_kaisetsu.html](http://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/STOCK/volinfo/506_kaisetsu.html)

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

##### [雑誌論文](計2件)

Masahiro Hosoda, Hiromi Kudo, Kazuki Iwaoka, Ryohei Yamada, Takahito Suzuki, Yuki Tamakuma, Shinji Tokonami. Characteristic of thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) in environment. *Applied Radiation and Isotopes*. 120, 7-10 (2017).

Masahiro Hosoda, Kevin Kelleher, Michael Murray, Paul McGinnity, Olwyn Hanley, Jennie Wong, Lorraine Currivan. Generation and Migration of  $^{222}\text{Rn}$  in  $\text{BaSO}_4$  Precipitate Samples and Implications for their Analysis for  $^{226}\text{Ra}$  by Gamma Spectrometry. *Radiation Environment and Medicine*. 5, 22-28 (2017).

##### [学会発表](計3件)

Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami, Naofumi Akata, Kazuki Iwaoka, Takahito Suzuki, Yuki Tamakuma, Ryohei Yamada, Kanako Yamanouchi, Yoshitaka Shiroma, Masahide Furukawa. Radon as a tracer in the monitoring of volcanic activity. Third East European Radon Symposium. 2017年5月15日-19日, ブルガリア共和国ソフィア市.

鈴木崇仁, 細田正洋, 床次眞司, 赤田尚史, 岩岡和輝, 山田棕平, 山内可南子, 城間吉貴, 古川雅英. 桜島周辺におけるラドン散逸率の連続測定. 日本放射線影響学会第59回大会. 2016年10月26日-28日, 広島県広島市.

Masahiro Hosoda, Shinji Tokonami, Naofumi Akata, Kazuki Iwaoka, Ryohei Yamada, Takahito Suzuki, Kanako Yamanouchi, Yoshitaka Shiroma, Masahide Furukawa. Continuous measurement of radon exhalation rate from soil surface around active volcano. 7th Annual Conference on Radionuclide Metrology Low-Level

Radioactivity Measurement Techniques.  
2016年09月26日-30日, 米国シアトル市.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等  
なし

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

細田 正洋 (HOSODA, Masahiro)  
弘前大学・大学院保健学研究科・講師  
研究者番号: 03457832

##### (2) 研究分担者

なし ( )

研究者番号:

##### (3) 連携研究者

秋葉 澄伯 (AKIBA, Suminori)  
鹿児島大学・名誉教授  
研究者番号: 50145554

古川 雅英 (FURUKAWA, Masahide)  
琉球大学・理学部・教授  
研究者番号: 40238671

床次 眞司 (TOKONAMI, Shinji)  
弘前大学・被ばく医療総合研究所・教授  
研究者番号: 80247254

赤田 尚史 (AKATA, Naofumi)  
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教

授

研究者番号: 10715478

岩岡 和輝 (IWAOKA, Kazuki)  
弘前大学・被ばく医療総合研究所・助教  
研究者番号: 70466051

##### (4) 研究協力者

なし ( )