

令和元年6月13日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K08697

研究課題名(和文) 緊急時における小児甲状腺被ばく線量推定のためのESR低線量被ばく線量測定法の開発

研究課題名(英文) Improvement of low radiation dose estimation by ESR dosimetry with tooth enamel for the radiation accidents

研究代表者

島崎 達也 (SHIMASAKI, Tatsuya)

熊本大学・生命資源研究・支援センター・助教

研究者番号：60264248

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：歯エナメルを線量測定素子とする電子スピン共鳴(ESR: Electron Spin Resonance)法は、様々な放射線事故における被ばく線量評価に用いられている。我々は、ESR測定スペクトルの解析ソフト「ESR Data Process」を用いて、抜歯試料の歯エナメルESR信号よりバックグラウンドの象牙質有機ラジカルESR信号を差し引くサブトラクション法により被ばく線量を求めた。その結果、約0.1Gy以下の低線量被ばくを評価することができた。さらに、サブトラクション法により福島原発事故や長崎原爆で遠距離被ばくした人々について被ばく線量を評価する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

歯エナメルを線量測定素子としたESR線量測定法は、基本的な手法が確立され国際原子力機関(IAEA)のTECDOC-1331や国際標準化機構(ISO)の13304-1で標準化が進められている。一方、これまでの放射線事故にも積極的に利用されてきた。特に長崎・広島原爆被爆者の被ばく線量推定にも用いられてきた。しかしながら0.10 Gy以下の低線量に関しては、その検出限界によりESR線量測定法が十分に活用できていない。我々は、0.10 Gy以下の低線量でも線量評価ができるESR線量測定法を確立し、福島や長崎で問題となっている低線量被ばく集団に適用し、精度の高い被ばく線量評価を目指している。

研究成果の概要(英文)：ESR (electron spin resonance) method has been applied to obtain the retrospective radiation doses given to human by various radiation accidents. Using analysis software "ESR Data Process" of the ESR measurement spectrum, we evaluated a radiation dose by subtraction technique to take away an organic radical ESR signal of the dentin of the background from the teeth enamel ESR signal of the tooth extraction sample. As a result, we were able to evaluate the low dose radiation exposure that was lower than about 0.1Gy. We assessed that the dose ranging 0.040-0.70 Gy would be due to dental diagnostic x rays. Furthermore, we will evaluate a radiation dose by subtraction technique about people exposed to radiation with Fukushima nuclear plant accident and at a long distance with Nagasaki atom bomb.

研究分野：放射線防護学

キーワード：ESR 低線量被ばく線量測定法 歯エナメル 甲状腺被ばく線量 福島第一原発事故 長崎原爆被ばく線量 遠距離被ばく 電子スピン共鳴法

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2011年3月11日に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故に起因した放射性物質の放出が福島県をはじめその周辺地域に重大な放射能汚染を引き起こした。同時に、拡散した放射性物質から放出される放射線により人体への被ばくが問題となり、低線量被ばくによる人体への健康影響評価が求められた。これまでわが国においては、長崎・広島における原爆放射線により被ばくを受けた被爆者集団が発生し、現在も健康影響調査が継続されている。福島県でも県民を対象とした県民健康調査が開始された。事故後3年半の時点で、被ばく線量の根拠となる初期4ヶ月間の行動記録が対象者の約26%、53万人(2014年10月末時点)ほどしか入手できず詳細な住民被ばく線量推計が難しい状態であった。我々は、これまでに長崎市及びその周辺住民の抜歯試料を組織的に収集し、その歯エナメルを用いたESR(電子スピン共鳴: Electron Spin Resonance)被ばく線量測定法により、原爆被爆者それぞれの生涯被ばく線量を求め、被曝線量評価システム1986(DS86)との比較を行った。2014年5月に福島市で開かれた第15回「県民健康管理調査」検討委員会で、2011-2013年度の子どもを対象とする甲状腺検査結果を報告し、悪性ないし悪性疑いの甲状腺がんが90名に確認されたと報告した。そこで検査結果を解釈する上で重要な情報が検査対象者の被ばく線量である。福島県及びその周辺地域においても放射線モニタリングデータや事故当時の行動より被ばく線量を推定する方法を採用した放医研外部被ばく線量推計システムを用いているが、過去に遡った被ばく線量を求めるためには、混乱した事故当時の記憶に頼らなければならないために困難を伴っていた。また、事故発生直後の初期段階における短半減期放射性物質や甲状腺に直接取り込まれた¹³¹I、¹³²Iからの放射線による被ばく線量を求める必要がある。事故後数ヶ月後にガラスバッチなどの線量測定素子で求めた被ばく線量は、¹³⁴Cs、¹³⁷Csなどの長半減期の放射性物質からの放射線しか評価できていない。歯エナメルを用いたESR被ばく線量測定法は、生涯被ばく線量を評価する測定技術であり、その検出感度を向上することで低線量領域の被ばく線量評価に適用できると考えている。

2. 研究の目的

本研究は、人体の一部である抜歯試料の歯エナメル及び被ばく時に身に着けていた衣服貝ボタンなどを線量測定素子とするESR線量測定法を低線量領域まで測定可能とする計測技術に発展させ、緊急被ばく時における低線量被ばく線量の評価法として確立することを目的としている。また、低線量の放射線を受けたと推定される福島第一原発周辺の地域住民、特に小児集団や長崎原爆で比較的遠距離で被ばくした被爆者集団に対してESR線量測定法を適用するための基礎研究を行った。

3. 研究の方法

- (1) ESR線量測定法の基礎的な測定条件を収集するために、1) ESR装置(JES-X320, JEOL)の測定パラメータの検討、2) ESR試料重とESR信号強度との関係、3) ESR試料個々の違いによるESR信号スペクトルの違い、について検討を行った。ESR試料は、これまで提供を受けた抜歯試料(乳歯、永久歯)と市販貝ボタンを用いた。
- (2) 抜歯試料処理時の歯エナメルへの象牙質(有機物を多く含む)の分離技術を確立する。
- (3) ESR測定により得た歯エナメルESR信号を線量応答のあるCO₂ラジカル成分と有機ラジカル成分に分離する方法を検討する。
- (4) 歯エナメルに記録された自然放射線や医療放射線による被ばく線量を推定する。

4. 研究成果

(1) ESR線量測定法における測定条件の決定

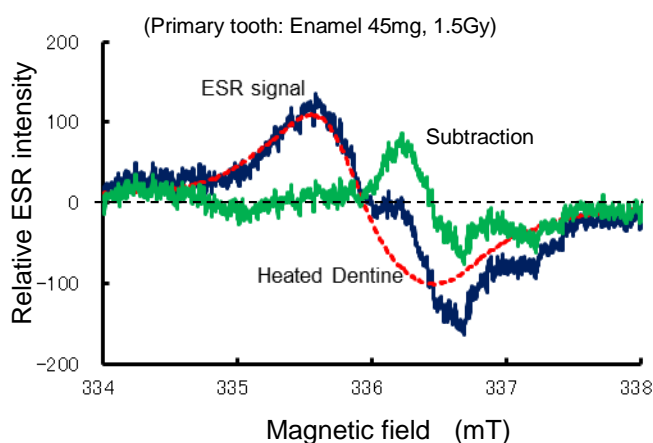
・XバンドESR装置 (JES-X320、JEOL) の測定条件は、マイクロ波出力0.2~10mW、磁場変調幅0.30mT、中心磁場 365 ± 5 mT、時定数0.01秒、掃引時間15分 (30秒×30回) ~ 120分 (30秒×240回) で使用した。掃引時間は、主としてエナメル試料の重量とスペクトルの放射線によって生成される CO_2 ラジカルのピーク高で決定した。

・人の乳歯と永久歯から得られたエナメルのESR信号スペクトルは、放射線によって生成される CO_2 ラジカル ($g = 2.0037$, $g_{II} = 1.9970$) と有機物に起因したラジカル ($g = 2.0045$) のESR信号が重なった形状が観察され、ほぼ同じパラメータであった。一方、人の歯エナメルと貝ボタンのESR信号は、有機ラジカルの信号はほぼ同じであったが、放射線によって生成された試料中のラジカルは異なる形状をしていた。ただし、

得られたESR信号と線量は比例していることが分かった。

(図1)

・ESR信号と試料重量については、エナメル250mg程度、貝ボタン350mg程度までは直線的な関係が得られた。乳歯のエナメルは、微量でほとんどが50mg以下であり、測定したESR



信号が小さくその測定誤差が大きい傾向を示した。そのために掃引時間を1-2時間と長くすることで誤差を小さくした。

・貝ボタンはその種類の違い及び個体差によりESR信号スペクトルと強度がそれぞれ異なるため、追加線照射を行う付加線量法による評価方法を選択した。

(2) 歯エナメルと象牙質 (有機物を多く含む) の分離技術の確立

・永久歯の場合、歯エナメルに厚みがあり歯エナメルと象牙質の分離は、拡大鏡程度の倍率で観察しながらの分離作業で比較的容易にできた。しかし、乳歯や治療済みの永久歯は、歯エナメルが薄く象牙質との区別が難しく、特に乳歯はその境界が分かりづらく、顕微鏡での確認が必要であった。

・乳歯の場合は、精密切断機を用いて頬側、舌側などに分離後、拡大鏡下でニッパなどを用いて可能な限り象牙質の分離を行った。その後、必要に応じて化学的処理 (20%水酸化カリウムなど) を行い、象牙質を分離した。化学的処理を行ったエナメル試料は、その有機ラジカルによるESR信号が最大1/3程度まで減少することが分かった。ただし、ESR信号のベースラインに不明な信号が追加した試料や CO_2 ラジカル信号の減少などの影響も確認した。このことより試料重量の少ない乳歯の場合、機械的分離を行った後にESR測定を行い、象牙質の混入状況を確認後、必要に応じて化学的処理を追加する方法を選択した。

・被ばく線量の評価方法は、歯エナメル分離が十分な試料の場合、標準試料のESR信号より検量線を求めるキャリブレーション法で十分な精度を得ることができた。また、乳歯などの象牙質の除去が不十分な試料は、複数回の追加線照射を行う付加線量法を用いた外挿法により被ばく線量を求める方法を選択した。ただし、試料への繰り返し照射とESR測定が必要となるために、線量評価に数倍の時間を費やすことになった。

(3) 歯エナメル ESR 信号の線量応答のある CO_2^- ラジカルと有機ラジカルに分離技術の検討

・ ESR信号の取り扱いは、比較的高線量 (1Gy<) の場合、線量応答のある CO_2^- ラジカル成分のピーク高により被ばく線量を正確に評価することが可能である。

・ 0.1 Gy以下の低線量領域の抜歯試料の歯エナメルに含まれる有機物に起因する有機ラジカルESR信号が大きなバックグラウンドとして線量

応答のある CO_2^- ラジカルESR信号に重なったスペクトルとなり、そのピーク高より正確な被ばく線量を評価することを難しくしていた。そこで、ESR信号スペクトルの解析に利用できる日本電子社製ソフト「ESR Data Process」、

「Isotropic simulation」を利用して、歯エナメルのESR測定スペクトルより有機ラジカルのESR信号を差し引き、

CO_2^- ラジカルのESR信号を求めた。いわゆるサブトラクション法を用いることで被ばく線量に比例した CO_2^- ラジカル成分を分離する解析を行った。(図1)

・ 有機ラジカル成分のESR信号は、そのまま測定してもその信号は小さくサブトラクション法では誤差が大きくなるため、その信号を増幅するために有機物を多く含む象牙質を200、2時間加熱することで増幅したESR信号を得ることができた。このESR信号は、加熱処理前後で40倍程度の増幅が確認でき、ESR信号のパラメータが変化しないことを「Isotropic simulation」ソフトで確認した。ただし、そのESR信号は、200日程度で半減することも分かった。(図2)

・ ESR測定スペクトルの解析ソフト「ESR Data Process」にて、抜歯試料の歯エナメルESR信号から増幅した象牙質の有機ラジカルESR信号をサブトラクションすることにより、 CO_2^- ラジカルESR信号を求め、そのピーク高より被ばく線量を評価した。(図3)

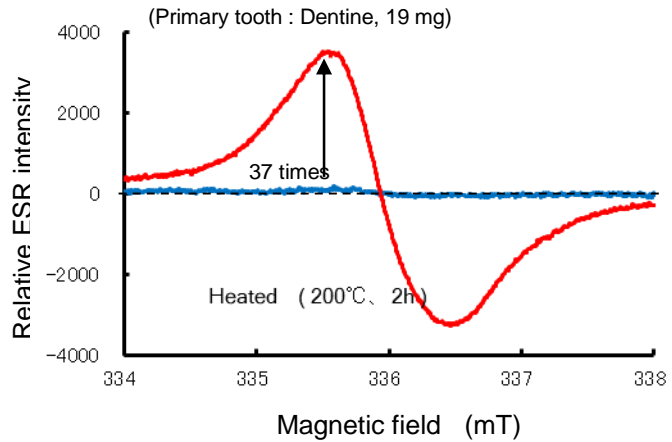


図2 . 象牙質熱処理 (200、2時間) によるESR信号の増幅

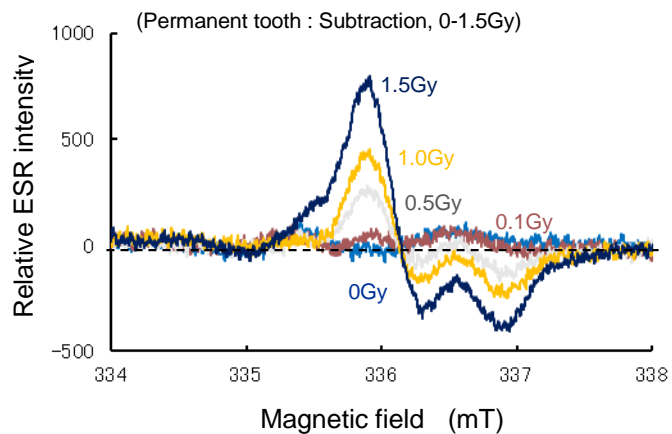


図3 . サブトラクション分離後の歯ESRスペクトル

・ サブトラクション法を用いることで被ばく線量に比例した CO_2^- ラジカル成分を分離する解析を行った。(図1)

・ 有機ラジカル成分のESR信号は、そのまま測定してもその信号は小さくサブトラクション法では誤差が大きくなるため、その信号を増幅するために有機物を多く含む象牙質を200、2時間加熱することで増幅したESR信号を得ることができた。このESR信号は、加熱処理前後で40倍程度の増幅が確認でき、ESR信号のパラメータが変化しないことを

「Isotropic simulation」ソフトで確認した。ただし、そのESR信号は、200日程度で半減することも分かった。(図2)

・ ESR測定スペクトルの解析ソフト「ESR Data Process」にて、抜歯試料の歯エナメルESR信号から増幅した象牙質の有機ラジカルESR信号をサブトラクションすることにより、 CO_2^- ラジカルESR信号を求め、そのピーク高より被ばく線量を評価した。(図3)

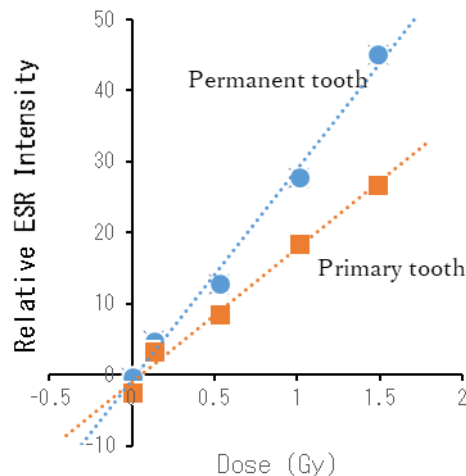
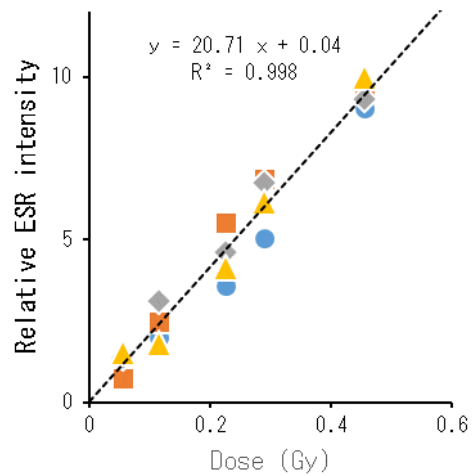


図4 . 乳歯と永久歯の CO_2^- ラジカル線量応答

感度（ピーク高）は、同じ線量で比較すると乳歯のエナメルに象牙質の分離が十分でない場合、永久歯と乳歯を比較すると0.6～0.8程度と小さかった。（図4）

・乳歯に放射性ヨウ素¹³¹Iの線を0.05～0.50 Gy照射した時のCO₂⁻ラジカルESR信号の応答より線量を評価した場合、サブトラクション法で0.05～0.10 Gy程度まで十分に線量評価ができること確認した。（図5）



(4) 歯エナメルに記録された自然放射線や医療放射線による被ばく線量推定

- ・自然放射線については、文献による自然放射線レベルの調査を中心に行った。また、図5・乳歯の線（¹³¹I）に対する線量応答
抜歯試料の保管場所や主な実験室などについては、ガラス線量計やNaI(Tl)サーベイメータにより積算線量や空間線量率を測定した。その結果、自然放射線は、年間0.83 mGy（0.70-0.96 mGy）程度であった。
- ・医療用放射線の影響を確認するには、永久歯は、抜歯試料を頬側と舌側に分離し、その被ばく線量の比により求めた。長崎原爆被爆者の測定結果を解析した結果、歯科診断を受診したと考えられ、その被ばくの影響を0.04-0.70 Gyと評価した。ただし、今回の乳歯については、前歯Aにの試料であったために、抜歯試料の分割は行わず、結果として医療放射線の評価は行っていない。乳歯についても奥歯の場合は、永久歯と同じプロトコルで医療放射線の影響を評価できると考えた。

(5) 提供を受けた抜歯試料による被ばく線量の推定

- ・福島県、関東地方で提供を受けた乳歯8試料、永久歯12試料について、ESR信号のスペクトル解析ソフト「ESR Data Process」を用いたサブトラクション法にて被ばく線量を評価した。乳歯は、ほとんどが100 mGy以下という結果であり、既に報告されている行動調査より求めた推定線量と同程度の被ばく線量を確認した。永久歯については、2試料で100 mGyを超える被ばく線量を確認し、歯科放射線を含めた医療放射線の影響を再検討する必要があることが分かった。
- ・長崎原爆被爆者から提供を受けた抜歯試料（長崎大学提供）は、地上距離1.5km以内の歯エナメルについては、最大2.4 Gyの被ばく線量を確認した。また、地上距離が大きくなるとともに被ばく線量が減少する傾向を確認した。ただし、2km以遠のほとんど原爆放射線の影響がないと考えられる抜歯試料の被ばく線量が0.70 Gy程度の被ばく線量と評価した。さらに、放射性降下物が集中的に降下した地区の抜歯試料で0.23 Gyの被ばく線量を確認することができた。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 9件)

- (1) 島崎達也, 川原 修, 白石 善興, 後藤 久美子, 古嶋昭博, 岡田 誠治: ESR線量測定法を用いた低線量被ばく線量評価の検討、日本保健物理学会第50回研究発表会、2016/6/29-7/1、弘前市
- (2) Shimasaki, T., Yokota, K., Mine, M., Shiraiishi, Y., Gotoh, K., Matsuda, N. and Okada, S., Radiation dose estimation by ESR dosimetry with tooth enamel for survivors of the atomic

bomb of Nagasaki, The 1st International Symposium of the network-type Joint Usage/Research Center for Radiation Disaster Medical Science, 2017/2/21-22, Hiroshima.

- (3) 島崎達也, 川原 修, 横田賢一、白石善興, 松田尚樹、岡田誠治: ESR 線量測定法を用いた低線量被ばく線量評価における医療放射線の影響、日本保健物理学会第 50 回研究発表会、2017/6/28-30、大分市.
- (4) Shimasaki, T., Yokota, K., Mine, M., Shiraishi, Y., Gotoh, K., Matsuda, N. and Okada, S., Radiation dose estimation by ESR dosimetry with tooth enamel for residents of Nagasaki and Fukushima in Japan, The 43th Annual Meeting of European Radiation Research Society, 2017/9/17-21, Essen, Germany.
- (5) 島崎達也, 川原 修, 横田賢一、白石善興, 松田尚樹、岡田誠治: 低線量被ばく評価に用いる ESR 線量測定における医療放射線の影響、日本放射線影響学会第 50 回研究発表会、2017/10/25-28、千葉市.
- (6) 島崎達也, 白石善興, 横田賢一、川原 修, 松田尚樹、岡田誠治: 歯エナメル ESR 計測による低線量被ばく線量評価について、第 34 回 ESR 応用計測研究会、2018/2/10-12、東京都立川市.
- (7) Shimasaki, T., Kawahara, O., Yokota, K., Mine, M., Shiraishi, Y., Matsuda, N. and Okada, S., Radiation dose estimation by ESR/EPR dosimetry with tooth enamel for residents of Nagasaki city in Japan, The Joint International Symposium on EPR dosimetry and dating (EPR) and the International Conference on Biological Dosimetry (BioDose), 2018/6/11-15, Munich, Germany.
- (8) 島崎達也、川原 修、横田賢一、白石善興、松田尚樹、岡田誠治: ESR/EPR 線量測定法による低線量被ばく線量評価の問題点、第 35 回 ESR 応用計測研究会、2018/11/28-30、神戸市.
- (9) Shimasaki, T., Kawahara, O., Yokota, K., Mine, M., Shiraishi, Y., Matsuda, N. and Okada, S., Improvement of low radiation dose estimation by ESR dosimetry with tooth enamel for the radiation accidents, The 3rd international Symposium of the network-type Joint Usage/Research center for Radiation Disaster Medical Science, 2019/1/13-14, Fukushima, Japan.

[その他]

ホームページ

http://www.irda.kumamoto-u.ac.jp/D_RIC/Shimasaki/shima_main.htm

6 . 研究組織