



NIRS-R-45

特 別 研 究
環境放射線の被ばく影響及びその低減
に関する研究

平成 10 年度～平成 12 年度

最 終 報 告 書

平成 13 年 12 月

放 射 線 医 学 総 合 研 究 所

Final Report on the Project Research
“Exposure Assessment and Reduction of
Environmental Radiation”

(April 1998 ~ March 2001)

December 2001

National Institute of Radiological Sciences

9-1, Anagawa-4, Inage-ku, Chiba 263-8555, Japan

目 次

序 (藤元憲三)

I.	ラドンからの被ばく影響に関する調査研究	1
	(下 道國)	
I-1	ラドンのキャラクタライゼーションに関する研究	2
	(山田裕司、小泉 彰、宮本勝宏、一坪宏和、福津久美子、下 道國、床次眞司)	
	Studies on Characterization of Radon and its Progeny (Y. Yamada, A. Koizumi, K. Miyamoto, H. Ichitsubo, K. Fukutsu, M. Shimo and S. Tokonami)	
I-2	ラドンの動物曝露実験法に関する研究	5
	(小泉 彰、山田裕司、宮本勝宏、下 道國、一坪宏和、床次眞司、米原英典)	
	Researches and Developments on Radon Exposure Experiments (A. Koizumi, Y. Yamada, K. Miyamoto, M. Shimo, H. Ichitsubo, S. Tokonami and Y. Yonehara)	
I-3	ラドンの線量評価及び生物学的指標に関する研究	8
	(山田 裕、福津久美子、小木曾洋一、榎本宏子、石樽信人、下 道國)	
	Studies on Biodosimetry for Estimating Radiation Dose to the Respiratory Tract Cells from Inhaled Radon (Y. Yamada, K. Fukutsu, Y. Oghiso, H. Enomoto, N. Ishigure and M. Shimo)	
I-4	ラドン/トロンの健康影響データベースの構築とリスク解析に関する研究	12
	(土居雅広、米原英典、藤元憲三、下 道國)	
	Construction of the Hybrid (Fact and Knowledge) Data Base on the Health Effects of Radon/Thoron Exposures (M. Doi, H. Yonehara, K. Fujimoto and M. Shimo)	
I-5	ラドンの低減に関する研究	17
	(藤元憲三、古川雅英、床次眞司、藤高和信)	
	Research on Radon Concentration Reduction (K. Fujimoto, M. Furukawa, S. Tokonami and K. Fujitaka)	

II. 環境放射能汚染に対する除染修復技術に関する研究 20
(渡部輝久)

II-1 環境放射能汚染に対する化学的除染技術開発に関する研究 21
(黒瀧克己、米原英典、サフー・サラタ・クマール、石井紀明)

Studies on the Remediation of Environment Contaminated with Radioactive Pollutants Using the Chemical Separation Technique
(K. Kurotaki, H. Yonehara, S. K. Sahoo and T. Ishii)

II-2 環境放射能汚染に対する生物学的修復技術開発に関する研究 26
(渡部輝久、平野茂樹、中村良一、中原元和、石井紀明、宮崎多恵子、松葉満江、横須賀節子、西村義一、渡辺嘉人)

Feasibility Study on Application of Bio-accumulation of Radionuclides as a Countermeasure to Restoration of Contaminated Environments
(T. Watabe, S. Hirano, R. Nakamura, M. Nakahara, T. Ishii, T. Miyazaki, M. Matsuba, S. Yokosuka, Y. Nishimura and Y. Watanabe)

II-3 食品中の放射性物質からの被ばく低減化に関する研究 34
(西村義一、湯川雅枝、渡辺嘉人、白石久二雄、渡部輝久、宮崎多恵子、村松康行、内田滋夫)

Radiation Exposure Mitigation through Food
(Y. Nishimura, M. Yukawa, Y. Watanabe, K. Shiraishi, T. Watabe, T. Miyazaki, Y. Muramatsu and S. Uchida)

II-4 緊急時におけるヒト集団の被ばく線量及びリスク低減化評価に関する研究 37
(河村日佐男、吉本泰彦、米原英典、吉永信治、木村真三、本郷昭三、竹下洋)

A Study to Reduce Radiation Doses and Risks of the Public in Japan after Radiological Emergency
(H. Kawamura, Y. Yoshimoto, H. Yonehara, S. Yoshinaga, S. Kimura, S. Hongo and H. Takeshita)

序

放射線医学総合研究所の環境分野の複数の研究部では、過去5次にわたる特別研究を通じて放射線・放射性物質の環境中分布、環境動態、生物・人体中における代謝、標準日本人の確立、および線量評価に関する知見を蓄積するとともに線量評価手法を確立し、環境放射線からの公衆の被ばく評価や職業人の放射線被ばく評価に貢献してきた。この間、放射線源として核爆発実験由来の人工放射性核種、原子力発電所や原子燃料再処理等の原子力平和利用施設から管理放出される人工放射性物質、線量寄与として大きなラドン、トリウム等の自然放射線源、ならびに医療放射線、そして原子力施設の事故に起因する放射線源へと国民の関心は拡大し、それに対応して測定および線量評価技術の開発と被ばく状況に関する情報を蓄積してきた。今回は他のプロジェクトの進行と歩調を合わせるため期間を3年間に限定し、「環境放射線の被ばく影響及びその低減に関する研究」と題する特別研究を実施した。

公衆の被ばく源として考慮しなければならないものの一つは平常時の被ばく、もう一つは緊急時の被ばくである。放射線防護研究の中で平常時において、現在特に注意を払うべき課題は一番線量寄与の大きなラドンからの被ばく線量評価とその低減化である。平常時に於いて公衆へ最も大きな線量寄与をもたらすラドンの人への影響は、これまでの実験結果では10倍以上の差異があり、国連科学委員会と国際放射線防護委員会の評価に於いても50%もの差異が存在している。このラドンからの影響評価における不確かさを明らかにするため、物理学的、工学的、生物学的、疫学的側面から解明を行い、本特別研究終了後に計画しているラドンによる動物曝露研究の基礎となる研究を行う。また、一般公衆が高ラドン濃度を被ばくしている家屋におけるラドン濃度低減方策を検討する。

一方、緊急時においては、原子力発電所の事故等の緊急時に於いて環境中に放出される放射性物質は地域住民に大きな被ばく線量をもたらす可能性がある。これまでの数々の事故を前にして、それらの危険性が零であるとは言えない状況にある、従って、そのような緊急事態における潜在被ばく線量を低く抑えるため、化学的、生物学的、食物学的、保健学・疫学的側面から総合的な検討を行い、有効な低減策を見いだすことを目的とした研究を遂行することとした。原子炉等の事故に伴い発生が予想される環境汚染を対象として、化学的除染技術の側面から新キレート剤の探索、生物学的除染技術の側面から特定RI親和性物質の探索、食品による被ばくの低減に於いては、食品の化学形によるバイオアベイラビリティの研究、低減化の定量化に関しては危険集団の諸特性の把握、線量評価のための人体パラメータの適正化の追求を行った。

I. ラドンからの被ばく影響に関する調査研究

日常生活における放射線被曝では、治療や診断に伴う医療分野での被曝とともに自然環境放射線による被曝が大きな割合を占めるが、自然環境放射線に限ると大気中のラドンの吸入による呼吸器官の被曝が大きく、全体の約 1/2 と見積もられている。なお、その被曝源となるのは、呼吸とともに出入りする気体のラドン (^{222}Rn) よりも、吸入により大半が気道に沈着する壊変生成核種のポロニウム (^{218}Po , ^{214}Po) が主である。ラドンとその短寿命壊変生成核種 (以下、 ^{214}Po の親核種である鉛 (^{214}Pb)、ビスマス (^{214}Bi) も含めてラドン等という) は屋内外の大気中に広く分散しており、屋内では建築条件や屋内環境によって、屋外では気象条件や土壌条件によって空間的にも時間的にも大きく変化している。したがって、空気中での濃度レベルに差がありかつ変動幅も大きく、その性状・挙動も多様で変化に富んでいる。また、ラドン壊変生成核種は金属元素であるために大気中の微小粒子に付着してエアロゾル化していて、ナノメートルからマイクロメートルの 3 桁におよぶ領域に分布していることから、鼻から肺胞までの呼吸気道への沈着状況にも大きく影響している。これら諸々の要因が単独にまたは相互に絡み合うことによって影響し、被曝評価にも相当大きなばらつきと幅をもたらしている。さらに重要な点は、呼吸気道での被曝が大きいことはわかっているものの壊変生成元素を含んだ微小粒子の気道内での挙動の解明が終わっていないことにあり、そのために、現時点では、被曝評価の精度については極めて不十分な状況にある。ラドン問題で評価とともに重要であるのは、生活環境中でのラドン等の低減化である。北欧や米国初めいくつかの国・地域では、異常にラドン濃度の高い家屋がある。放射線防護の観点からは、屋内ラドン濃度を下げて、被曝を少なくすることが重要となる。欧米ほど高濃度かつ数多くではないが、わが国でもこれまでに高ラドン濃度の家屋が見つかり、その原因を調査し、濃度の低減化方策を検討するときにきている。

このような背景に基づき、ラドン等による人への影響評価からその低減までを一元化して総合的に行うことを目的として特別研究を立ち上げ、5 課題を設定した。すなわち、(1) ラドンのキャラクタライゼーションに関する研究、(2) ラドンの動物曝露実験法に関する研究、(3) ラドンの線量評価法及びその低減に関する研究、(4) ラドン/トロン健康影響データベースの構築とリスク解析に関する研究、および (5) ラドンの低減に関する研究である。以下に、各課題の目標を述べ、各課題の具体的な成果については小課題ごとに詳述されているので、ご

く簡単に結論を記した。

第 1 課題は、被曝原因核種であるラドン壊変生成元素を含んだエアロゾルについて、大気中での粒径を弁別しながら濃度レベルを測定する技術を開発することを主眼として、ほぼ初期の目的を達した。今後は、開発した本法を用いて実環境におけるデータを蓄積し、精度の高い線量評価に資することが期待される。

第 2 課題は、被曝評価関連の実験を行う場合に必要な施設・設備の整備とラドン線源の作成、標準場の構築にあった。実験棟は大幅に遅れて完成したが、設備の整備とラドン線源の開発ならびに標準場の構築は完了した。なお、遅れているラドン線源に係わる変更許可申請がおりしだい本線源が制作され、ラドン発生と運用が始められる状況にある。

第 3 課題は、ラット等の小型動物の細胞に曝露実験を行い、そのデータの解析から人の被曝影響を推定しようとする研究であるが、今回初めて、肺腫瘍に関係する細胞にアルファ線を照射して小核形成の有無から影響を調べられたことから、バイオドジメトリーへの有効性のほか、リスク予測への展望を示すことができた。

第 4 課題は、ラドンに関する疫学調査研究、動物実験データおよび屋内データの調査等を行ってデータベースを作成することを目標とし、1997 年にラドン健康影響に関する国際ワークショップを開催して、講演内容を基にラドン・トロン健康影響データベースを構築し、屋内ラドンによる肺がんリスク評価ではスウェーデンのデータの解析からリスク推定をした。

第 5 課題は、これまでに放医研等が実施してきた我が国における生活環境中のラドン濃度レベル調査結果の分析を更に進めると共に、屋内ラドン濃度を低減する方策を提案することを目的とした。成果として、高ラドン濃度家屋の検出に地殻ガンマ線データが有用であること、さらに現在の我が国の屋内ラドン濃度を左右する要因として、建材や構造は有力でない場合のあることなどの知見を得た。

本研究課題の実施に当たって留意したのは、ラドンの被曝による影響評価を 3 年間でできる範囲は限られていること、次期課題の中で取り上げられるべき個体動物曝露実験を視野に入れつつ実施したことである。本研究で得られた成果を継承し発展させていくのは継続する研究の担当者であるが、本班員の努力があったればこそ達成されるものと信ずる。

中課題班長 下 道國

I-1 ラドンのキャラクタライゼーションに関する研究

山田裕司、小泉 彰、宮本勝宏、一坪宏和、福津久美子、下 道國（内部被ばく・防護研究部）、
床次眞司（人間環境研究部）

Studies on Characterization of Radon and its Progeny

Y. Yamada, A. Koizumi, K. Miyamoto, H. Ichitsubo, K. Fukutsu, M. Shimo (Division of Radiotoxicology and Protection)
and S. Tokonami (Division of Human Radiation Environment)

ABSTRACT : A basic study for characterization of radon and its progeny has been carried out. The main work is to establish a measurement technique of size distribution of radon progeny aerosols. The aerosols are ranged from sub-nanometer to micrometer, so that the impaction method and the diffusion method were introduced. From size measurements using the ELPI (Electrical Low Pressure Impactor), it was suggested that grease or oil coating does not interfere with the electrical size measurements but prevent particle rebound and/or redispersion. As the impactor measures two size distributions on number and activity, we can get a very important information on attachment phenomenon. In the comparison of size distribution with the SMPS in EML (Environmental Measurements Laboratory, New York), there was a relatively good agreement with our SDB (Screen-type Diffusion Battery) or the MOUDI (Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor). And our original GSA (Graded Screen Array) based on the SDB showed a very sharp peak of unattached fraction below 1 nm. We try to apply the measurement technique for a field study and to get radon progeny aerosol data which affects the DCF (Dose Conversion Factor).

I 緒言

一般公衆にとって、ラドンおよびその子孫核種の吸入による被曝線量は全体のおよそ 1/2 を占めている。同じラドン濃度であっても、平衡係数、非付着成分比、粒径などの性状パラメータによって受ける被曝線量は大きく変動する。しかし、実環境におけるこれらの観測データは多くなく、より高い精度の線量評価に向けてそのデータ収集が求められている。つまり、子孫核種も含めたラドンの性状を知るというキャラクタライゼーションが求められている。本課題では、特に情報が少ない子孫核種の粒径についてその測定方法から検討したので、これを中心に報告する。

II 方法

ラドン子孫核種は大気中では原子状の単体もしくはクラスターで存在する「非付着成分」と既存の大気エアロゾルに付着した状態で存在する「付着成分」とに大別される。その大きさはおよそ数ナノメートルを境に分けられるが、その分布範囲はサブナノメートルから数ミクロンまで 4~5 桁に及ぶ。このため 1 つの測定原理では対応できず、ここでは大粒子用として粒子の慣性力を利用するインパクト法、微小粒子用として粒子の拡散を利用する拡散法を採用した。

インパクト法にも各種タイプがあるが、小粒子領域での分級捕集に優れた低圧型を選択した。ここでは、市販されている 2 種類のカスケードインパクト ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) および MOUDI (Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor) とを導入し、これらをラドン計測用に転用する際の問題点を検討した。具体的には、捕集板の選択、捕集板の前処理方法、荷電効率などにつ

いて固体粒子・液体粒子を用いる実験的検討を行った。一方、拡散係数法については、唯一市販されているタイプでは放射能測定に適用できないこと、また、非放射性エアロゾル用としても所要時間が長すぎることから、新たな装置開発も含めて理論および実験の両面から行った。エアロゾル用に使用されることが多い多段多層方式については実環境でも適用可能とするため迅速化と装置小型化を図った。また、多段単層方式についてはナノメートルサイズの非付着成分の粒径測定を可能とするための検討を行った。

粒径測定のようなキャラクタライゼーションにおいては、測定試料が同時に多数得られる。また、採取された子孫核種の放射線半減期は短く分単位で減衰することから、試料の放射能測定には多チャンネル同時アルファ放射能検出システムが不可欠で、ここではグロス計数用の ZnS シンチレーションカウンタとスペクトル計測用の SSD の 2 種類についてシステム化を図った。

III 結果及び考察

1. インパクト法の基礎特性評価

カスケードインパクトの捕集板の種類およびその表面状態の違いが粒径分布測定結果に与える影響を調べた。捕集板としてはアルミ箔材とステンレス材の 2 種類、表面状態としてはグリース塗布、オイル塗布、テープ状粘着材および無処理の 4 種類について検討した。実験に用いたインパクトは ELPI で、合計 13 段の分級ステージを有し、最終段の 50%カットオフ径は 0.032 μm である。ELPI はステージ各段に微小電流計が接続されており、エアロゾル捕集量がリアルタイムで計測できるので、個数情報はこれを利用した。捕集放射能についてはサンプリング

終了後に SSD によるアルファ線計測で得た。実験は京都大学の実験施設を借用し、建材から散逸してくるラドン（空气中濃度で $100 \sim 300 \text{ Bq/m}^3$ ）に線香の燃焼で生成させたエアロゾルと混合させることにより、ラドン子孫核種の付着成分を作り出した。結果は、捕集板の種類による差異は認められなかったが、表面状態には強く依存した。シリコングリースとオイルではほとんど差がなかったものの、その他については、全く異なる粒径分布が得られてしまった。Fig.1 には、グリース塗布と無処理の結果のみを示す。その際、同時測定された別のエアロゾル測定器の結果からグリースまたはオイル塗布が適切であるという結論を得た。また、測定されたラドン子孫核種別の粒径分布を Fig.2 に示す。さらに、同一サンプルに対して得られた個数濃度基準の粒径分布と放射能基準の粒径分布との比較から算出した単位粒子当たりの放射能からは Fig.3 に示すようなラドン子孫核種のエアロゾルへの付着様式に関する情報が取り出せた。つまり、ELPI を活用すれば付着過程の解明に繋がることが実証できた。

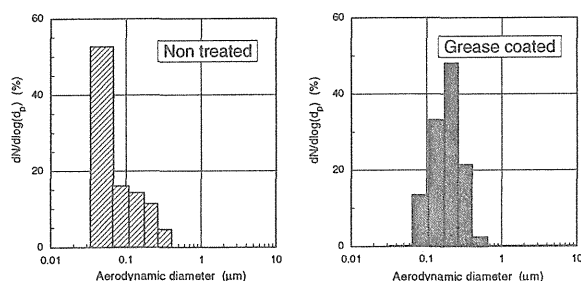


Fig.1 Effects of impaction substrates on number size distribution of radon progeny aerosol.

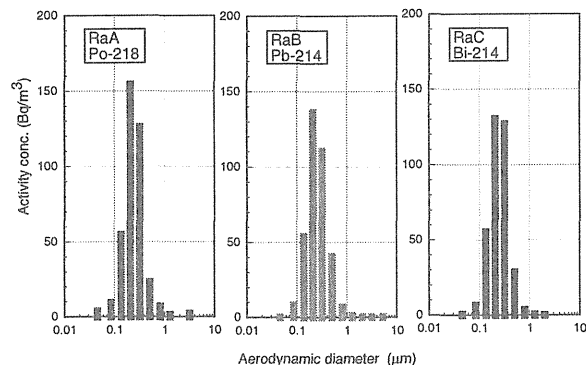


Fig.2 Activity size distributions of radon progeny aerosols.

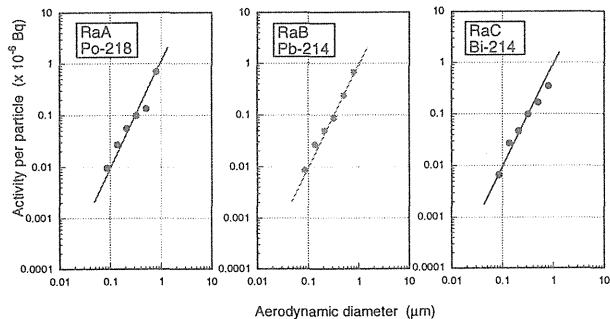


Fig.3 Dependence of activity per particle on size of radon progeny aerosol.

なお、ラドン子孫核種を対象とした場合、ELPI のチャージャー部における荷電効率については低下するので、補正が必要である。また、捕集材にグリース等の塗布による電流計測への影響は特に認められなかった。

2. インパクト法と他方法との比較測定

50%カットオフ粒径が $0.056 \sim 15 \mu\text{m}$ の 9 段構成の MOUDI と SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) と呼ばれる走査型モビリティ粒径測定器とによる粒径比較測定の結果を以下に示す。ただし、SMPS からはエアロゾル個数基準の粒径情報しか得られないので、これに Porstendorfer らの付着理論を適用し放射能基準に変換した後で比較した。比較試験に用いたエアロゾルは蒸発凝縮方式のエアロゾル発生器で作成したカルナバワックス粒子である。一方、ラドンはその子孫核種の 1 つである RaA (^{218}Po) がチャンバ内濃度で $1000 \sim 1500 \text{ Bq/m}^3$ を保ち、 $10000 \sim 25000 \text{ 個/cm}^3$ のエアロゾルと対面させた。放射能測定は ZnS シンチレーションカウンタを用い、試料全数を同時測定した。その結果、全く測定原理が異なる両者から得られた粒径は Fig.4 に示すように概ね一致したが、細かく見ると粒径が大きくなるにしたがって SMPS の方が大きくなる傾向があった。この理由については定かではないが、SMPS の測定上限に近いこともあり大粒子領域における多重荷電問題が測定に影響を与えているかもしれない。なお、この比較実験は米国 EML (Environmental Measurements Laboratory) のラドン実験施設を借りて実施された。

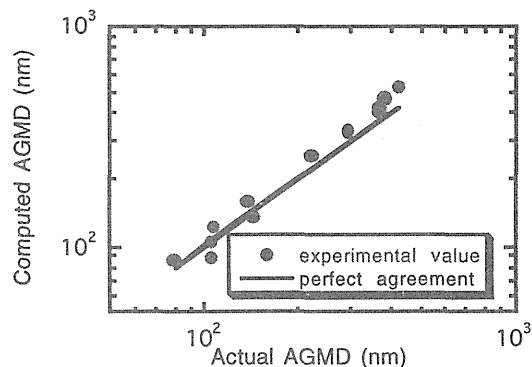


Fig.4 Relationship between the actual diameter and the computed diameter from the attachment theory.

3. 拡散係数法と他方法との比較測定

ラドン子孫核種の粒径分布測定に適用可能な装置が市販されていない現状において、拡散係数法で実測するためには装置開発の一から行う必要がある。本研究では、まず、非放射性エアロゾル計測用ではあるが、ポータブルタイプの装置を自作を行った。その構成はワイヤスクリーンを 10 段多層に装填するものであるこの装置と先の SMPS との比較測定実験の結果の 1 例を Fig.5 に示す。拡散係数法の方が粒径分解能において原理的に劣ることを除けば、両者はよく一致したことから、ハードウェアのみならずデータ解析ソフトウェアについても問題がないことを確認した。ラドン子孫核種の粒径分布測定に適用するためには、透過方式のスクリーンを沈着方式へ、スクリーン構成をアルファ線計測の妨害とならない多段単層へ変更すること。さらに、ナノメートルオーダーの非

付着成分を捉えるため、使用するスクリーンの選定が必要である。理論計算上はサブナノメートルまで適用可能であり、また、実際、鉱山内のようにラドン発生源近傍では0.8 nm付近に粒径のピークを観測したりしているが、未だ例数が少ないのでこの点については別に報告したい。

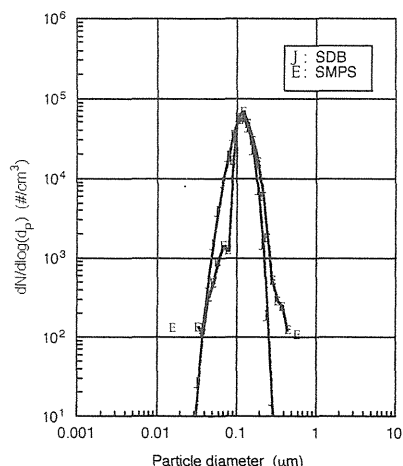


Fig.5 Dependence of activity per particle on size of radon progeny aerosol.

IV 結言

本特研はわずか3年で終了することとなったが、本来、「ラドンのキャラクタライゼーション」で対象とする範囲は非常に広く、また、その意味も非常に深い。この小課題では線量評価上データが望まれながらも収集が遅れていた子孫核種の粒径問題を中心に課題を進めてきたが、方法論的に実現させるに留まった。今後はこれらの計測・解析技術を活かして、実環境でのデータ収集が進展し、ラドンによる被曝影響が解明され、少しでも影響低減が進むことを期待して結言とする。

[研究発表]

- 1) Iimoto, T. et al.: Radia. Prot. Dosim., **77**, 185-190, 1998.
- 2) Tokonami, S.: Radia. Prot. Dosim., **81**, 285-290, 1999.
- 3) Fukutsu, K. et al.: J. Aerosol Res., **14**, 55-62, 1999.

- 4) 山崎ら：日本保健物理学会第34回研究発表会、大分、1999.5.
- 5) 山田ら：日本保健物理学会第34回研究発表会、大分、1999.5.
- 6) 床次ら：第16回エアロゾル科学・技術研究討論会、名古屋、1999.7.
- 7) 山田ら：第16回エアロゾル科学・技術研究討論会、名古屋、1999.7.
- 8) 山田ら：日本原子力学会 1999 年秋の大会、新潟、1999.9.
- 9) 床次ら：日本原子力学会 1999 年秋の大会、新潟、1999.9.
- 10) Yamada, Y., et al.: Radiat. Protec. Dosimetry., **88**, 329-334, 2000.
- 11) Tokonami, S.: Health. Phys., **78**, 74-79, 2000.
- 12) Tokonami, S. and Knutson, E.O.: Aerosol. Sci. Technol., **32**, 249-252, 2000.
- 13) 床次ら：Radioisotopes, **49**(1), 1-8, 2000.
- 14) Yamada, Y. et al.: The 10th International Congress of the International Radiation Protection Association, Hiroshima, 2000.5.
- 15) Tokonami, S. et al.: The 10th International Congress of the International Radiation Protection Association, Hiroshima, 2000.5.
- 16) Yamasaki, K. et al.: The 10th International Congress of the International Radiation Protection Association, Hiroshima, 2000.5.
- 17) 山田ら：第17回エアロゾル科学・技術研究討論会、東広島、2000.8.
- 18) Yamada, Y. et al.: Healthy Buildings 2000, Helsinki, 2000.8.
- 19) Tokonami, S. et al.: Healthy Buildings 2000, Helsinki, 2000.8.
- 20) Tokonami, S. et al.: 5th International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas, Radiation Dose and Health Effects, Munich, 2000.9.

I-2 ラドンの動物曝露実験法に関する研究

小泉 彰、山田裕司、宮本勝宏、下 道國、一坪宏和（内部被ばく・防護研究部）
床次眞司、米原英典（人間環境研究部）

Researches and Developments on Radon Exposure Experiments

A. Koizumi, Y. Yamada, K. Miyamoto, M. Shimo, H. Ichitsubo (Division of Radiotoxicology and Protection)
S. Tokonami and H. Yonehara (Division of Human Radiation Environment)

ABSTRACT : A ceramic radon sources were developed as radon sources for radiotoxicological researches of radon. In order to expose the experimental animals to high concentration of radon and its progeny for long period, solid radon sources that have a high emission rate are required. However, currently available radon sources have only a 0.01 % rate of emission approximately. In order to increase the rate of emission, SiC, a fibrous and porous ceramic, was used. A known quantity of ^{226}Ra was attached on surface, and sintered for one hour between 400°C and 1000°C . The chemical forms of Ra after the sintering were RaSO_4 and RaTiO_3 . The radon sources were ventilated to extract the radon gas and the concentration of radon in the air was measured by a radon monitor (Pylon, AB5-300A). The rates of radon emission were estimated comparing with the theoretical quantity of radon production.

The measured rate of radon emission for the RaSO_4 source sintered at 400°C was 42.7% and it was 36.2% for the RaTiO_3 source sintered at 600°C . The results indicated that the rate of radon emission decreased as sintering temperature. In addition, emission rates of each radon source increased in conjunction with increased relative humidity in the air. As a result of the development of ceramic radon sources that produce higher levels of radon emission, the amount of ^{226}Ra required in biological effect studies can be reduced drastically.

I はじめに

ラドンおよびその子孫核種を実験動物に吸入曝露し、その放射線影響を観察する研究プロジェクトの中で、本研究の役割は、実験研究を実施する「場」および不可欠で基本的な道具、設備等の準備すること、である。すなわち、(1)放射性物質を使用するための施設の準備、(2)ラドンガスを放出するラドンソース、および(3)ラドンガス計測の原器であるラドン標準場の構築、の3課題である。ここでは、この3課題について、それぞれの経緯と成果を記述する。



Photo. 1 Radon research building

II- (1) ラドン研究棟の建設

平成 10 年 5 月に中性子線棟改修によるラドン研究棟の建設を補正予算として要求し、予算を得た。建設は法律に基づき直ちに建設省に支出委任されたが、人手不足を

理由にほとんど手つかずのまま次年度に持ち越された。平成 11 年度に入り、設計がスタートしたが、旧施設は老朽化のため改修・再利用に耐えないとの建設省の見解によって新営工事となった。そのため、設計完了後の工事費積算額が予算の 2.5 倍を越えてしまい、施設建設経費の削減のために研究プロジェクトの主要な部分である吸入曝露に係わる設備を削減しなくてはならなくなった。また、工事の完了・引き渡しは平成 12 年 8 月であった。

II- (2) ラドンソースの開発研究

特別研究の初年度である 10 年度は、ラドンソースの製作技術および排気中のラドンガス除去技術の開発を行った。開発すべきラドンソースには、①長期間安定してラドンガスを取り出せること、②高濃度ラドンガスが得られること、③長期間にわたって放射線による劣化（脆化）が生じないこと、の3つの特性が必要となる。



Photo 2 Electron microscope photograph of fibrous SiC ceramic

種々検討の結果、セラミックス素材の中から実験的検討によって、炭化珪素多孔質成形体と酸化チタンコーティング炭化珪素多孔質体、の 2 種類のセラミックス素材を選定し (Photo.2 参照)、それぞれ

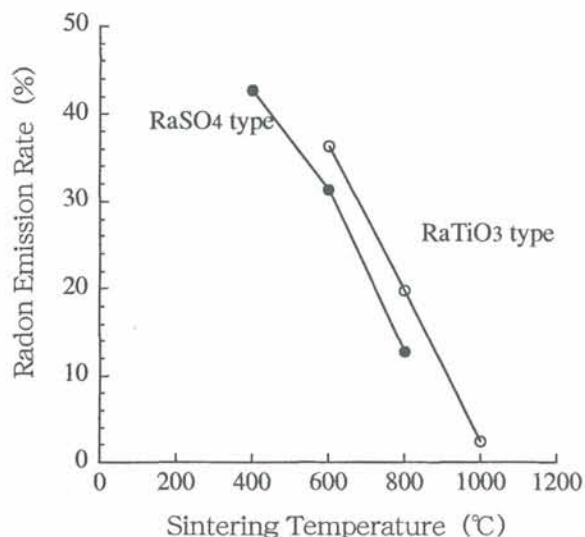


Fig.1 The effects of the sintering temperature on the radon emission rates

に既知量の ^{226}Ra を添加して様々な温度で焼結した。焼結された ^{226}Ra の化学形についても、セラミックス表面に均一にコーティングするためには硫酸ラジウムあるいはチタン酸ラジウムの形が最適であること



Photo. 3 Containers of radon sources

が判明した。得られたセラミックスラドンソースから空気の流れによってラドンガスを取り出し、その濃度および安定性を調べた。その結果、ラドンの放出率が理論発生量に対し 10~40%という極めて高い値が得られたこと、その濃度は長時間にわたって安定していたことが確かめられた (Fig.1 参照)。

11 年度は、実用ラドンソース製作の準備として、製作後の ^{226}Ra 焼結線源の収納容器 (50mCi 用 3 基、10 mCi 用 2 基、2 mCi 用 3 基) を設計・製作した。この容器は、ラドンガスの漏洩を永年に渡って防止する気密性と、使用、保管時の十分な遮蔽能力を有しており、さらに使用後の保管廃棄までを考慮した設計となっている (Photo.3

参照)。一方、ラドンガス除去技術の開発については、前述の開発したセラミックスラドンソースを用いて、沿面放電励起反応技術によるラドン固定・除去法を開発し、これらを基に 2 件の特許出願を行った。

平成 12 年度は、ラドン影響研究に用いる実用ラドンソースの製作を行なう予定であった。しかし、ラジウムの使用に係わる変更許可申請が所内事情に伴い大幅に遅れたため、ラジウムを焼結する前の 400 枚の繊維性炭化珪素セラミックスの製作と、ラジウム添加・焼結用装置の製作・据え付けを完了させた。ラジウム添加・焼結作業は、ラジウム使用に係わる使用承認 (許可) が得られしだい実施する予定であるが、申請書提出後 8 ヶ月を経過した現在もいまだ許可が下りていない。

II- (3) ラドン標準場の構築

ラドン研究棟建設の中で、ラドン標準場の設備が設置された。ラドン標準場は、約 25m³ のチャンパーで、温湿度ばかりでなく、ラドン、その子孫核種、エアロゾル濃度などを環境を模擬した空間をコンピュータ制御によって作り出せる。平成 12 年 8 月の引き渡し以降、コールドランによる調整を実施してきた。今後、ラドンソースの製作・搬入を待つホットラン調整を行ない、完成させる予定である。

ラドン標準場はラドン研究におけるラドン計測の標準であり、放医研のみならず国内、あるいは環太平洋区域におけるラドン研究の校正実験施設になることが期待される。

III 終わりに

冒頭に記した通り、本研究課題はラドンおよびその子孫核種を実験動物に吸入曝露し、その放射線影響を観察する研究プロジェクトの準備段階である。従って、その完成が早いほど研究プロジェクトが順調に進展する。しかし、ラドン研究棟建設の遅延とラドン使用に係わる変更許可申請事務の遅延が研究プロジェクトの進展を大幅に遅延させた。さらに、本研究プロジェクトの中心的な研究課題である吸入曝露実験を放棄せざるを得なかったことは慚愧に耐えない。研究者としては、豪華な建物よりも実験設備を優先させたかった。

【特許出願】

- 1) 「セラミックスラドン放射線源とその製造方法」：特願 H11-144520、小泉 彰、山田裕司、下 道國、長谷川良雄、戸祭 智、蓼沼克嘉
- 2) 「希ガス回収方法」：特願 H11-248189、小泉 彰、山田裕司、下 道國、蓼沼克嘉、野口恒行、戸祭 智、石川幸治

【研究発表】

- 1) 小泉 彰、山田裕司、下 道國、蓼沼克嘉：曝露実験用ラドン線源の試作、日本保健物理学会第 34 回研究発表会、大分、1999 年 5 月。
- 2) 蓼沼克嘉、石川幸治、戸祭 智、野口恒行、小泉 彰、山田裕司、下 道國：放射性希ガスの化学トラップ技術の開発研究 (1)、ラドンガスの化学トラップ、日本

- 原子力学会 1999 年秋の大会、柏崎、1999 年 9 月
- 3) 石川幸治、戸祭 智、野口恒行、蓼沼克嘉、小泉 彰、山田裕司、下 道國：放射性希ガスの化学トラップ技術の開発研究 (2)、放射性キセノンガスの化学トラップ、日本原子力学会 1999 年秋の大会、柏崎、1999 年 9 月
 - 4) A. Koizumi, Y. Yamada, M. Shimo, K. Tatenuma, S. Tomatsuri, and T. Noguchi; Radon emission Rate of a Ceramic Radon Source. *The 10th International Congress of the International Radiation Protection Association*. Hiroshima 2000.
 - 5) K. Tatenuma, K. Ishikawa, S. Tomatsuri, T. Noguchi, A. Koizumi, Y. Yamada, and M. Shimo; Developmental study of chemical trapping method for radon. *The 10th International Congress of the International Radiation Protection Association*. Hiroshima 2000.
 - 6) K. Tatenuma, K. Ishikawa, S. Tomatsuri, T. Noguchi, A. Koizumi, Y. Yamada, and M. Shimo; Cleaning indoor air based on chemical trapping for radon. *Healthy Building 2000*. Finland August 2000.
 - 7) 山田裕司：放医研ラドン実験施設の紹介、日本原子力学会 2001 年春の年会、東京、2001 年 3 月

I-3 ラドンの線量評価及び生物学的指標に関する研究

山田 裕、福津久美子、小木曾洋一、榎本宏子、石樽信人、下 道國（内部被曝・防護研究部）

Studies on Biodosimetry for Estimating Radiation Dose to the Respiratory Tract Cells from Inhaled Radon

Y. Yamada, K. Fukutsu, Y. Oghiso, H. Enomoto, N. Ishigure and M. Shimo (Division of Radiotoxicology and Protection)

ABSTRACT : Exposures to radon and radon progeny lead to α -particle irradiation of cells in the respiratory tract and increase the risk of lung tumor. The absorbed dose in target cells' level, however, remains unclear. Lung model of ICRP publication 66 describes that the cells at risk of respiratory tract tissues are secretory and basal cells in bronchial airways, and Clara and Type II cells in alveolar interstitial region. The model requires the calculation of absorbed dose in tissue layers containing the target cells. Recently, biodosimetric approach has been developed and applied to estimate absorbed dose in respiratory tract cells. In the biodosimetry, responses of isolated cells that have been previously exposed to α emitters *in vivo* are compared to the responses obtained from similar populations of cells that are irradiated *in vitro* using α sources. The purpose of this study is to investigate the dose-response relationships of radiation-induced cell death and micronucleus formation as a preliminary experiment for biodosimetry in respiratory epithelial cells of rat utilizing immortalized Type II cell line. In addition, a method of isolating primary Type II cells from rat is developed.

Survival fractions and micronucleus formation frequencies were studied in rat alveolar epithelial cell line (SV40T2) irradiated *in vitro* to α -particles (^{241}Am , 0.1 Gy/min, 0.1~1.2 Gy) or X-rays (200 kVp, 1 Gy/min, 0.5~5 Gy). The survival curve for α -particles irradiation was exponential with a D_{37} of 0.8 Gy, and the relative biological effectiveness (RBE) value was 3.8, as determined at D_{37} . The cytochalasin B blocking technique was employed to measure frequencies of micronucleus induction. A linear relationship between the dose and the micronucleus formation frequencies was observed for doses until 1 Gy of α -particles and 4 Gy of X-rays. The straight line of the dose response curve fitted to $Y=a+bD$ (Y : the micronucleus formation frequency (%), a : the micronucleus formation frequency in control subjects, b : the linear slope, D : the dose in Gy). The frequencies in control (a) were 1.0~3.2 and the slopes for α -particles (b) was 28.5. The RBE value was 4.3, as calculated from the slopes. The slope for α irradiation was dependent on the energy of the α -particles. These results indicate that the micronucleus assay is available for biodosimetry of α particle irradiation in rat respiratory epithelial cells, although consideration should be given to the range of the linearity and the LET of α -particles.

Pneumocytes were isolated from lung of Wister rats by dispase digestion and separated on isotonic Nycodenz gradients. Type II cells rich fraction was recovered from the density range around 1.06 g/ml of the Nycodenz gradient. The cell yield was $5 \times 10^5 - 2 \times 10^6$ cells per rat. Type II cells were identified by immunohistochemistry utilizing epithelial cell-specific rat cytokeratin 17 antibody and by alkaline phosphatase staining. The purity was approximately 40% in the staining. The cells could be cultured on Mylar bottom dishes for α irradiation. It is possible to obtain relatively pure Type II cells from rat that can be used for biodosimetry assay.

This approach provides a biologically based method for estimating the α dose to the respiratory tract epithelial cells from inhaled radon and radon progeny.

I 意義と目的

ラドンによる吸入被曝では、呼吸器内の照射部位がアルファ線の到達できる範囲に限局されるという特異性から、細胞レベルでの線量評価が必要となる。そのため、線量評価モデルが考案され、照射線量分布の予測がなされているが、モデルの予測値を確認する実験データは不足している。ラドン吸入被曝による細胞レベルでの吸収線量を実験的に求めるためには、既知濃度のラドンに暴露した実験動物から分離した呼吸気道の細胞の生物学的反応と、正確に線量が計算されたアルファ線源によって照射された同じ種類の分離細胞の反応を比較することにより照射線量を求めるバ

イオドシメトリーが有効な方法である。

本研究は、1) 培養気道上皮細胞株を用いた系において、アルファ線照射による生物学的反応の指標として細胞死、小核形成の発生率を調べ、2) ラドンの吸入により生じる肺腫瘍の標的細胞と考えられている気道の上皮細胞の分離・培養法を検討することにより、バイオドシメトリーに必要な基礎的データを得ることを目的とする。本研究は、最終的にラドン曝露量と照射線量の関係（線量換算係数）を求め、より精度の高い線量評価モデルを構築するために重要な意義をもつ。

II 培養細胞に対するアルファ線照射効果

国際放射線防護委員会(ICRP)の新呼吸気道モデル(Publication 66)では、各気道領域毎に発がんリスクを考慮すべき細胞(cells at risk)を標的細胞と定め、その細胞核が分布する組織層の吸収線量が計算される。そのような標的細胞は、例えば気管支領域では分泌細胞と基底細胞、肺泡一問質領域ではクララ細胞と II 型上皮細胞とされている。国外の研究機関でおこなわれているラットのラドン吸入曝露実験において、発生した肺腫瘍の起源となる細胞を調べるための免疫組織化学的解析がなされているが、抗 pneumocyte II (II 型上皮細胞)抗体には、良性腫瘍で 83%、悪性腫瘍でも 78%の陽性率を示したが、抗クララ細胞抗体には陰性であった(フランス原子力局、放射線生物学・病理学研究部門報告書、1998-1999)。このことは、ラットにおいてラドンによる肺腫瘍は、主に II 型上皮細胞に由来していることを示している。そこで、この II 型上皮細胞における放射線影響の特異性を調べる目的で、ラットの肺泡上皮細胞を不死化することにより確立された II 型上皮細胞株(SV40T2)を用いて、アルファ線照射の影響を生残率および小核形成率を指標とした線量効果関係、エネルギー依存性および生物学的効果比(RBE)を検討した。

方法：SD ラットの新生仔肺より確立された II 型上皮細胞株(SV40T2)は、Dr. Clemente より供与を受けた。細胞を 10%の牛胎児血清を含む DMEM 培養液中で、底部が厚さ $4\mu\text{m}$ のポリエステル (Mylar) 膜よりなる培養皿に単層培養し、 ^{241}Am を線源としたアルファ線(約 0.1 Gy/min 、 $128\text{ keV}/\mu\text{m}$ 、 $0.1\sim 1.2\text{ Gy}$)を下側から膜を通して照射した。対照として X 線(1 Gy/min 、 200 kVp 、 20 mA 、 $0.5\sim 5\text{ Gy}$)の照射実験も同時におこなった。照射直後に 0.1% トリプシン溶液で細胞を膜より分離し、細胞数を計数後 10^5 cells/ml の濃度に調整した。生残率曲線を求めるためのコロニーアッセイでは、細胞を直径 60 mm のプラスチックシャーレに播き、インキュベータで 5 日間培養後ギムザ染色をおこない、50 個以上の細胞よりなるコロニーを計数して生残率を算出した。小核アッセイでは、サイトカラシン B を $5\mu\text{g/ml}$ の濃度になるように加え、 0.5 ml づつ 4 ウェルのチェンバースライドガラスに播き、インキュベータで 20 時間培養した。 0.01% アクリジン・オレンジで細胞核を染色して、蛍光顕微鏡下で 2 核細胞を 1000 個計数し、そのうちの小核形成細胞の割合をパーセントで表示した。

結果：今回使用した SV40T2 細胞において、生存率曲線より求めたアルファ線の D_{37} はおよそ 0.8 Gy であり、X 線の D_{37} と比較した RBE は約 3.8 であった(Figure 1)。小核形成率は、非照射細胞において $1.0\sim 3.2\%$ であり、照射線量に依存して直線的に増加した。しかしながら、アルファ線照射で 1 Gy 、X 線照射では 4 Gy を越えたあたりから直線性が失われ、直線の傾きが減少した。直線部分の関係式は、 $Y=a+bD$ (Y ：小核形成率(%), a ：非照射細胞での小核形成率、 b ：単位線量当りの小核形成率の増加分、 D ：線量(Gy))で示され、 b の値は、アルファ線照射の場合では 28.5 であり、X 線照射の b の値と比較した RBE は 4.3 であった(Figure 2)。

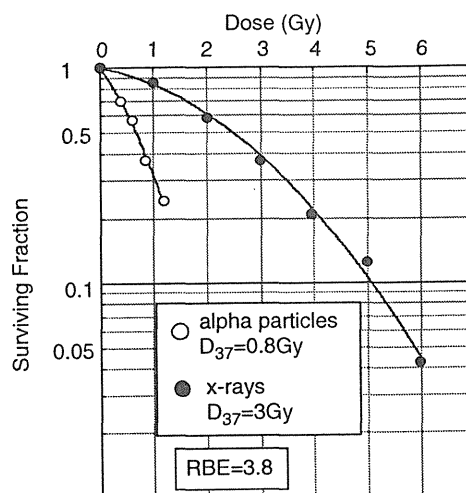


Figure 1 Dose-response relationships of survival fraction induced by α -particle (○) and X-ray (●) irradiation.

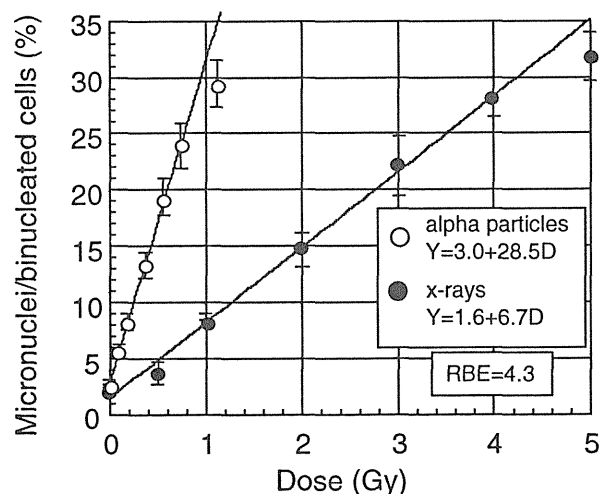


Figure 2 Dose-response relationships of micronucleus induction induced by α -particle (○) and X-ray (●) irradiation.

次に小核形成率に対するアルファ線の LET 依存性を調べた。培養皿の底部のマイラー膜の厚さを $4\mu\text{m}$ から $8\mu\text{m}$ ($156\text{ keV}/\mu\text{m}$)、 $12\mu\text{m}$ ($212\text{ keV}/\mu\text{m}$)および $16\mu\text{m}$ ($178\text{ keV}/\mu\text{m}$)に変えて照射実験を行い、それぞれの膜厚におけるアルファ線の吸収線量から小核形成率の傾きを求めて比較した。アルファ線の LET が $128\text{ keV}/\mu\text{m}$ から $178\text{ keV}/\mu\text{m}$ までは、その傾きは $27\sim 29\%/Gy$ とほぼ一定であったが、 $212\text{ keV}/\mu\text{m}$ では $13\%/Gy$ に減少した(Figure 3)。

これらの結果は、アルファ線照射におけるバイオドジメトリーの生物学的指標として小核形成を有効に用いることができることを示すが、線量と小核形成率の間の直線関係には範囲があることと、小核形成率がアルファ線の LET に依存することをバイオドジメトリーの適用にあたって考慮していく必要がある。

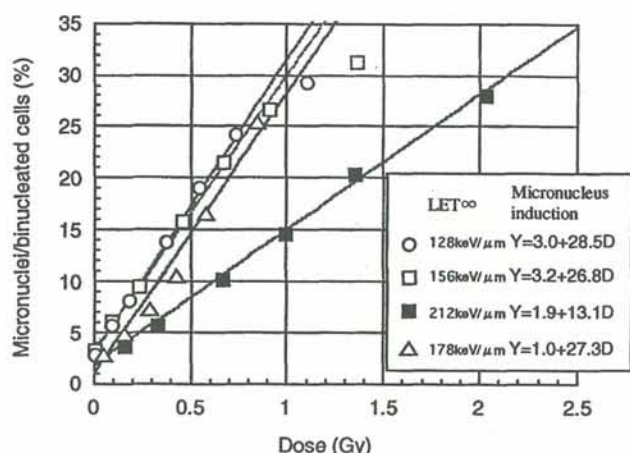


Figure 3 Dose-response relationships of micronucleus induction by α -particles of different energies. The LET: 128 keV/ μ m (\circ); 156 keV/ μ m (\square); 212 keV/ μ m (\blacksquare); 178 keV/ μ m (\triangle).

III 実験動物からの上皮細胞の分離・培養

肺胞上皮は2種類の細胞より成る。一つは、I型肺胞上皮細胞と呼ばれ、きわめて薄く扁平形の小型細胞で、その薄膜状の胞体は肺胞表面を覆っている。細胞内小器官が少なく、分化を終えた細胞で増殖しないと考えられている。もう一つは、やや大型立方形のII型肺胞上皮細胞で、顆粒状小体を持ち、しばしば層板小体を形成する。小体内容は肺胞内に放出され、表面活性物質として作用する。増殖能があり、肺胞上皮細胞における幹細胞とされている。そこで、この肺腫瘍の標的細胞の一つと考えられているII型肺胞上皮細胞の分離・培養法について検討した。

方法：ウイスター系雄ラット(8~12週齢)の肺を洗浄した後、気管よりディスパーゼ酵素液(1000U/ml)を注入して結合組織を消化し、さらに細切後、37°Cで30分間酵素処理をして肺の細胞を分散した。ナイロンメッシュでろ過した後、ナイコデント密度勾配遠心分離にかけ、密度がおおよそ1.06 g/mlのところより上皮細胞を多く含む画分を回収した。細胞をサイトスメアによりスライドガラス上に固定した後、ギムザ染色による形態観察の他、上皮細胞の指標であるアルカリフォスファターゼ染色、及び抗ラットサイトケラチン17抗体を用いた免疫組織化学染色をおこなった。また、ラットの上皮細胞増殖因子等を含む無血清培地を用いて初代培養を試みた。

結果：回収された細胞数は、ラット1匹あたり、 $5 \times 10^5 \sim 2 \times 10^6$ 個であった。上皮細胞の指標であるアルカリフォスファターゼ染色 (Figure 4)、及びサイトケラチン17の免疫組織化学染色 (Figure 5)でおよそ4割が陽性を示した。陰性の細胞は、抗マクロファージ(M ϕ)抗体染色やギムザ染色での形態観察より、混入したM ϕ 、リンパ球および

線維芽細胞等と考えられた。これらの細胞をコラーゲンコートをした培養皿や、アルファ線照射用の培養皿において無血清培地で培養したところ、上皮細胞が2週間程度生存し、初代培養が可能ながわかった。尚、この培地では、混在するM ϕ やリンパ球は1週間以内に死滅し、線維芽細胞は増殖が抑制された。

以上の結果より、II型細胞を含む肺胞上皮細胞の初代培養ができるので、これらの細胞を小核形成を指標とした短期培養の試験系に利用できる可能性が示された。しかしながら、試験の精度を上げるためには、さらに上皮細胞を純化する必要があり、また、コロニー形成による細胞増殖を調べるためには継代しなければならないので、今後、最適な増殖因子の種類や濃度、培養液の組成等の培養条件を検討し、長期間の培養と継代を可能にする必要がある。

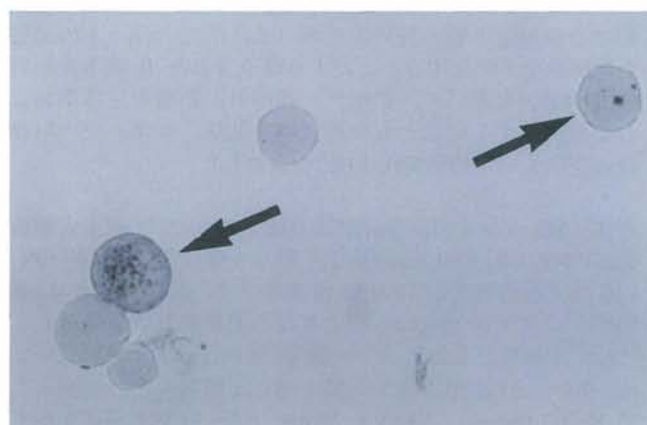


Figure 4 Alkaline phosphatase staining of Type II cells (arrow) with 1% safranin counterstain.

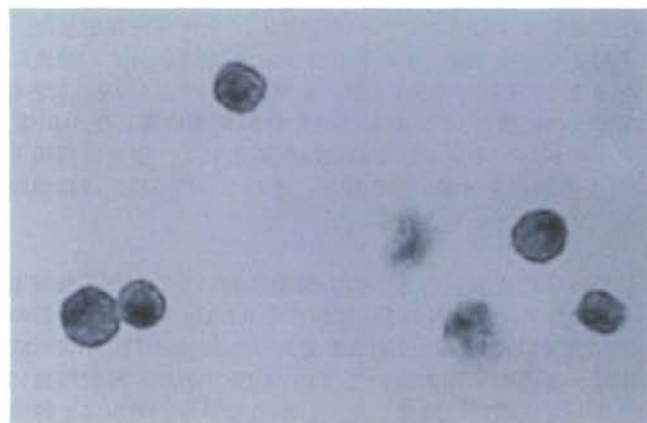


Figure 5 Rat cytokeratin 17 immunohistochemical staining of Type II cells.

IV 結言

実験動物の肺腫瘍に関係するII型肺胞上皮に由来した細胞株において、小核形成を指標とするアルファ線照射の影響を調べた研究は今回が初めてである。腫瘍誘発に密接に関連しているような指標、例えば形質転換や腫瘍関連遺伝

子の発現及び突然変異等を指標に用いれば、バイオドシメトリーに加えリスクの予測にも有効となりうると考えられる。II 型肺胞上皮細胞以外の標的細胞についても、気道の異なる部位から細胞を分離したり、細胞の種類に分けてアルファ線に対する感受性を比較することにより、さらに詳細な線量評価モデルの確立と、そのヒトへの適用および外挿が可能となるだろう。

[主要研究発表]

- 1) 山田、福津、小木曾、榎本、石樽、下：日本保健物理学会第 34 回研究発表会、大分、1999.5.
- 2) Yamada, Y., Oghiso, Y., Enomoto, H., and Ishigure, N.: Induction of Micronuclei in Rat Alveolar Epithelial Cell Line by Alpha Particle Irradiation, Radiat. Prot. Dosimetry, (in press)

I-4 ラドン/トロンの健康影響データベースの構築と リスク解析に関する研究

土居雅広（第4研究グループ）、米原英典、藤元憲三（人間環境研究部）、下 道国（内部被ばく・防護研究部）

Construction of the Hybrid (Fact and Knowledge) Data Base on the Health Effects of Radon/Thoron Exposures

M. Doi (Environmental and Toxicological Sciences Research Group), H. Yonehara, K. Fujimoto (Division of Human Radiation Environment) and M. Shimo (Division of Radiotoxicology and Protection)

ABSTRACT : The hybrid data base on the health effects of radon/thoron exposures was constructed with both fact and knowledge-base data. The data base features the Epidemiology on residential radon and lung cancer, Dosimetry of Respiratory Tract with mathematical model, Biodosimetry, Animal Experiments on the health effects of radon exposure Theoretical Model /Dose response of radon carcinogenesis, and Future Study proposals.

Utilizing the data base, etiological risk of lifetime lung cancer mortality per unit radon exposure in WLM was estimated for different subject population and the year of interest. To answer quantitatively how much are the differences among the projected risks for different populations, the Swedish case-control-study-based risk projection model was applied to the Japanese and Swedish populations from 1962 to 1997 as subject populations because of their contrastive trends of lung cancer rates. To compare the results with the reference population and authorized risk projection models, U.S. population 1997 and the two risk projection models in BEIR VI report were applied respectively.

Lifetime risk of lung cancer mortality projected for Japanese, Swedish and U.S. populations in 1997 per radon progeny exposure were estimated to range from 1.50 (0.40-3.19) to 9.86 (2.62-20.9) $\times 10^{-4}$ WLM⁻¹, which could be compared to the detriment associated with a unit effective dose. Conclusive dose conversion coefficient in this study was ranged from 2.05 (0.55-4.37) to 13.5 (3.59-28.6) mSv WLM⁻¹, and within this range, the discrepancy between dosimetric and epidemiological approaches was included.

1. 研究の背景と目的

国際放射線防護委員会は、その 1990 年勧告において、従来は放射線防護体系の対象外としてきた自然放射線被ばく源についても、人為的に高められた線源については、放射線防護の対象とすることとした。具体的には、欧米諸国において相次いで見いだされた高濃度の家屋内ラドンが新たに放射線防護の対象となり、空气中ラドン濃度に介入レベル (intervention level) が設定された。

米国科学アカデミー・電離放射線の健康影響に関する検討委員会報告書 (BEIR-IV, 1988 年) では、ウラン鉱山労働者における肺がん影響に関するコホート調査がレビューされた。ラドンの吸入による肺がん誘発リスクが推定され、喫煙等の交絡因子との相乗効果等が見いだされた。これを受けて、米国や北欧諸国等では、1985 年頃より、屋内ラドン濃度低減のための様々な取り組みが大々的に行われた。しかし、家屋内ラドンの肺がん誘発リスクをウラン鉱山労働者のコホート調査に基づいて推定する手法には、坑道内作業環境と居住家屋内環境の違い、リスク推定モデルによる評価結果の違い等を考慮すると、検討すべき点が多く残されている^{1,2,3)}。これらのことから、家屋内ラドン濃度と肺がんに関する疫学調査の実施が待望され、特に平均家屋内ラドン濃度が高く、がん罹患登

録制度が完備しているスウェーデンにおいて、本格的な「家屋内ラドンと肺がんに関する疫学調査 (患者対照研究)」が最初の実施され、大きな関心を集めた (スウェーデン国立放射線防護研究所とカロリンスカ医科大学環境医学研究所の共同研究)^{4,5,6,7)}。

わが国における家屋内ラドン濃度調査の取り組みは、放医研が開発したラドン・トロン濃度弁別測定器を用いて 1992-1996 年に実施された^{8,9,10)}。

一方、ラドンと肺がんに関する影響研究としては、わが国の三朝温泉地域の地域相関研究 (御船ら、1992 年)¹¹⁾ や、米・ピッツバーグ大学の Cohen 教授の行った屋内ラドンと肺がんに関する地域 (郡) 相関研究¹²⁾ の成果が報告された。これらの地域相関研究では、屋内ラドンが平均的に高い地域において必ずしも肺がんの増加が観察されず、むしろ逆に減少している地域があることが主張され、屋内空気中のラドン濃度から推定される住民の被ばく線量と肺がん等の誘発リスクとが比例するという BEIR (米国科学アカデミー・電離放射線の健康影響に関する検討委員会) -IV 報告書 (1988 年) のリスク推定手法と真つ向から対立するものであった (これらの論争により、BEIR-IV 報告書 (1988 年) を改訂する気運が高まり、1999 年には、BEIR-IV 報告書の改訂として BEIR-VI 報告書が刊行された)。

本研究の目的は、ラドン (Rn-222) およびトロン (Rn-220) の健康影響に関する数値データベース、文献・知識データベースを構築し、その知見を基にリスク解析モデルを開発して今後のラドン健康影響研究の方向性を示唆することである。

2. 研究の方法

2-1 ラドン・トロンの健康影響データベースの構築

科学技術振興調整費を得て開催した「屋内ラドンの健康環境に関する国際ワークショップ (1997 年)」における学術成果を基に、ワークショップにおける講演内容を再編・整理して、ラドンの公衆被ばくリスクの評価に有用な数値情報および知識 (文献) 情報を「データベース」として構築した。

2-2 屋内ラドンによる肺がんリスク推定

公衆の放射線被ばく源として寄与の大きい家屋内ラドンの健康影響について、BEIR (米国科学アカデミー・電離放射線の健康影響に関する検討委員会) 報告書 (BEIR-IV 報告書, 1988 年, BEIR-VI 報告書, 1999 年) が提案している過剰肺がん誘発率推定モデルをレビューした。

BEIR 報告書の過剰肺がん誘発率推定モデルは、ウラン鉱山労働者のコホート調査における相対リスクに基づいている。

これに対して、スウェーデンでの「家屋内ラドンと肺がんに関する疫学調査 (患者対照研究)」において得られた相対リスクに基づいた過剰肺がん誘発率推定モデルを新たに開発した (スウェーデン国立放射線防護研究所およびカロリンスカ研究所との国際共同研究)。

これら過剰肺がん推定モデルを、1961 年から 1997 年までのスウェーデン及び日本の人口動態統計データ、1997 年の米国の人口動態統計データにそれぞれ適用し、国別、時代別に家屋内ラドンによる生涯肺がん誘発確率を推定し、比較解析した。

3. 成果の概要

3-1 ラドン・トロンの健康影響データベースの構築

ラドン健康影響研究において、第一線で活躍する国際的な研究者を放医研に招聘して開催した「屋内ラドンの健康環境に関する国際ワークショップ (1997 年)」における講演内容を基に、各講演者に、最新の研究成果を追加して執筆して頂いた学術資料を取りまとめ、書籍として編集出版した (邦題「屋内ラドン被ばくとその健康影響—環境ラドンと肺がんに関する真のストーリーを求めて—」、稲葉次郎、米原英典、土居雅広・編、講談社サイエンティフィック、ISBN4-906464-10-6、173 頁、1999 年)。本書は、「疫学研究」「動物実験研究」「線量評価研究」「発がん・線量効果関係に関する理論モデル研究」の各章で構成され、それぞれの分野における最新の研究成果を要約して示すことができ、関連分野の研究者から、大きな反響を得た。本書に所収した学術資料のリストを Table 1 に示す。

Epidemiology

1. O. Axelson : Epidemiological Research on Environmental Radon and its Health Consequences
2. R. Falk et al. : Retrospective Estimation of Residential Radon Exposure
3. T. Subue, et al. : Cancer Incidence in Misasa : A Spa Area in Japan with Elevated Radon Levels
4. B.L. Cohen : Test of the Validity of the Linear-no Threshold Theory of Radiation Carcinogenesis with a Survey of Radon Levels in U.S. Homes
5. Y. Ishikawa et al. : Lung cancer associated with Thorotrast Exposure : Measurement of Exhaled Rn-220 and Histo-pathological Examinations of Autopsy Cases

Dosimetry

6. A. Birchall and A.C. James : The New ICRP Respiratory Tract Model and Radon Dosimetry
7. A.L. Brooks et al.: Radon Induced Micronuclei in Respiratory Tract Biodosimetry

Animal Experiments

8. F.T. Cross and G. Monchaux : Risk Assessment of Radon health Effects from Experimental Animal Studies- A Joint Review of PNNL (USA) and CEA-COGEMA (France) data
9. J. Strong, et al. : The Performance of a Facility for Exposing Small Rodents to Radon Progeny
10. J.P. Morlier et al. : Early Cellular Effects of Radon Exposure and Comparison of Experimental Data Between CEA and AEA
11. H. Yonehara et al.: Changes in SOD Activity in Organs of Rat Induced by Radon Exposure

Theoretical Model /Dose response study

12. R.W. Bartstra : Theoretical Plausibility of a Non-linear Dose-response Relationship in Low Dose Radon Carcinogenesis
13. E.G. Luebeck et al.; A Biologically-based Model for Radon-induced Malignant Lung Tumors
14. Y. Oghiso : Differential Dose Responses of Pulmonary Tumors in rats after Inhalation of Insoluble Plutonium Dioxide Aerosols

Future Study

15. M. Shimo : Study on the Health Effects of Radon Exposure

Table 1 Contents of the fact book entitled 'Indoor Radon Exposure and Its Health Consequences – Quest for the true Story of Environmental radon and Lung Cancer', Editor: Inaba, J. Yonehara, H. Doi, M., Publisher : Kodansha Scientific, Ltd, 1999 (ISBN4-906464-10-6).

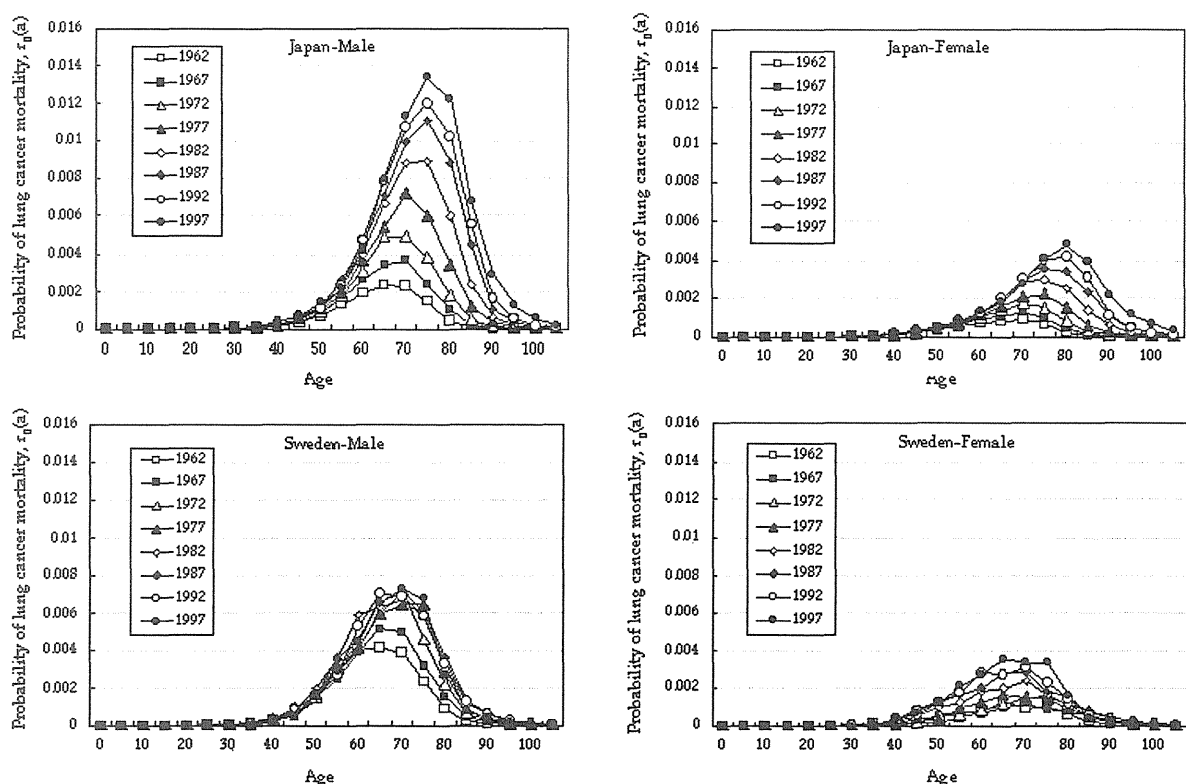


Fig.1 Probability of Lung Cancer Mortality by Age in the presence of other causes of death for Japanese and Swedish Population from 1962-1997 (after Health Physics, 80(6), 552562, 2001)

本書の本文および図表は、すべて電子化されており、本文及び図は情報（文献）データベースとして、表は数値データベース（スプレッドシート形式）として、インターネット等により配信することができる。

3-2 屋内ラドンによる肺がんリスク推定

モデル計算の基礎データとして、1962年から1997年（一部1998年）までの日本人およびスウェーデン人集団の人口動態統計データベース、喫煙等の交絡因子関連のデータベースをそれぞれ整備した。米国人集団については、

1997年の統計データをデータベースとして整備した。1962年から1997年における日本およびスウェーデンの年齢別自然肺がん死亡率をFig.1に示す。

わが国の男女の喫煙率は、男性は全年齢で減少傾向にあるものの、女性は横ばいで、若年齢層については、増加傾向が見られる。1962年から1998年のわが国人口集団における性別、年齢階級別の喫煙率の推移をFig.2に示す。

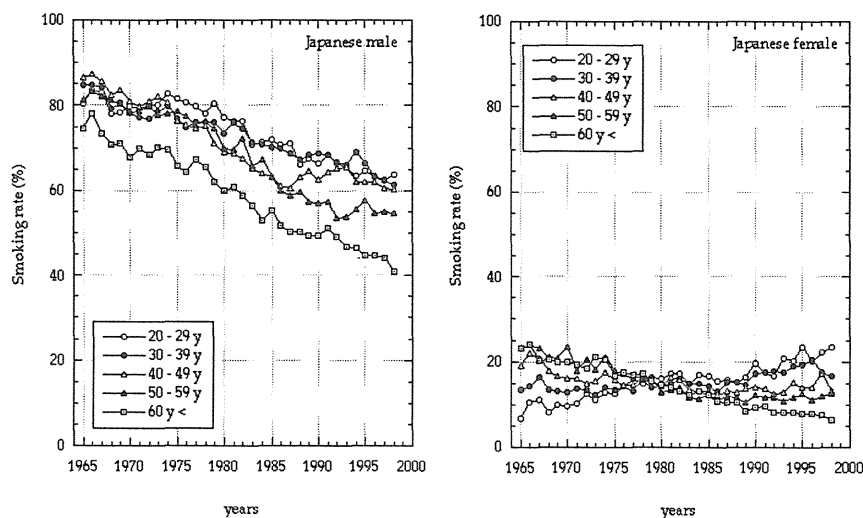


Fig.2 Smoking rate of Japanese populations by 10 y age group from 1962-1998 (after Health Physics, 80(6), 552562, 2001)

1962 年から 1998 年におけるわが国およびスウェーデン人口集団の男女別喫煙率を Fig.3 に比較して示す。

スウェーデン国立放射線防護研究所、カロリンスカ医科大学との共同研究により、家屋内ラドンと肺がんに関する患者対照研究結果（相対リスク 0.020 (95%CI 0.0055-0.0433) per WLM）をベースにしたリスク推定モデルを新たに開発した。このモデルの特性を把握するため、米国科学アカデミー・電離放射線の健康影響に関する検討委員会報告書(BEIR-VI, 1999 年)のリスク推定モデル（Exposure-Age-Duration model, EAD モデルと Exposure-Age-Concentration model, EAC モデル）との比較を試みた。米国、日本、スウェーデンの 1997 年の人口動態統計を用い、年齢別バックグラウンドの肺がん死亡率にそれぞれのモデルを適用して推定したラドン暴露量 0.1 WLM あたりの過剰生涯肺がん誘発リスクを Fig. 4 に示す。

リスク推定値は、人口集団毎、リスク推定モデル毎に異なり、1WLM あたり 1.50(95%CI 0.40-3.19) から 9.86 (2.62-20.9) $\times 10^{-4}$ までの幅を得た。これを広島・長崎の原爆被爆者健康調査における実効線量あたりの過剰リスク係数 $7.3 \times 10^{-5} \text{ mSv}^{-1}$ で除すことにより、ラドン被曝量—実効線量換算係数として、2.05 (0.55-4.37) to 13.5 (3.59-28.6) mSv WLM^{-1} を得た。この結果において、従来、不一致が問題視されてきた呼吸気道モデルによる換算係数 (13-15 mSv WLM^{-1}) は、その範囲に含まれることが明らかになった。

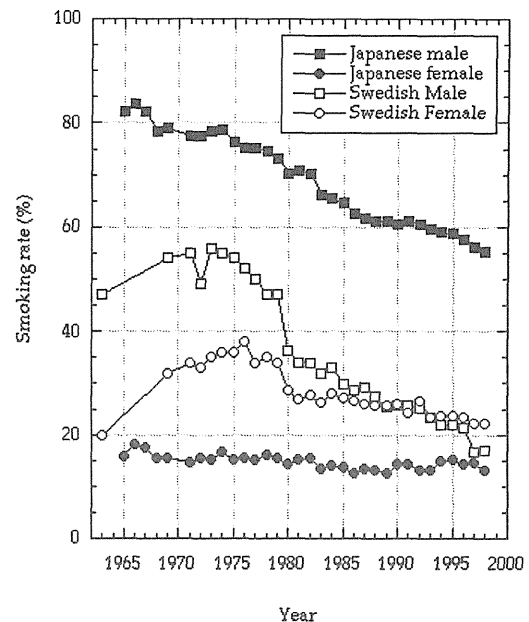


Fig.3 Smoking rate of Japanese and Swedish males and females from 1962-1998 (after Health Physics, 80(6), 552562, 2001)

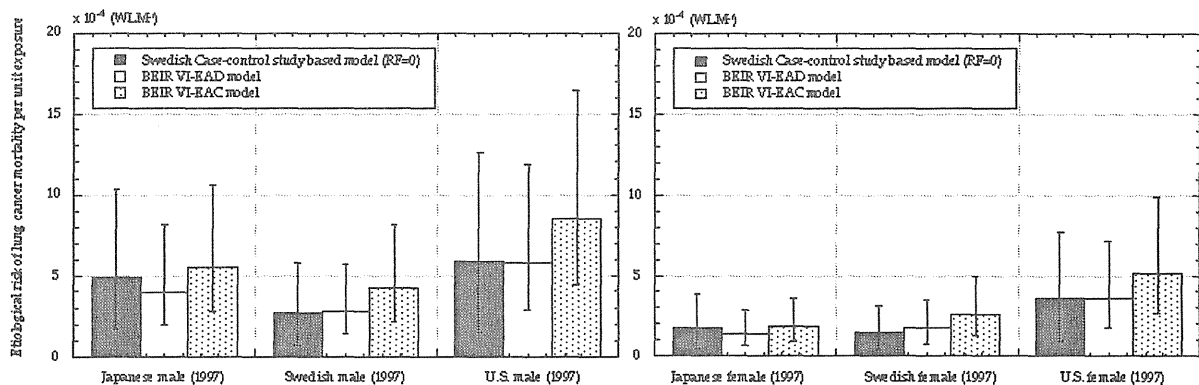


Fig.4 Etiological risk of lung cancer mortality projected to the Japanese, Swedish and U.S. populations in 1997 by the Exposure-Age-Duration (EAD) model, Exposure-Age-Concentration (EAC) model (BEIR 1999) and the Swedish Case-control-study-based risk projection model in the case of $RF = 0$ at an exposure rate of 0.1 WLM y^{-1} . Error bars reflect the 95% confidence interval of excess relative risk coefficient of each model.

[参考文献]

- 1) 米原英典、ラドンのリスク評価研究、放射線科学 Vol.39 No.12,458-464, 1996.
- 2) 米原英典、放射性防護におけるリスク評価の問題点、放医研環境セミナーシリーズ vol.24、91-99, 千葉.1996.米原英典、放射性防護におけるリスク評価の問題点、放医研環境セミナーシリーズ、vol.24、91-99, 1996.
- 3) 米原英典、ラドン影響の研究-屋内ラドンは本当に危険か-、日本分析センター広報 No.28, 38-46,1996.

- 4) M. Doi, S. Kobayashi : Surveys of concentration of radon isotopes in indoor and outdoor air in Japan, Environment International, 22, 649-655, 1996.
- 5) 土居雅広：スウェーデンにおける家屋内ラドン事情、アイソトープニュース, 18-21, 1996.
- 6) 土居雅広：北欧諸国における屋内ラドンと肺がんに関する調査について、放射線疫学研究の新しい展開—放射線の健康影響に関するデータベースの構築に向けて—(稲葉次郎／中村裕二編) ISBN4-938987-00-7, 28-92, 1997.
- 7) 土居雅広：ミセス・ラドンの退官—スウェーデン

ン国立放射線防護研究所留学記一、保健物理、32巻、99-103, 1997.

- 8) 藤元憲三他、屋内ラドン濃度全国調査、保健物理 32(1),41-51,1997.
- 9) 放射線医学総合研究所：ラドン濃度全国調査最終報告書、NIRS-R-32、1997.
- 10) 放射線医学総合研究所：ラドン濃度全国調査最終報告書、NIRS-R-34、1998.
- 11) Mifune,M. Sobue,T. Arimoto, H., Komoto, Y., Kondo, S, Tanooka, H. Cancer mortality survey in aspa area (Misasa, Japan) with a high radon background., Jpn. J. Cancer Res., 83, 1-5, 1992.
- 12) Cohen.B.L. Test of the linear-no threshold theory of radiation Carcinogenesis for inhaled radon decay products, Health Physics, 68, 157-174, 1995.

[研究発表]

- 1) 下 道国：ラドンの人体への影響評価—ラドンによる線量算定の方法、保健物理、34,130-132,1999.
- 2) 藤元憲三：ラドンの人体への影響評価—わが国のラドン濃度の代表値、保健物理、34,133-136,1999.
- 3) 土居雅広：ラドンの人体への影響評価—相反する疫学調査結果、保健物理、34, 146-150,1999.M. Shimo: Effective dose for radon progeny in Japan, World Scientific, 540-547, ISBN-981-02-3443-0 Singapore, 1998.
- 4) Y,Yamada, A. Koizumi, H. Yonehara, M. Shimo, J. Inaba: Prototype exposure chamber of radon for animal experiments, World Scientific, 67-72, ISBN-981-02-3443-0 Singapore, 1998.
- 5) K. Fujimoto: Correlation between nationwide indoor radon and terrestrial gamma survey data in Japan, World Scientific, 385-390, ISBN-981-02-3443-0 Singapore, 1998.
- 6) M. Doi, R. Falk, I. Ostergen: Intercomparison of passive radon dosimeters developed by NIRS (Japan) and SSI (Sweden), World Scientific, 39-44, ISBN-981-02-3443-0 Singapore, 1998.
- 7) R. Falk, M. Doi, H. More: Thoron intercalibration procedures, Proceedings of the 7th International Symposium on Radon and Thoron in the Human Environment, 45-49, World Scientific, Singapore, ISBN-981-02-3443-0, 1998.
- 8) L.F. Toussaint, S. Tokonami, M. Doi, S.B. Solomon, J.R. Pegg: The measurement of Thoron Concentrations in Australia using the Japanese Passive R-T dosimeter, p 373-378, World Scientific, Singapore, ISBN-981- 02-3443-0, 1998.
- 9) Tetsuya Sanada, Kenzo Fujimoto, Keiji Miyano, M. Doi, Shinji Tokonami, Masaki Uesugi, Yoshinori Takata: Measurement of nationwide indoor Rn concentration in Japan, J. Environmental Radioactivity, 45, 129-137, 1999.
- 10) M.Do, Y. Nakamura, N.Ogiu, F.Lagarde, R.falk, G.A. Swedjemark: Effective dose due to exposure to radon progeny for Swedish and Japanese Populations : An epidemiological approach, Radiation Research, 152, 166, 1999.
- 11) 米原英典：トロンによる線量寄与、NIRS-M-140,1343-0769, 109-117, 2000.
- 12) 藤元憲三：屋内ラドン濃度の地域特性、NIRS-M-140,1343-0769, 39-45, 2000.
- 13) 下 道国：線量評価法、NIRS-M-140,1343-0769, 118-123, 2000.
- 14) 土居雅広、中村裕二：BEIR VI にみるラドン影響の考え方、NIRS-M-140,1343-0769, pp156-167, 2000.
- 15) M.Do, T. Sakashita, Y. Nakamura, N.Ogiu, F.Lagarde, R.falk: Lifetime risk of Lung Cancer Due to Radon Exposure Projected to Japanese and Swedish populations, Health Physics, 80(6), 552-562, 2001.

[口頭発表]

- 1) 藤元憲三：わが国のラドン濃度の代表値はこれでよいのか、日本保健物理学会シンポジウム「屋内ラドンは本当に肺がんを起こすか?」、1999.
- 2) 土居雅広：地域相関研究における逆相関とスウェーデンにおける患者対照研究における順相関をどう解釈するか、日本保健物理学会シンポジウム「屋内ラドンは本当に肺がんを起こすか?」、1999.

I-5 ラドンの低減に関する研究

藤元憲三、古川雅英、床次眞司、(人間環境研究部)、藤高和信 (国際宇宙放射線医学研究センター)

Research on Radon Concentration Reduction

K. Fujimoto, M. Furukawa, S. Tokonami (Division of Human Radiation Environment) and

K. Fujitaka (International Space Radiation Laboratory)

ABSTRACT: Research on reduction of radon concentration was carried out since its dose contribution is the largest among natural radiation sources. Several approaches were taken to pursue the research. Statistical analyses were conducted based on nation-wide surveys of indoor radon concentrations and gamma exposure rates. Actual measurements were performed in high radon concentration areas. Radon exhalation rates were measured for gypsum boards as a potential high radon source. Measurements of radon daughter concentration in a house were conducted to clarify the affecting parameter on indoor radon concentration. It was found that indoor radon concentrations in concrete houses in Japan have been increasing probably due to the air tightness of recent housings. The air exchange rate is the most important and easily attainable parameter to reduce the indoor radon concentration as found in Swedish houses, limestone caves and concrete houses.

I はじめに

一般環境中に存在するラドンは自然放射線の中でも特に線量寄与が大きく、国際放射線防護委員会 (ICRP) の勧告や国連科学委員会(UNSCEAR) の報告のなかでラドンによる被ばくが取り上げられてきている。わが国においても国連科学委員会の要請を受けて昭和 60 年から第 1 回の全国屋内ラドン濃度調査が実施された¹⁾。また、放射線医学総合研究所において開発されたパッシブ型ラドン・トロロン弁別測定器を用いた第 2 回目の全国屋内ラドン濃度調査が平成 4 年度から平成 8 年度にかけて実施された²⁾。これらの調査結果に基づけば、わが国における平均的なラドンからの線量寄与は約 $0.6\text{mSv}\cdot\text{y}^{-1}$ と推定される。この線量寄与は諸外国に比べ低い値であるけれども、人工放射線に対する一般公衆の線量限度である $1\text{mSv}\cdot\text{y}^{-1}$ と比べると決して無視できない線量寄与である。また、我が国にはまだラドンに関する屋内濃度に対する規制レベルは存在しないが、米国の環境保護庁のアクションレベルを仮に採用すると、全国屋内ラドン濃度調査結果に基づけば、このレベルを超える家屋が約 16 万軒存在すると予想される。更に、特殊な環境ではラドン濃度が高い場合が存在し、それからの線量はかなり大きくなることが予想される。そのような高い環境を特定し、その状況、メカニズム、条件を解明し、被ばく線量低減化のための方法を開発し、一般住民の無駄な放射線被ばくを無くすために、このテーマの研究を開始した。

II 実施方法

本目的を達成するため、全国屋内ラドン濃度調査等のこれまでのに得られたデータの解析を行うことと、高ラドン濃度環境の実測調査、高ラドン濃度をもたらすと予想される建材の調査、ラドン濃度変動要因の実家屋にお

ける検証を行った。

III 既存データの解析

1. 屋内ラドン濃度と大地ガンマ線からの線量率との相関^{3,4)}

放医研ではパッシブ型ラドン測定器を用いて全国約 7,000 軒の屋内ラドン濃度調査を実施し、約 6,000 軒の家屋について年間平均ラドン濃度を求めた¹⁾。また、サーベイメーターと電離箱を用いて測定した全国約 1,000 箇所の空気吸収線量率データを保有している。この両者の間にどのような関係が存在するかを検討した。両者の関係を調べるにあたって、ラドン濃度と空気吸収線量率の両者の測定値が存在する 537 市町村を抽出した。そして、この市町村の平均屋内ラドン濃度と大地ガンマ線からの平均線量率の分散図を求めた。大地ガンマ線レベルとラドン濃度の分散図には理論的に予想されるような三角形の分布が認められた。即ち、大地ガンマ線レベルが低い地域では余り高いラドン濃度が認められず、大地ガンマ線レベルが上昇するに従って、高いラドン濃度を示す家屋が出現している。また、岩石の種類別の屋内ラドン濃度を調べると、火山岩が最も低く、次いで堆積岩、変成岩の順で、最も高い値を示すものが主として花崗岩からなる深成岩であった。それぞれのラドン濃度の平均値は、19、20、22、31 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ と求められた。同じ傾向が大地ガンマ線レベルにも認められ、それぞれの平均線量率は 47、48、54、66 $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ と求められている⁵⁾。屋内のラドン濃度は建物の換気率、居住者の生活様式、さらには建材等様々な要因によって変化するものである。土壌中のラジウム濃度は屋内ラドン濃度の第 1 番目に大きな変動要因ではなく、また、大地ガンマ線レベルは土壌中のラジウム濃度だけでなく、トリウムやカリウムの含有量にも比例す

るものである。しかし、屋内のポテンシャルラドン濃度と大地ガンマ線レベルには良い相関が認められている。この関係より地殻ガンマ線レベルがあるレベル以下の地域では、たとえ、生活様式や家屋構造等によりラドン濃度が高められるとしてもラドン濃度がある限度を超えることはあり得ないと推定することが出来る。逆に、高ラドン濃度家屋を見いだすため調査する場合には地殻ガンマ線レベルがあるレベル以上の地域に限定して調査すれば良いことが分かった。

2. 家屋構造による屋内ラドン濃度の変化⁶⁾

我が国の全国規模の2つの屋内ラドン濃度調査結果を建築年に着目して解析を行った。解析においては家屋構造にも着目し、建築年の違いによる屋内ラドン濃度の変化を検討した⁵⁾。木造家屋の場合にはかなり古い家屋が存在しているがコンクリート家屋など他の分類の家屋は第2次世界大戦以降にしか存在しない。コンクリート家屋が一般住宅家屋として導入され始めた戦後直ぐの場合には屋内ラドン濃度はコンクリート家屋と木造家屋において差異は認められていない。しかし、その後の屋内ラドン濃度の変化を見ると木造家屋では若干のラドン濃度の低下が認められるが、コンクリート家屋の場合には上昇傾向を続け、最近に立てられたコンクリート家屋と木造家屋では約2倍の屋内ラドン濃度差が認められている。これらの傾向は全国集計データだけでなく、地方毎にデータを解析しても同じ傾向が認められた。この原因として様々な要因を建築家の意見を参考にして検討を行った。その結果、暖房・冷房効率を上げるための気密性の強化がその第1番目の原因と考えられる。木造家屋においても同様に気密性は高められてきているが家屋を建てる土台としてコンクリートを一面に打つ工法が広く用いられ、床下の地面からのラドンの寄与が押さえられているため、両者が相殺され、木造家屋の場合には屋内ラドン濃度が若干減少傾向を示しているものと考えられる。コンクリート家屋においてはなお、屋内ラドン濃度は上昇傾向を示しているため、ラドンからの被ばく低減の観点からは注意を要する現象である。

IV 高ラドン濃度の実測調査

1. 秋吉鍾乳洞内のラドン濃度測定

東洋一の鍾乳洞として毎年100万人以上の観光客が訪れる山口県の秋芳洞においてラドン濃度の調査を夏季と秋季の二回にわたりアクティブ法を用いて行った。その結果、平衡等価ラドン濃度は秋期には20Bqm³程度であったものが夏季には100Bqm³に近い値を示した。これらの差異は洞窟内の換気の差異によるもので、夏季には洞窟内が外気に比べ低温であるため、内部の空気が淀むが、冬季には逆に洞窟内の空気が外気よりも暖かなため外部へ放出されやすくなるためと思われる。この種の洞窟内のラドン濃度は欧米諸国でも測定されており、夏季に高い濃度が見いだされており、同じ傾向を示している。また、遙かに高いラドン濃度も見いだされており、洞窟内は特に夏季に於いては換気に気を付ける必要があると思われる。

2. スウェーデンの高ラドン濃度家屋の測定

スウェーデンの放射線防護研究所の協力を得て、イエグレ市にある明礬頁岩を外壁に持つ家屋内のガンマ線エネルギースペクトルを可搬型Ge(Li)測定器で測定した。この家屋は高ラドン濃度家屋として既にラドン濃度調査を受け、現在はラドン濃度を下げるための処置を講じている。その手段とは大変単純なもので窓枠周囲の目張りの一部を取り除くだけのものであった。その処置により以前は数百Bqm³以上もあった屋内ラドン濃度も現在では100Bqm³以下に収まっているとのことである。しかしながら、明礬頁岩の壁材はそのままであり、屋内のガンマ線線量率は壁際で高く200～300nGyh⁻¹線量率を呈していた。家屋と下部土壌の間には数十cmのコンクリートが敷き詰められており、ラドン発生源が壁であることに間違いはない。

3. 茨城高専における測定

茨城高専のコンピュータ室は比較的ラドン濃度が高いことがこれまでのパッシブ型ラドン測定器により見いだされている。この部屋のラドン発生源を調査すべく、可搬型のGe(Li)を携行し実測を行った。実測に際しては検出部周辺を鉛で遮蔽し、軸方向からのガンマ線を主として計測するようにアレンジして、床下のコンクリート、部屋の壁、天井からのウラン系列の核種の同定を行った。U系列として²²⁶Ra、²¹⁴BiのピークをTh系列として²²⁸Acをそして⁴⁰Kのピークを定量した。²²⁸Acと⁴⁰Kのピーク面積は場所による差異が余り見いだされていないが、²²⁶Raと²¹⁴Biのピーク面積は共に同じ傾向を示し、床下のコンクリートよりも周囲の壁面に2倍程度の高い濃度を示した。併せて、壁面からのラドン散逸率の測定も行ったが、一般的な建材と比べても有意なラドン発生率の差異は認められなかった。従って、床下よりも壁面からのラドン寄与が大きいと推定されるが確定するまでには至らなかった。

4. ユーゴスラビアとの共同研究^{7,8,9)}

ユーゴスラビアのコソボ地域では建材によって屋内トリウム濃度が高い地域が見いだされている。この地域の線量評価、健康影響評価、過去のラドン濃度評価等に関する研究協力を進めている。高レベル地域であり、濃度低減のための貴重な知見が得られるものと期待している。

V 高ラドンをもたらすと予想される建材の測定

石膏ボードはその原料の一部として磷酸石膏を使用しているものがある。磷酸石膏はリン鉱石から磷酸を取り出した時の副産物として生成される。この過程に於いてリン鉱石中に含まれているラジウムが磷酸石膏に濃縮され、元のリン鉱石の10倍程度の濃度となる。この磷酸石膏を石膏ボードの材料として用いると、ラジウム含有量の多い石膏ボードが生産されることとなる。この石膏ボードを家屋内面に使用すると、ラジウムの壊変生成物であるラドンが石膏ボードから室内空気中へ放出され、室内空気中のラドン濃度を高める可能性がある。我が国において以前に石膏ボード中のラジウム濃度が計測され、高い濃度が報告されている。その後、石膏ボード工業界の自主努力により低濃度の石膏ボード製造努力がなされてきた。現在の我が国に於いて生産されている石膏ボー

ドからのラドン散逸率を調査するため以下の実験を行った。

わが国の 24 工場において製造された石膏ボードと 3 種の外国製品を入手し、それらを保持する容器に入るように 15cm x 15 cm のサイズに切り取った。我が国の石膏ボード製品は標準的な 12 ミリ厚のものを、外国製品の厚さは 0.5 インチのものを入手した。この試験体各 2 枚を約 7 リットルから 28 リットルのサイズのステンレスまたはプラスチックの試験体保持容器中にパッシブラドン測定器と共に 1 週間から散逸率の低いものについては 2 週間封入した。また、それぞれの石膏ボード中のラジウム濃度についても化学分析により定量した。その結果、現在我が国で生産されている石膏ボード中のラジウム濃度は 0-100Bqkg⁻¹、ラドン散逸率は 7.435x10⁻³Bq h⁻¹ m⁻² の範囲で通常の建材のものと変わりなかった。従って、現在我が国で製造されている石膏ボードをモデルハウスで使用したときの室内ラドン濃度増加分は、換気率が 0.2 ach のとき 0.16~9.9 Bq m⁻³ の範囲に、換気率が 1 ach の場合には 0.03~2.0 Bq m⁻³ の範囲にあると求められた。わが国の平均的なラドン濃度は屋内で 10~30 Bq m⁻³、屋外で 5~10 Bq m⁻³ で、また、米国の環境保護庁のアクションレベルは 150 Bq m⁻³ であり、これらの値と比較すると、石膏ボードによる寄与は最大値をとっても屋外のラドン濃度レベル程度であり、健康影響は全く問題とはならない量であると言える。

VI ラドン濃度変動要因の実家屋における検証

日本の屋内ラドン濃度は諸外国に比べても低いレベルに属し、米国の環境保護庁のアクションレベル 150Bq m⁻³ を越える家屋は、我々の全国屋内ラドン濃度調査結果に基づいて、日本全体では 0.4% と推定されている。米国の数多くの州ではその割合が 20% を越えている。これに比べると我が国のラドン濃度レベルは低いことが分かる。この原因として、日本の大地中の放射性核種濃度が低いこと、屋内空気の換気率が比較的高いこと、更に大きく寄与しているのは床下を持つ家屋構造であるためと考えられている。一戸建て家屋の床下構造は本来、湿気対策のために設けられているものであるが、屋内ラドン濃度を低減させるという副次的な効果を示している。この床下構造により大地で発生したラドンが屋内へ侵入する前に希釈されると考えられている。この効果を定量化するための実験を行った。千葉市内の一戸建て屋内の一室に連続測定用のラドン娘核種濃度モニターと炭酸ガス濃度モニターを設置し、約 2 週間にわたる連続測定を行った。床下換気の影響を見いだすため、この連続測定の前半 1 週間は通常の床下換気状態を、後半の 1 週間はその一戸建ての家屋の床下の換気口および、家屋の土台部分と外壁とのつなぎ部分を全て塞ぎ、床下換気を極力抑えるようにした。炭酸ガス濃度モニターによる測定結果を測定

器の検出限界以上に絶えず留めるために 12 時間毎に換気を乱さないようにその部屋に入室し、呼気から排出される炭酸ガスをその部屋に補充した。このように実験系を組み、床下換気の強弱による屋内ラドン娘核種濃度の比較を試みた。ラドン娘核種濃度、炭酸ガス濃度共に約 2 週間の測定結果が得られたものの、それらの解析結果からは種々の統計解析によっても床下換気の低下による影響を顕著に見いだすことは出来なかった。これは、主として、屋内ラドン娘核種濃度には日変化の周期、天候の影響によると思われる変動が重なったためと、炭酸ガス濃度変化には、その一室だけではなく、家屋内の他の部屋からの影響が表れたこと、更には、対象家屋の屋内ラドン娘核種平均濃度が 5Bq m⁻³ と低かったためと考えられる。

【参考文献】

- 1) 藤元憲三、小林定喜、内山正史、土居雅広、中村裕二： 屋内ラドン濃度全国調査、保健物理 32, 41-51, 1997.
- 2) ラドン濃度測定・線量評価最終報告書 NIRS-R-34, 1998.
- 3) Fujimoto K.: Correlation between Indoor Radon Concentration and Dose Rate in Air from Terrestrial Gamma Radiation in Japan. Health Physics, 75(3): 291-296, 1998.
- 4) Fujimoto K.: Correlation between Nationwide Indoor Radon and Terrestrial Gamma Survey Data in Japan. Radon and thoron in the human environment, edited by A. Katase and M. Shimo, ISBN 981-02-3443-0, 385-390, 1998.
- 5) 藤元憲三、古川雅英：全国屋内ラドン濃度調査結果と大地ガンマ線からの線量率との相関、保健物理学会要旨集 41, 1997 年 5 月奈良.
- 6) Fujimoto, K. and Sanada, T.: Dependence of Indoor Radon Concentration on the Year of House Construction. Health Physics, 77, 410-419, 1999.
- 7) Zunic, Z.S., Fujimoto, K. et al.: Integrated Natural Radiation Exposure Studies in Stable Yugoslav Rural Communities. The Science of the Total Environment, Vol. 272, 253-260, 2001.
- 8) Zunic, Z.S., McLaughlin, J., Fujimoto, K. et al.: Results of field work studies on natural indoor radiation population exposures in Yugoslavia. Third International Yugoslavi Nuclear Society Conference, 2-5, Oct. 2000.
- 9) Zunic, Z.S., Fujimoto, K. et al.: Statistical Analysis of Radon Survey Results. Proceedings (Fifth International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas: Radiation Dose and Health Effects, Munich, Germany, Sep. 4-7, 2000.

II. 環境放射能汚染に対する除染修復技術に関する研究

放射線防護の目的は、言うまでもなく無用の被ばくを防止し、被ばくの低減化を実現することである。放射線を利用する場においては、主として職業人に対して多くの施策がこの目的のために講じられる。一般公衆に対しては放射線の利用による被ばくがもとより発生しないように施設の設計や運用を行うことを通じて放射線防護をはかることが一般である。このような放射線防護の考え方は、いくつかの重大な原子力災害や放射線事故において一般公衆が重篤な被ばくを被ることはなかった限りにおいては有効であったといえることができる。

1986年4月に発生した旧ソ連邦の原子力発電所事故は、想定を越える事態の発生があり得ること、また一般公衆が甚大な放射線影響を被る可能性のあることを示した。その後明らかになった旧ソ連邦のいくつかの原子力施設の事故でも多数の一般公衆が被害を被ったことが報告されている。これらの事故にみられることは、事故直後において強力な介入措置が執られたにも拘わらず、その後も環境中に放出された放射性物質により長期間の放射線影響が公衆にもたらされる可能性があることである。原子力や放射線の利用を図るに際しては、緊急事態の発生が否定できない現実を正視し、一般公衆の放射線防護のための広範な対策を十分に整備することが重要なことといえよう。

本特別研究、中課題Ⅱでは、原子力災害等緊急事態が発生したときに一般公衆の被ばくを低減する方策につい

て検討することを目的とした。とくに事故が終息し、主要な被ばく線源が除かれた後一般公衆が通常の生活に復帰した際に過剰の被ばくを防止することを念頭に検討を進めた。旧ソ連邦の原子力発電所事故後の「事故修復期」において汚染家屋の破壊や洗浄、汚染土壌の除去、汚染物の埋設など様々な対策が講じられた。また、耕作地での深耕、施肥、除去剤の利用など農学的な対策等も試みられた。ここでは比較的低レベルではあっても広範囲に拡散した放射能汚染に対して被ばく低減、拡散防止、あるいは環境除染について、化学的、生物学的な、また食品衛生学的な面から検討を行った。また、これらの環境除染・修復技術の適用による低減効果を評価するための方法についても検討した。

本特別研究は、平成10年度に開始された。平成13年度には放射線医学総合研究所は独立行政法人への移行が予定されており、平成12年度での終了が余儀なくされた。被ばく低減に関する研究は、独立行政法人化後の環境安全研究においても重要な課題であると考えられる。したがって、本特別研究は、終了後に設定される新たな研究課題のための「パイロットスタディ」あるいは「フィージビリティスタディ」と位置付けられるものでもある。このような認識の下で研究インフラストラクチャーの整備をはかることも本計画の目的の一つとした。

中課題班長 渡部輝久

II-1 環境放射能汚染に対する化学的除染技術開発に関する研究

黒瀧克己、米原英典、サフー・サラタ・クマール（人間環境研究部）、
石井紀明（那珂湊放射生態学研究センター）

Studies on the Remediation of Environment Contaminated with Radioactive Pollutants Using the Chemical Separation Technique

K. Kurotaki, H. Yonehara, S. K. Sahoo (Division of Human Radiation Environment) and
T. Ishii (Laboratory for Radioecology)

ABSTRACT : Remediation of soil and drinking water contaminated with radioactive nuclides is important for the mitigation of radiation exposure. Then we attempted to construct the remediation system including the dose estimation system using the chemical separation technique to remove pollutants from the environment. The information on air dose rate is important for the assessment of risk from the radiation exposure. Then we measured the air dose rate and analysed the relationship between air dose rate and the contamination of soil at the area in Russia (Bryansk district) contaminated by Chernobyl Nuclear Power Plant accident. Moreover, we analysed the soil of Bryansk district on the concentration of rare earth elements, thorium and uranium and on the isotope ratio of strontium. On the other hand, we tried to develop the rapid measurement method of radioactivity of Sr-90 which is one of the dangerous radionuclides, because the method of radioactivity measurement in the literature is too time-consuming. It was reported recently that the molecules containing SH group form the covalent bond with gold atoms at the surface of gold plate and that crown ether compounds have strong affinity to strontium. Then we attempted to synthesize the crown ether containing SH group. In addition, we search the inorganic elements accumulated to special organisms of fishes and other animals in sea in order to find out new reagent for trace elements. Transition metal such as Co, Fe, Ni, Ti, V and Zn were detected from the intracellular granules in the bronchial heart of octopus.

1. はじめに（緒言）

1986年4月のチェルノブイリ原発事故では事故処理作業者のみならず地上に降下した放射性物質による土壤汚染によって広大な地域に住む数多くの住民の放射線被ばくを引き起こしたことで世界に衝撃を与えた。その後、国内に於いても数件の原子力施設事故が続き、1999年のJCO事故では国内最初の原子力施設事故の犠牲者を出した。これらの悲惨な経験は原子力施設事故が起り得るとの前提で対策を検討しなければならないことを示している。このような原子力施設事故では放射性環境汚染物質（環境放射能汚染）の影響を低減して放射線被ばくを最小限に抑制することは社会的に重要な課題である。また、21世紀には有機物やヒ素等の有害無機元素による土壤や地下水の汚染等、さまざまな物質による環境汚染問題が世界各地で噴出してくと予想される。これらの問題に対処するためにも環境放射能汚染の環境修復技術は有効であると考えられる。

チェルノブイリ事故の際、高分子イオン複合体（ポリアクリル酸-ポリエチレンイミド複合体）が土壤表面の化学処理に、またプルシアンブルー（ヘキサシアノ鉄酸塩）不織布が牛乳中の放射性セシウム除去に利用されたように、化学的手法が環境放射能汚染対策の最も現実的な手法であることから、化学的分離分析法について検討した。

本研究の前提として放射能汚染レベルを調査して住民

の被ばく線量を評価することが不可欠であることから、被ばく線量評価法に関する研究をすすめた。さらに、環境汚染物質の確定に必要な放射性核種の分析を行うために微量元素の分析技術の高度化に関する研究をすすめるとともに、化学試薬と分離・除染法の開発について検討した。また、安全な試薬の開発という長期的観点から、生物組織に濃縮される無機元素の探索研究をおこなった。

2. 研究方法

2.1 被ばく線量評価と土壤中の微量元素の同定に関する研究

土壤の放射能汚染は住民の被ばく線量を増加させる原因となる。そこで、可搬型半導体検出器、ガラス線量計を用いてチェルノブイリ原発事故汚染地域の放射能汚染レベル調査をおこなって空間線量と土壤汚染の関係を解析した。また、土壤の放射能汚染の解析は汚染源や汚染経路の確定に有用であることから、土壤の汚染元素の分析が不可欠である。地球上に存在している岩石や土壤に含まれている元素の同位体比は起源や履歴などの自然条件の差異で天然の変動幅を示す。人為的な揺動は本来の存在量や同位体比を変化させるために、これらを精密に測定することによって人為的揺動を確定することができる。最近の分析機器の進歩はめざましく、現在ではppt（ 10^{-12} 分の1）レベルの分析感度が当然のこととして要求されている。また、ウラン（U）、トリウム（Th）などの超

長半減期の放射性核種分析には質量分析器の感度が放射能測定より良いために、放射分析化学においても質量分析装置は不可欠な分析機器となっている。そこで、本研究では誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS, HP-4500）および熱イオン化質量分析装置（VG Sector 54-20, VG Isotopes Ltd.UK）を用いて土壌中の微量元素の分析をおこなった。

チェルノブイリから北東200 kmにあるロシア西部の放射能汚染地帯、ブリアンスク地方で採取した土壌を用いて稀土類元素、トリウムおよびウランの濃度（含有量）をICP-MSによって測定した。さらにストロンチウムの同位体比をVG Sector 54-30で測定した。採取した土壌（0.1 g）を硝酸－フッ酸－過塩素酸混合溶液で分解、溶解させた後、蒸発乾固して測定試料とした。測定試料を6 N塩酸水溶液に溶解させてICP-MS（HP-4500）および熱イオン化マスマスペクトロメーター（VG Isotopes Ltd.UK）で測定した。

2. 2 自己集合単分子層による分離法の開発

1980年代に化学試薬が金属表面と結合して自己集合的に単分子層を形成することが見いだされて以来、金属表面の改質などナノサイエンス分野に於いて注目され研究が進展した。この手法はこれまでに放射性核種分析に応用された例がなく、十分に試みる研究価値があると思われる。

主要な核分裂生成物である放射性ストロンチウムの内で⁹⁰Srは半減期28.8年のβ線放出核種である。アルカリ土類金属であるストロンチウムとカルシウムは類似の挙動をとり、⁹⁰Srが骨に沈着することから、危険な核種として知られている。そのため、緊急時を想定すると⁹⁰Srの迅速な放射能測定と除去法の確立が重要な課題となる。また、⁹⁰Srの放射能分析はICP-MS（誘導結合プラズマ質量分析法）より高い感度で測定できることから⁹⁰Srの放射能測定は無視できない手法である。しかし、放出β線の吸収の影響が大きく、放射能測定試料の作成に高度な技術が要求され、自動化がきわめて困難である。

結合性官能基のチオール（SH）基をもつ分子が金表面原子と共有結合を形成し、配向性の高い単分子層を金基板表面に配列すること、またクラウン化合物（18-クラウン-6）はSrの分離試薬として知られている。そこで、金基板表面に形成させた18-クラウン-6層に⁹⁰Srを結合させて放射能測定を行うために、チオール基含有クラウン化合物の合成を試みた。

2. 3 生物由来の分析試薬の探索

生物はさまざまな器官に特定の無機元素を特異的に取り込み、濃縮することが知られている。この現象を解明することによって、無機元素の除去試薬の開発に活用できることが期待できる。生物組織に特異的に濃縮される元素をしらべるために、マダコのえら心臓、イシダイの目などの生物の器官組織を切除して固定し、放射光蛍光X線分析（SR-XRF）によって組織に含まれる無機元素を測定し、X線吸収微細構造測定（XAFS）によって無機元素の化学形を解析した。

3. 結果と考察

3. 1

チェルノブイリ原発事故による放射能汚染地域、ロシア・ブリアンスク地方で土壌の¹³⁷Csの深度分布プロファイルと地表の空間線量の関係を解析した。図1に森林、農場や家庭菜園などにおける土壌の¹³⁷Cs放射能強度と空間線量率との関係を示した。耕作地では放射能強度は地下20 cmまで一様に分布しており、空間線量が放射能汚染物質がほとんど沈降していない森林の30%以下に低減する。この知見から、低レベル広域汚染では汚染表土の鋤込みによる土壌攪拌が線量低減に効果的であることが判明した。また、森林、牧草地、畑、家庭菜園で採取した土壌に含まれる稀土類（ランタノイド）元素、トリウムおよびウランを分析した。表1に各深度の森林土壌に含まれるランタノイド、トリウム、ウラン濃度を示した。稀土類元素については深度依存性が認められないが、トリウム、ウラン濃度は表層土壌（0-5 cm）で高く、深度が増加するにしたがい減少する傾向が認められる。表2にさまざまな地目の表層土壌に含まれる稀土類元素、トリウム、ウラン濃度を示した。

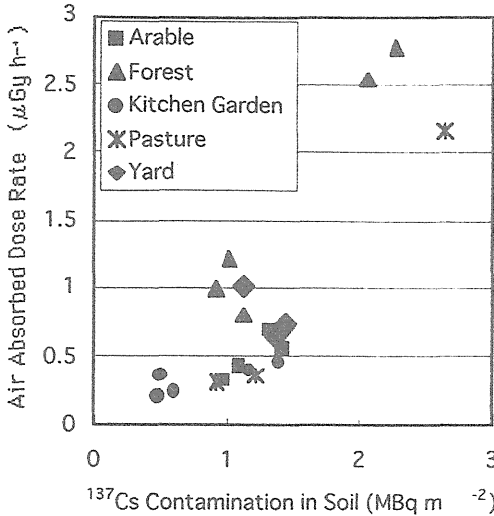


図1 ブリアンスク地方の森林、牧草地、耕地、庭等の土壌の¹³⁷Cs汚染と空間線量率の関係

表1 ロシア・ブリアンスク地方の森林土壌中の希土類元素、トリウム、ウラン濃度の深度分布（μg・g⁻¹）

Element	Depth (0-5 cm)	Depth (5-10 cm)	Depth (10-15 cm)	Depth (15-20 cm)	Mean
La	37.68	38.0	38.5	40.0	38.45
Ce	68.3	67.2	70.2	72.0	69.43
Pr	8.65	9.1	9.2	8.98	8.98
Nd	31.7	33.1	32.8	31.9	32.37
Sm	6.16	5.9	5.86	6.0	5.98
Eu	1.60	1.62	1.64	1.60	1.62
Gd	4.99	5.0	4.69	4.5	4.79
Tb	0.85	0.86	0.91	0.88	0.87
Dy	3.65	3.71	3.85	3.6	3.70
Ho	0.77	0.76	0.68	0.69	0.73
Er	1.79	1.89	1.86	1.91	1.86
Tm	0.32	0.31	0.36	0.34	0.33
Yb	1.82	1.85	1.79	1.78	1.81
Lu	0.28	0.27	0.30	0.28	0.28
Th	6.38	5.89	5.81	5.69	5.94
U	1.85	1.72	1.75	1.58	1.73

表 2 ブリアンスク地方の森林、牧草地、畑、家庭菜園における表層 (0 - 5 cm) 土壌中の希土類元素、トリウム、ウラン濃度の深度分布 ($\mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$)

Element	Forest	Pasture	Field	Kitchen garden
La	38.5	40.56	36.2	36.6
Ce	69.43	92.8	54.5	80.96
Pr	8.98	9.36	7.62	8.767
Nd	32.37	34.8	26.8	32.01
Sm	5.98	6.82	4.74	5.61
Eu	1.62	1.92	1.21	1.15
Gd	7.79	6.97	4.49	4.94
Tb	0.87	0.93	0.62	0.65
Dy	3.70	5.69	3.21	3.53
Ho	0.73	1.16	0.69	0.69
Er	1.86	3.4	1.74	2.01
Tm	0.33	0.48	0.31	0.29
Yb	1.81	3.31	1.62	1.98
Lu	0.28	0.48	0.28	0.29
Th	6.38	12.38	8.85	11.65
U	1.85	2.96	2.48	3.22

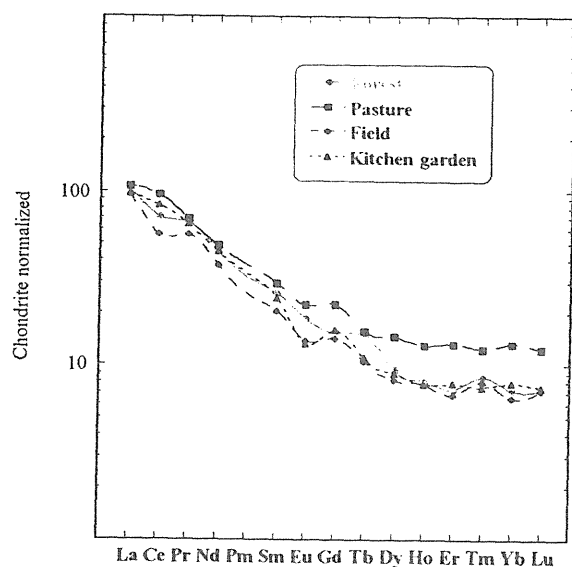


図 2 コンドライトと表層土壌中 (表 2) の希土類元素濃度比率の原子番号依存性

表 3 ブリアンスク地方の森林、牧草地、家庭菜園における土壌中のストロンチウム同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) の深度依存性

Depth, cm	Forest	Pasture	Field	Kitchen garden
0-5	0.707948 (7)	0.707942 (7)	0.707844 (6)	0.707745 (5)
5-10	0.707894 (6)	0.707893 (6)	0.707762 (6)	0.707687 (7)
10-15	0.707765 (8)	0.707856 (8)	0.707782 (5)	0.707698 (6)
15-20	0.707686 (5)	0.707786 (7)	0.707688 (6)	0.707731 (5)

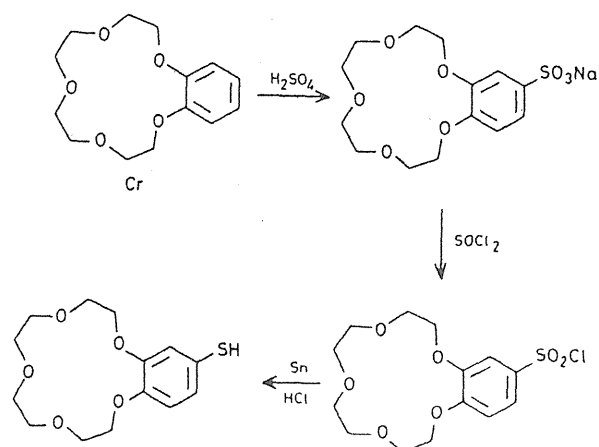


図 3 メルカプトベンゾ-15-クラウン-5 の合成経路

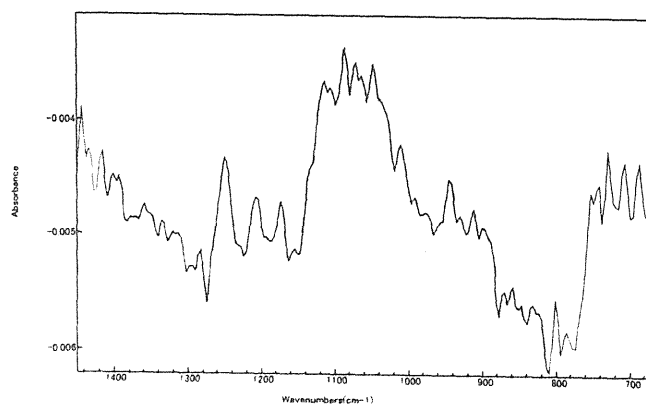


図 4 金蒸着膜上に形成されたメルカプトベンゾ-15-クラウン-5 自己集合単分子層の高感度反射 FTIR スペクトル

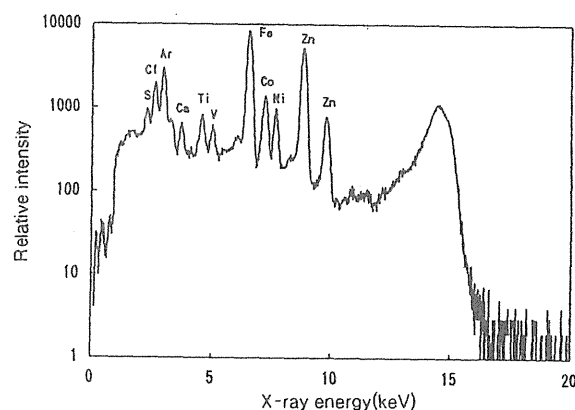


図 5 マダコのエラ心臓の細胞内顆粒の蛍光 X 線スペクトル

稀土類元素については地目の差異に依存しないが、トリウム、ウランは地目に影響されることが認められ、耕作等の人為的な影響によると考えられる。図2にコンドライト（隕石）と表層土壌に含まれる稀土類元素の濃度比を示した。稀土類元素の濃度比は稀土類元素の原子番号が増加するにしたがい減少することが認められる。これは土壌生成岩石の成分を反映していると考えられる。表3に各地目におけるストロンチウムの同位体比（ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ）の深度依存性を示した。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 同位体比は家庭菜園では深度に依存しないが、森林および牧草地では土壌深度が増加するにしたがい減少することが認められた。これは雨水存在下における土壌との相互作用による同位体濃縮に起因すると考えられる。これらの結果はチェルノブイリ事故による影響を解析する基礎データとして重要である。

3. 2

4-メルカプトベンゾクラウンエーテルの合成：4-ブロモベンゾ-18-クラウン-6（市販品）を出発原料としてGrignard反応によってメルカプト基を導入することを試みたが失敗したために、下記の合成経路で合成した。図3にベンゾ-15-クラウン-5（B15C5、市販品）から4-メルカプト-ベンゾ-15-クラウン-5（B15C5SH）の合成経路を示す。また、アリルメトキシ-16-クラウン-6（16C6RCH₂、市販品）からメルカプトプロピルメトキシメチル18クラウン6（16C6RCH₂SH）の合成を試みた。図4に金蒸着膜上に形成させたB15C5SHの自己集合単分子層の高感度反射スペクトル（p偏光スペクトルとs偏光スペクトルの差）を示す。1020-1140 cm⁻¹に金原子と結合したB15C5Sに帰属するシグナルが認められた。

3. 3

図5にマダコのエラ心臓の細胞内顆粒の放射光蛍光X線スペクトルを示した。細胞内顆粒中にコバルト、鉄、ニッケル、チタン、バナジウム、亜鉛等の遷移金属が大量に存在していることが認められる。図6にインダイの網膜中の亜鉛（Zn）の二次元分布図を示す。亜鉛が光受容体として知られている色素層に分布していることが認められる。

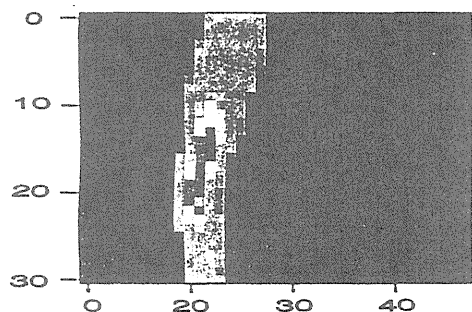


図6 インダイの網膜中の亜鉛（Zn）の二次元分布

さらに、この亜鉛の化学形を解析するためにZnのX線

吸収微細構造（Zn K-XAFS）スペクトルを測定した。図7にZn標準試料とインダイの網膜（試料Xa2r2a、Xa2r2b）のZn K-XAFSスペクトルを示す。標準試料との比較から網膜中のZnがZnPO₄・4H₂Oであることを明らかにした。

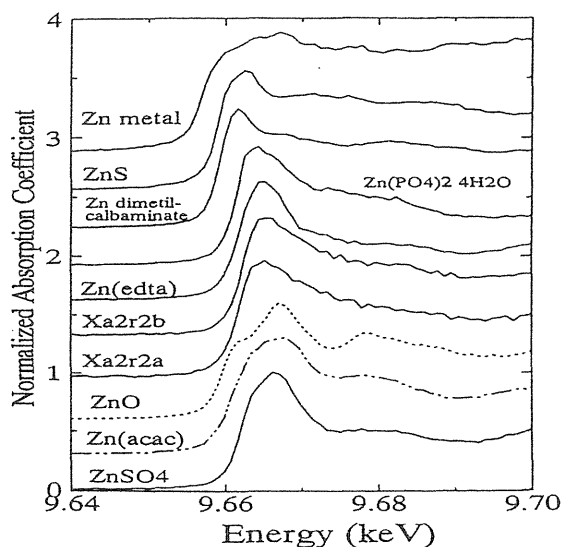


図7 Zn標準試料とインダイの網膜（試料Xa2r2a,Xa2r2b）のZn K-XAFS スペクトル

4. 結論

土壌中の稀土類元素などの微量元素の測定技術の高度化に関しては十分に成果を得ることができた。今後は多くの測定地点のデータを収集するとともに線量率レベル調査のデータと比較し、解析することによってチェルノブイリ事故の影響について詳細に検討する予定である。

被ばく線量の低減化につながる化学的除染技術開発は重要なテーマであるが、有効な環境修復用試薬の創出や生態系への影響の事前評価など多くの困難な問題をかかえており、研究の端緒に就いた段階である。自己集合単分子層の研究はナノテクノロジーと接点をもつ分野であり、早急に新規分析法を開発することが重要である。

海洋生物の生態や代謝は現在でも未知の部分が多く、海洋生物から有用薬品の探索は医薬品開発においても重要視され、研究が進められている。将来、大きいテーマとなると考えられる。本研究はこの探索研究の一環となりえることから精力的に研究を推進する必要がある。

【報告・原著論文】

- 1) Sahoo, S.K. and Masuda, A.; Anal. Chim. Acta, 370, 215-220 (1998)
- 2) Ishii, T. et. al.; Hyperfine Interactions., C3, 317-320 (1998)
- 3) Ishi, T. et. al.; Photon Factory Activity Report 1997, 15, 34 & 69 (1998)
- 4) Ishii et. al.; Fisheries Sci., 64, 185-190 (1998)
- 5) Sahoo, S.K., Yonehara, H., Kurotaki, K, Masuda, A. and Yoneda, S.; 30th Lunar and Planetary Sci. Conf., (Houston, USA), 1999.3
- 6) Sahoo, S.K.; 日本質量分析学会同位体比部会、1998.11

- 7) 米原英典、サフー S. K.、黒瀧克己、内山正史、Ramzaev, V.P., Ponomarev, A. Michin, A and Barkovski,A.;日本放射線影響学会第41回大会(長崎) 1009.12
- 8) Sahoo, S.K., Yonehara, H. and Kurotaki, K.; PITTCON2000 (Neworlins, USA) 2000.3
- 9) 石井紀明、大越;第3回マリノバイオテクノロジー学会(筑波) 1999.5
- 10) 米原英典、サフー S. K.、黒瀧克己、内山正史、Ramzaev,V.P., PonomaeV,A., Michin,A. and Barkovsky, A.;日本保健物理学会第34回研究発表会(大分) 1999,5
- 11) 米原英典、サフー S. K.、黒瀧克己、内山正史、Ramzaev,V.P., PonomaeV,A., Michin,A. and Barkovsky, A.;日本放射線影響学会第42回大会(広島) 1999,9
- 12) Ishii,T., Miyazaki,T. and Numako,C.; Photon activity report 1999, 17, 243 (2000).
- 13) Ishii,T.; 2000 Intern. Chem. Congress. Pacific Basin Societies, Hawaii, 2000.12.
- 14) Sahoo S.K.; 9th Mass spectrometry workshop (Goa, India) 2000.12
- 15) Ishii,T.;Midoriishi 11, 1-3 (2000)
- 16) Zhang J. and Ishii,T.; JASMSR EC J. Deep Sea Res.,16 II, 155-161 (2000)
- 17) Hashimoto,H. and Ishii,T.; X-ray Absorption Fine Structure, 11, 258 (2000)
- 18) Sahoo S.K., Yonehara H., Kurotaki K., Shiraishi K., Ramzaev V. and Barkovski A.; J.Radioanal. Nucl. Chem., 247, 341-345 (2001)
- 19) Sahoo S.K.; 9th ISMAS workshop on mass spectrometry, Goa (India), 2000.12.

II-2 環境放射能汚染に対する生物学的修復技術開発に関する研究

渡部輝久、平野茂樹、中村良一、中原元和、石井紀明、宮崎多恵子、松葉満江、横須賀節子
(那珂湊放射生態学研究センター)、西村義一、渡辺嘉人 (人間環境研究部)

Feasibility Study on Application of Bio-accumulation of Radionuclides as a Countermeasure to Restoration of Contaminated Environments

T. Watabe, S. Hirano, R. Nakamura, M. Nakahara, T. Ishii, T. Miyazaki, M. Matsuba, S. Yokosuka (Laboratory for Radioecology),
Y. Nishimura and Y. Watanabe (Division of Human Radiation Environment)

ABSTRACT : Phenomena of bio-accumulation of radionuclides was reviewed in order to know whether or not it was useful and effective to apply as a countermeasure to restoration of contaminated area, and to examine the extent of removal of radioactive contaminants from the environment. Special attention was directed to the technique, "phytoremediation" in which plants that hyperaccumulated heavy metals were cultivated on the contaminated lands for removing them. Plant species recognized as "hyperaccumulator" were searched in the literature and listed for providing a botanical and taxonomical prospect. On the other hand, a screening analysis was carried out for determining the elemental concentrations in sea weeds in order to find species with a high affinity for the specific elements. Of 30 species of sea weeds, the highest concentration of iron, iodine, strontium, and uranium was observed in *Ulva* sp., *Laminaria* sp., *Corallina* sp. and *Undaria* sp., respectively, although there were no species having the elemental concentration 100 times higher than those for so called "reference plant". Brown algae generally showed relatively higher concentrations for almost all elements of interest. It could be concluded that brown algae might be effective to use for phytoremediation because of their high affinity for many elements along with their high biomass in a possible case of radioactive contamination in the marine environment.

Phytoremediation would be more advantageous not only from an economical viewpoint, but from the viewpoint of preservation of the environments than other possible remedial procedures, such as acid leaching of contaminants, excavation and storage of the soil, physical separation of the pollutants, and so on. This technique has been put into practical use and would gain much more support of the public in the future, however it needs more detailed information to establish as a sound and reliable methodology.

I 研究目的および経過

原子力施設の事故等により放射性物質が施設外環境への放出が起こった際には周辺住民あるいは国民を放射線障害から守るために様々な放射線防護対策を講じる必要がある。事故が沈静化し放射性物質の放出が終息した後も環境中の残留放射能に対する留意が必要であり、場合によっては環境除染を積極的に実施し住民の被ばく低減化をはからなければならない事態も想定し得る。この環境除染には種々の方法が考えられるが、導入や方法の選択は費用対効果を勘案し決定されるものと考えられる。汚染が甚大であったりその範囲が限定されているような場合にはたとえ費用が大きろうとも即効的な手段を投入することは合理的とされよう。一方汚染レベルが低く、その範囲が広大な場合に対しても費用対効果の面からも合理的なそして有効な方法を緊急時の防護対策として準備しておくことも必要と考えられる。

近年、土壌や地下水の重金属や化学物質汚染を生物の様々な活性を利用して除去あるいは軽減しようとする試みがなされている。海洋の重油流出に対して海洋微生物を利用し重油を分解無害化する方法は以前より実用化されている有効な対策である。また、植物の汚染物質吸収力や蒸散力等を利用し土壌からの重金属や汚染物質を除去する

方法も実用化、事業化されつつある。これらの方法は、汚染土壌を取り除く等土木工学的な方法や化学的な方法を用いて汚染物質を除去する方法等に比べ経費の面で大きな負担とはならない点で有利である。また、環境に過度な負荷を与えることなく環境保全をはかることができる面でも有効である。一方即効的な除染効果は望めない可能性もあり、その効果を適切に評価することが必要となる。

放射線医学総合研究所では環境の放射能汚染による人体の影響を評価するための研究を長年に亘って実施してきた。その間、環境中における放射性物質の移行、とくに人が食品として利用する農畜産物や水産物への放射性物質の移行について数多くの知見を得てきた。これらの環境中の生物にはある特定の元素や放射性物質を特異的に濃縮するものがあることも明らかにしてきた。本特別研究では、環境での放射能汚染が発生したときに放射性物質の生物による濃縮現象を放射能汚染水準の低減化や環境修復へ適用し得るかどうかについて検討を行った。とくに環境除染に適用し得る生物種を文献的にまた実験的に探索、抽出することを目的とした。

土壌や地下水、あるいは海洋を含む水圏における化学物質や重金属等有害物質による汚染に対して生物作用を利用しそれらを分解、低減、無害化することを生物学的修復

(Bioremediation) と呼ぶが、とくに土壤微生物や海洋微生物の生物活性を利用することをバイオレメディエーションとすることが一般的である。植物には重金属や化学物質に汚染された土壤に耐性を示し、それらを体内に濃縮、あるいは根圏域で分解や固定をしたり、蒸散により大気に放出する作用を示すものがあり、これらの生物活性を利用して汚染の低減化を図ることを Phytoremediation として別途分類することが昨今行われている。すなわち Phytoremediation は、Phytoextraction (蓄積・濃縮)、Phytostabilization (土壌への固定化)、Phytostimulation (根圏微生物の活性化)、Phytovolatilization (汚染物質を大気中に蒸散)、Phytodegradation (汚染物質を分解・無害化)、Rhizodegradation (根圏微生物との共生による汚染物質の分解)、Rhizofiltration (水圏からの根による汚染物質の吸収除去)、Vegetative caps (植栽工法)、Constructed wetland (湿地帯を利用した廃水処理)、Phytoprevention (砂漠化防止) など様々な技術を含んでいる (<http://www.kankyoubio.net/bioremediation/phytoremediation.html>)。本課題においては主として上記の Phytoextraction による生物学的修復技術について陸圏および水圏環境への適用性を検討した。

II 陸圏における生物学的修復

高い重金属濃度を示す植物の存在は古くより知られており、とくに重金属を含む母材からなる土壌に特徴的に生育する植物にみられる場合がある。Brooks らはこれらの植物について乾燥重量で 1000 μ g/g 以上のニッケル濃度を示す植物を "Hyperaccumulator" と呼ぶことを提唱した¹⁾。これらの Hyperaccumulator は、同じ基質上で生育する通常植物の濃度に比べておよそ 100 倍の濃度を示すことになり、ニッケルに限らず他の重金属元素についても通常の 100 倍の濃度を示す植物を Hyperaccumulator と呼ぶようになっている。土壤汚染の生物学的修復を行う場合にはこれらの Hyperaccumulator を利用することが一般的である。Brooks によれば、このような Hyperaccumulator には表 1 に示す数の植物があることを報告している。付表には Brooks らによってまとめられた Hyperaccumulator の種を示した。

放射性物質の土壤汚染に対する生物学的修復の試みもなされており、米国環境保護省(EPA)の広報では、Chernobyl(Ukraine)、Ashtabula(OH, USA)、Upton(NY, USA)で前二者はヒマワリ(Helianthus sp.)を用いた Rhizofiltration による地下水汚染の除染を、後者では Indian mustard cabbage(Brassica Juncea variety)を用いた Phytoextraction による土壤除染の例を挙げている(US Environmental Protection Agency, Office of Solid Wastes and Emergency Response (5102G), EPA 542-F-98-011, August 1998, <http://www.clu-in.org/products/citguide/phyto2.htm>)。これらの例では民間企業による除染事業への参加もみられており、インターネット上での広報活動でそれらの成果が述べられている。チェルノブイリのケースでは原子力発電所から 1km 離れた池の水を採取し、温室内でヒマワリの根を浸漬させたところ、12 日間の栽培で Cs-137、Sr-90 を池水濃度の、それぞれ 8000 倍、2000 倍の濃度に根が濃縮していたというものであり、ヒマワリと Indian mustard による生物学的修復の方法を利用すれば 5 年で汚染地域の除染が可能と試算している(<http://www.becnet.org/ENews/99SpSuPhytoremediation.html>)。植物を用いた生物学的修復技術が有効である可能性が示さ

れている一方、この方法についての限界も示されており、Cunningham らは、1) Hyperaccumulator は、一般にある特定の元素を濃縮するのみであり問題となるすべての元素に有効な種は見いだされていない、2) 多くの Hyperaccumulator は、成長速度が遅く、生物生産量(Biomass)が小さい、3) Hyperaccumulator について必要な施肥量や防害虫対策など農学的な情報がない、などの点を挙げている²⁾。これらの点を解決するためには今後高収率、高生産量の近縁種との掛け合わせや目的に叶う突然変異種の探索、さらに遺伝子操作によるよりよい種の開発の必要性が提起されている。

III-1. 海洋生物、とくに海藻についての元素濃度分析

海洋生物の中には一般の生物の数百倍から数万倍も高い濃度で、ある特定の元素を選択的に濃縮する能力を有する生物種が存在している。バナジウムを高濃度に濃縮するホヤ類、ヨウ素を高濃度に蓄積するコンブ類がその代表的な例としてあげられる。高濃度蓄積生物の存在は以下の点で重要な意味を有すると考えられる。

高濃度蓄積生物は一般の生物に比べて元素濃縮能力が非常に高いので放射性核種による海洋汚染モニターの指標生物として有効に活用できる。すなわち、高濃度蓄積生物を生物学的高感度検出器として利用することが可能であり、有害物質の環境中での汚染の拡がりや濃度レベルを把握するなどの点で環境科学の分野での大いなる貢献が期待出来る。また、近年 Hyperaccumulator (高濃度蓄積生物あるいは特異的濃縮生物)の Bioremediation としての活用が陸上植物界で注目されており、Hyperaccumulator plant の検索・利用が欧米を中心に活発に行われている。

これまで、海洋動物については、環形動物のエラコがバナジウムを、軟体動物のヒレジャコガイ及びワスレガイがマンガンを、マガキガイがヨウ素を、リュウキュウヒザラガイが鉄を、マダコがコバルト及びウランを高濃度に蓄積することを発見した。本特別研究では、元素濃縮に関して情報量の非常に少ない海藻について元素分析を行い、放射性核種による海洋汚染を想定したときの海藻を用いての環境修復の可能性について検討した。

1. 試料及び分析方法

1) 試料の採取及び前処理

茨城県磯崎海岸を中心にして日本沿岸各地から 30 種の海藻を採取した。採取した海藻は実験室に持ち帰った後、甸甸部である根、体表面の砂及び付着生物を取り去った後清浄海水で洗った。表面の海水を濾紙で除去し、湿重量を測定したのちトールピーカに収容した。真空凍結乾燥機及び恒温乾燥機(70℃)で恒量に達するまで乾燥した。乾燥試料、約 1g に硝酸と過酸化水素を加えて湿式分解した後、さらに濃フッ化水素酸を 2 ml 加えて珪酸化合物を除去した。フッ化水素酸が完全に消失するまで乾固した後、乾固物を 1 規定硝酸で溶解し Toyo Advantec No. 5C 濾紙を用いて濾過した。なお試料の乾燥重量 1g を 100 ml にメスフラスコで定容することを原則とした。試料溶液には測定精度をあげるため内標準元素として、イットリウムとインジウムを加えた。なお、湿式分解に用いた酸類は全て多摩化学製の TAMA PURE AA-100 を使い、純水は、東レ製 TORAYPURE LV-10T で作製したものをさらに Millipore 社

製 Milli-Q2 で精製し比抵抗 18.0 MΩ 以上のものを用いたの
で白試験 (対照) は殆どゼロに近い値を示した。

2) 分析方法

i. 誘導結合プラズマ原子発光分光分析法 (Inductively coupled plasma atomic emission spectrometry(ICP-AES))

海藻中の元素分析は、表 3 に示す条件下で ICP-AES を
用いて行った。海洋生物中の元素濃度の測定にあたって、
試料溶液中のマトリックス元素 (Ca、Cl、K、Mg、Na、P)
の濃度と同等の濃度を有する標準溶液を用意してマトリッ
クス合わせを行うか、化学分離によって妨害元素をあらか
じめ除去しておく必要があるが、海藻の場合は多量のアル
カリ及びアルカリ土類金属を含んでいるものの使用する試
料量が 1 g 以下である場合はマトリックス効果は殆ど見ら
れないので今回の試料に関してはマトリックス合わせ、お
よび化学分離を行わないで直接試料溶液をプラズマ Torch
部に導入して定量分析を行った。乾燥試料 1 g を 100 ml に
溶解した場合、コバルトやニッケルなどいくつかの元素で
は溶液中濃度が ICP-AES の検出限界を下回ったため
ICP-AES による定量分析が出来なかった。また、セシウム
は ICP-AES では系統的に分析不可能のため次に示す
ICP-MS で分析した。

ii. 誘導結合プラズマ質量分析法 (Inductively coupled plasma mass spectrometry(ICP-MS))

ICP-MS による微量元素の高感度分析は ICP-MS で表 4
に示す測定条件下で行った。ICP-MS の適用に先だって
ICP-MS の分析性能について調べ、ICP-MS は高い検出能力
と分析精度、広いダイナミックレンジを有しているが、鉄
等の中質量領域元素は分子イオン、金属結合イオンの妨害
を受けて信頼性がやや劣ることを認めた。ICP-MS で定量
された元素はコバルト、ニッケル、クロム、チタン、カド
ミウム、セシウム、ウランなどである。

iii. 放射化分析によるヨウ素の定量

海洋生物中のヨウ素の定量分析に放射化分析法を適用す
るに先だって回収率算出用標準試料 I-126 を、次に示す手
順で作製した。ヨウ素 5mg を含む NH_4I を小紙片で包んだ
後、ポリエチレンの袋に 2 重に封入した。この試料を試料
数だけ作成し、おのおのポリイミド箔に包み石英管に封入
した。これをポリエチレン製照射用キャプセルに入れ、日
本原子力研究所の JRR-4 の T パイプ照射孔を用い $3 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の中性子線束密度で 20 分間中性子照射し、
 $^{127}\text{I}(\text{n}, \text{p})^{126}\text{I}$ 反応で I-126 を生成した。照射の翌日、キャ
プセルを取り出し開封した。石英管を割ってヨウ素を取り出
し、ポリイミド箔やポリエチレンの外側の袋をはずして新
しいポリエチレンの袋に封入し直し、回収率算出用標準試
料 I-126 を作製した。化学分離を行う前と後で、I-126 の放
射能を測定することによって放射能比を求め、得られた回
収率から化学分離に伴う損失の程度を補正した。塩化ナト
リウム含量が高い試料の場合は、試料を 50-100mg 採取し、
ポリエチレンの袋に 3 重に封入した。JRR-2 PN 照射孔
($4 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) および JRR-3 PN-1 照射孔 ($5 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) で 1 分間中性子を照射した。

照射後試料の化学分離及び分析手順は以下のとおりであ
る。キャリアとして安定ヨウ素 5mg を加えた後、試料を

濃硫酸と濃硝酸で加熱分解した。発生するヨウ素などのハ
ロゲンガスだけを亜硫酸水素ナトリウムを加えた水酸化ナ
トリウム溶液に吸収させ、 ^{24}Na などの妨害となる放射性核
種から蒸留分離した。ヨウ素を濃硝酸と過酸化水素で酸化
させた後、四塩化炭素で溶媒抽出した。この時塩素、臭素
は大部分水相に残る。ヨウ素を抽出した後、有機相を水洗
し、ヨウ素に伴って溶媒抽出された一部の塩素、臭素を逆
抽出した。還元剤を入れた水と振りまぜヨウ素を水相に逆
抽出しビーカーに移した。ビーカーに硝酸銀 (AgNO_3) を加
えヨウ化銀 (AgI) の沈澱を作り、濾過後沈澱をポリエチ
レンの袋に封入して測定試料とした。

$^{127}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{128}\text{I}$ により生じた I-128 の放射能を Si(Li) 半導
体検出器を用いて 300-500 秒測定し、続いてヨウ素回収率
を求めるため I-126 の放射能を 5,000 秒測定した。I-128 の
442.9 keV のピークエネルギーの放射能をヨウ素標準試料
の放射能と比較し、さらに I-126 から求めた回収率で補正
して分析試料中のヨウ素濃度を算出した。

ヨウ素濃度の高いマコンブの葉体の場合は各試料につい
て 50mg を採取しポリエチレンの袋で 2 重に封入後、照射
用キャプセルに詰め、JRR-3 PN-3 気送管を用い熱中性子束
 $= 2 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 、照射時間 = 10 秒で放射化を行った。
照射後、試料の外側のポリエチレンの袋を除き新しい袋に
封入し直し測定用試料を作製した。30 分冷却後に、化学分
離を行わずに直接 I-128 のピークエネルギーである 442.9
keV の放射能を測定し、標準試料とのカウント数の比から
試料中のヨウ素濃度を算出した。

2. 分析結果と考察

30 種の実験海藻について元素濃度の最大値、平均値、最小値
を表 5 に示す。この表の中で最大値を示した海藻で特に放
射性核種に関係する生物種は、鉄は緑藻のアオサ、ヨウ素
では褐藻のマコンブ、ストロンチウムは紅藻のサンゴモ、
ウランは褐藻のワカメであるが、第 II 章で述べたように
Hyperaccumulation として定義されている ” 海藻の平均濃
度の 100 倍以上 ” の概念を適用すると、このような大きな
値を示す種は存在しなかった。しかし、海中林を構成する
大型海藻であるホンダワラ、カジメ、アラメ、コンブ、ワ
カメなどはすべての元素に対して比較的高い元素濃度を示
しており、放射性核種による海洋汚染を想定した場合には
大型海藻を環境修復に適用することは有効であると考えら
れる。

表 5 では、本邦産海藻 30 種における元素濃度の最大値、
平均値、最小値を示したが、それぞれの海藻種についてあ
る特定の元素で以下のような大きな濃度変動が観察される。

1) 地域変動

i. 全国レベルでの変動

褐藻類はテクネチウム-99 を効率的に濃縮すること知ら
れているが、そのなかでもウミトラノオは同核種に高い親
和性を示す。また、海水中のテクネチウム-99 濃度変動に
対して高感度に反応するなど指標生物としてのすぐれた要
件を備えている。図 1 はウミトラノオを指標生物として日
本沿岸のテクネチウム-99 分布を調査した結果である。茨
城県沿岸をのぞく日本沿岸のウミトラノオ中のテクネチ
ウム-99 は、1960 および 1970 年代に行われた大気圏核爆
発実験に由来すると考えられる。海洋中においてテクネチ

ムは、 TcO_4^- として溶存すると考えられ、時間経過とともに分布は均一化すると考えられる。しかし、図 1 から海域において局地的な濃度の相違が存在することが海藻中濃度から想像される。

ii. 地域レベルでの変動

茨城県沿岸においてアラメの生育する場所 6 点を選び、同一時期に 1 地点につき 5 試料を採取し、微量元素濃度の地域差に関する調査を行った。その結果、銅および亜鉛を除いた 6 元素については顕著な濃度差は認められず、地域差の有無は認められなかった。これに対して水木地区で採取したアラメ中の銅および亜鉛の濃度は、他の地点で採取した試料と比べて 3 倍程度高い値を示した。生長段階、育成時期、代謝活性等の相違に基づく個体差を考慮してもなお平均濃度の差が 3 倍程度であり、この地区においてはアラメに対して、他の地域より高い濃度をもたらす何らかの原因が存在していたものと思われる。このようにわずか 100km の範囲においても濃度差が観察されたことは、採取場所の選定には十分な注意の必要であることを意味している。

2) 生長段階による微量元素の濃度差

生長に伴う微量元素の濃度変動をヒジキ、アカモクを用いて調査した。ヒジキの場合はいずれの元素も生長に伴う濃度変動は小さく、生長との相関関係が明確でなかった。アカモクの場合、マンガン、ニッケル、銅、亜鉛では生長に伴う濃度変動が殆ど見られなかったが、鉄では生長段階が高くなると共に濃度の減少が見られ、他の元素とは異なった濃縮傾向が観察された。

3) 季節変動

月毎に 3 回ウミトラノオを採取し、金属元素の季節変動に関する調査を行った結果、月毎の変動係数は鉄で最も大きく 5~10%、鉄以外の元素では概に 3~7%の範囲にあった。なおウミトラノオの採取は、同一場所で、体高 50~100cm の範囲に限定して行った。鉄、コバルト、亜鉛濃度は、ともに 3 月に最高値を示したのち、4 月以降漸次減少する傾向がみられ季節変動が観察された。特に鉄は顕著な季節変動を示し、3 月と 6 月におけるそれぞれの平均濃度を比較した場合 5 倍近い差異が認められた。これに対してマンガンは鉄、コバルト、亜鉛で観察された春期に最高濃度を示すような濃度変動を示さず、今回の調査の限りでは季節変動の存在を確認できなかった。一方、ナトリウム、カリウム、ルビジウムは生育期間を通じてほぼ一定の濃度を示しており季節変動は観察されなかった。またセシウムの場合も生育時期によって多少の濃度変動がみられるものの季節との間に一定の相関関係があるとはいえなかった。なお以上述べてきたような現象がウミトラノオ以外のホンダワラ類についても同様に認められた。以上の結果は、一生物種の元素濃度を定める場合には、季節変動の有無について考慮しなければならないことを示している。

放射性核種による海洋汚染を考慮した場合、海藻は、1) 多くの金属元素に対して比較的高い濃縮係数を有すること、2) 定着性であること、3) 採取が容易であること等の理由から非常に重要な指標生物として考えられてきた。しかしながら海藻中の微量元素濃度は種々の要因によって変動

することが判明したため、海藻の採取に当たっては、生育場所、部位（器官）、生長段階、生育時期等の採取条件について十分に考慮する必要があるものと考えられる。

問題点と将来構想

- 1) 海藻は 1 年草が多く、周年にわたってモニタリングや環境修復能力を発揮出来ないことがあるのではないかと。
- 2) 陸上植物では重金属を取り込んだ植物を刈り込んで灰にして減量化を行い、金属の再利用を考えているが、放射性核種を高濃度に濃縮した海藻の処理をどのように行うか。
- 3) 高度度蓄積に関係する遺伝子を大型海藻に transport してすべての核種にたいして高い濃縮能を有する海藻を遺伝子工学的に創出する事が出来るか。

III-2 海藻のろ過水量についての考察

海水中の放射性物質を海藻の吸収能を利用して除去する場合、その除去効率を評価するにあたっては、海藻葉面に接触して通過する海水の量、すなわちろ過量、あるいはろ過海水量に対して吸収、吸着によって海水からそれらの物質の除去する効率、除去効率を求める必要がある。

一般に、海洋環境試料を採取間もなく Ge 半導体検出器によるガンマ線スペクトルをとると、63.29keV、92.38keV および 92.80keV に半減期 24.10 日 Th-234 の β 崩壊に伴う γ 線が検出される。褐藻類ウミトラノオについて得られた γ 線スペクトルの例を図 2 に示す。Th-234 は、U-238 の α 崩壊によって生成され、海水中で U-238 と Th-234 は放射平衡に達していると考えられる。Th-234 は海水中的の懸濁物表面へ吸着しやすく、海水中的の過剰の Th-234 を層別に測定することにより懸濁粒子の沈降による深部移行速度を推定することにも利用されている。海藻葉面においても接触する海水から Th-234 が沈着し、結果として海水中的の Th-234 をろ過し除去する効果を示していると考えられる。いま、海藻と接触する海水の流量を V (l/sec)、単位重量あたりの海藻が海水から Th-234 をろ過する効率を f (l/kg)、海水および海藻中の Th-234 放射能濃度を、それぞれ C_w 、 C とすると、海藻中の Th-234 濃度は：

$$dC/dt = f \cdot V \cdot C_w - \lambda C$$

である。式中 λ は、Th-234 の崩壊定数である。したがって、 C は：

$$C = f \cdot V \cdot C_w \{ 1 - \exp(-\lambda t) \} / \lambda$$

となり、海水中においてはこの関係は平衡に達していることから：

$$C = f \cdot V \cdot C_w / \lambda$$

したがって、 $f \cdot V = \lambda \cdot C / C_w$ の間系が得られる。海水中的のウラン濃度は、3.3ppb でほぼ一定である。存在比が約 99.3% の U-238 放射能濃度は、約 0.041Bq/l、したがって海水中的の Th-234 放射能濃度は、0.041Bq/l と推定される。表 6 には茨城県ひたちなか市磯崎および日立市川尻近傍で採取した海藻について得られた Th-234 測定値、および上記の $f \cdot V$ で表したろ過効率を示した。 $f \cdot V$ 値は種により異なり変動の範囲は 6.02×10^{-8} から 3.95×10^{-7} (l/kg/sec) 程度である。これらの値を一日あたりのろ過効率で表すと、表最後列に示したように、単位重量の海藻と接触する海水中的のおよそ 0.5 から 3.4% の Th-234 をろ過することになり、Th-234 のような物質の除去に関してはむしろ効率的な手段になり得るものと考えられる。

表 1 8種類の重金属に関して Hyperaccumulator として知られている植物種の数および頻繁にみられる分類上の科名

元素	植物種の数	頻繁にみられる分類上の科名
Cd	1	Brassicaceae
Co	26	Laminaceae, Scrophulariaceae
Cu	24	Cyperaceae, Laminaceae, Poaceae, Scrophulariaceae
Mn	11	Apocynaceae, Cunoniaceae, Proteaceae
Ni	290	Brassicaceae, Cunoniaceae, Euphorbiaceae, Flacourtiaceae, Violaceae
Se	19	Fabaceae
Tl	1	Brassicaceae
Zn	16	Brassicaceae, Violaceae

表 2 農耕地土壌、海水、「標準植物」および Hyperaccumulator の元素組成 (ppm)

元素	農耕地土壌	海水	「標準植物」	Hyperaccumulator
Ag	0.1	0.00028	0.2	20
As	5	0.0026	0.1	10
Au	0.1	0.000011	0.001	0.1
Ba	500	0.021	40	4000
Br	5	6.73	4	400
Ce	53	0.0000012	0.5	50
Co	8	0.00039	0.2	20
Cr	200	0.0002	1.5	150
Cs	5	0.0003	0.2	20
Cu	20	0.0009	10	1000
Hf	6	<0.000008	0.05	5
I	5	0.064	3	300
La	40	0.0000034	0.2	20
Mo	2	0.01	0.5	50
Ni	40	0.0066	1.5	150
Pb	10	0.00003	1	100
Rb	100	0.12	50	5000
Sb	2.3	0.00033	0.1	10
Sc	7	<0.000004	0.02	2
Sr	300	8.1	50	5000
Th	6	0.0000004	0.005	0.5
U	1	0.0033	0.01	1
V	100	0.0019	0.5	50
Zn	50	0.005	50	5000

表 3 ICP-AES の作動条件

Polychromator system	Shimadzu ICPQ-1012W
Focal length	1.0 m Paschen-Runge
Holographic grating	2700 grooves/mm
Range	190.0-456.0 nm
Monochromator system*	Shimadzu CTM-100
Focal length	1.0 m Creerny-Turner
Holographic grating	3600 grooves/mm
Range	190.0-450.0 nm
Integration time	15 s
Plasma torch	
Frequency	27.12 MHz
RF power	1.2 kW
Observation height	15 mm above load coil
Coolant gas flow rate	15.0 l/min
Carrier gas flow rate	1.2 l/min
Sample uptake rate	2.0 l/min
Nebulizer	Concentric glass type

* An additional monochromator (Range:580.0-770.0 nm) belonging to a polychromator was used for the analyses of Na and K

表 4 ICP-MS の作動条件

Mass spectrometer	VG Elemental Plasma Quad PQ-2
Scan mass range	8.01-240.92 amu
Number of channels	2048
Number of scan sweeps	240
Dwell time	640 μ s/channel
Run time	315 s (ca.1.5 s/mass)
Skipped mass regions	11.50-22.00 27.50-42.50
Vacuum system	1st stage 2.6 mbar 2nd stage 1×10^{-4} mbar 3rd stage 2×10^{-6} mbar
Plasma torch	
Frequency	27.12 MHz
RF power	1.2 kw
Ion extracted position	10 mm from load coil
Coolant gas flow rate	14.0 l/min
Plasma gas flow rate	1.0 l/min
Carrier gas flow rate	0.7 l/min
Sample uptake rate	1.8 ml/min
Nebulizer	Concentric glass type

表 5 日本沿岸で採取された 30 種類の最大、最小、および平均元素濃度 ($\mu\text{g/g}$ dry wt.)

元素	最大値	最小値	平均値	
Al	917.00	12.200	113.160	± 230.940
As	20.00	0.632	15.000	± 8.000
Ba	16.20	0.440	5.540	± 5.450
Ca	296000.00	3790.000	31382.000	± 69734.000
Cd	6.80	0.540	1.780	± 1.670
Co	4.67	0.070	0.854	± 0.755
Cr	7.62	0.451	0.952	± 0.598
Cs	0.07	0.037	0.047	± 0.010
Cu	24.40	0.092	6.340	± 4.940
Fe	2660.00	14.700	334.000	± 638.000
I	2200.00	60.000	484.000	± 618.150
K	112000.00	7380.000	45211.000	± 33333.750
Mg	36520.00	3980.000	10814.000	± 8042.000
Mn	86.15	2.870	19.030	± 18.600
Na	94560.00	4810.000	26357.000	± 21135.000
Ni	15.07	0.631	1.023	± 0.955
P	2600.00	782.000	1812.000	± 632.000
Rb	52.00	11.000	26.460	± 11.830
Sr	1960.00	47.200	545.000	± 491.000
U	2.10	0.010	0.501	± 0.443
Ti	1.70	0.470	0.990	± 0.457
V	10.35	0.580	2.891	± 0.658
Zn	170.00	13.000	36.240	± 38.460
Zr	1.61	0.180	0.550	± 0.470

表 6 茨城県ひたちなか市磯崎近傍で採取した海藻中の Th-234 濃度および海藻の Th-234 ろ過効率

海藻	Th-234 濃度 Bq/kg-生	ろ過効率	
		l/kg/sec	%・日
ツノマタ	0.011	8.97E-08	0.8
ハリガネ	0.048	3.95E-07	3.4
アマモ	0.025	2.08E-07	1.8
フノリ	0.022	1.84E-07	1.6
コンブ	0.007	6.02E-08	0.5
ホンダワラ	0.046	3.72E-07	3.2

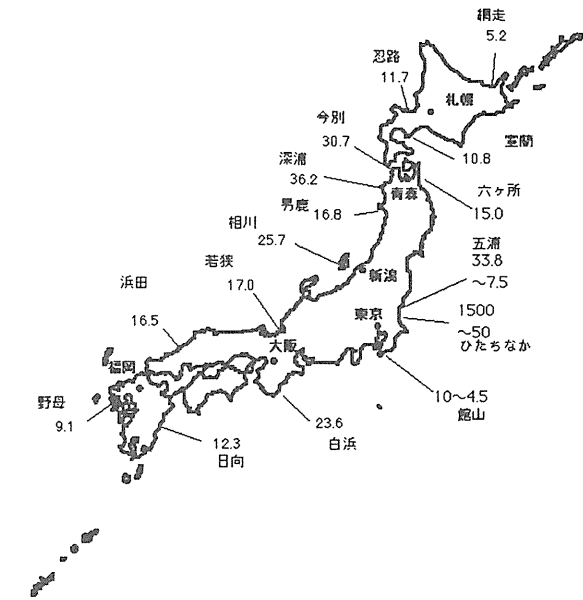


図 1 日本列島沿岸のウミトラノオのテクネチウム-99 濃度(mBq/kg wet)

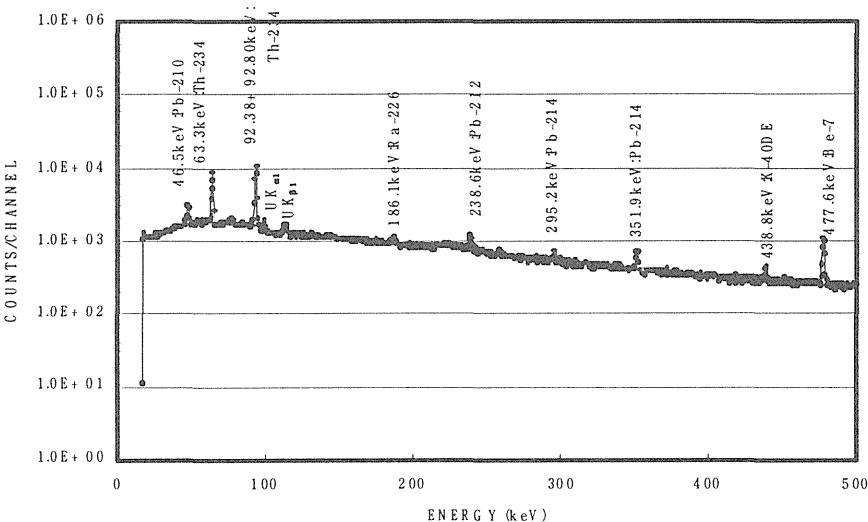


図 2 ウミトラノオの γ 線スペクトル

付表 Hyperaccumulator として知られている植物種
ニッケル ($\mu\text{g/g}$ 乾燥量)

科	種	採取地点	濃度(幅)		科	種	採取地点	濃度(幅)		
ACANTHACEAE (きつねのまご科)	<i>Blepharis acuminata</i>	Zimbabwe	2,000		EUPHORBIACEAE (とうだいぐさ科)	<i>L. moncadaae</i>	Cuba	15,330		
	<i>Justicia lanstykii</i>	Brazil	2,690			<i>L. obovatus</i>	Cuba	5,070	9,980	
	<i>Lophostachys violosa</i>	Brazil	1,890			<i>L. pachyphyloides</i>	Cuba	5,800	18,050	
	<i>Ruellia geminiflora</i>	Brazil	3,330			<i>L. pachyphyllus</i>	Cuba	693	9,220	
ADIANTACEAE	<i>Adiantum sp.</i>	Brazil	3,540			<i>L. pallidus</i>	Cuba	10,760		
ANACARDIACEAE (うるし科)	<i>Rhus wildii</i>	Zimbabwe	1,600			<i>L. erevolutus</i>	Cuba	8,910	17,240	
ASTERACEAE (きく科)	<i>Berkheya coddii</i>	South Africa	11,600			<i>L. sameki</i>	Cuba	13,080		
	<i>B. zeyheri</i>	South Africa	17,000			<i>L. saxicoa</i>	Cuba	10,820	18,480	
	<i>Chromolaena meyeri</i>	Brazil	1,100			<i>L. stenophylla</i>	Cuba	12,090	24,500	
	<i>Dicoma niccolifera</i>	Zimbabwe	1,500			<i>L. subpeltatus</i>	Cuba	13,890		
	<i>Leucanthemopsis alpina</i>	Italy	3,200			<i>L. virens</i>	Cuba	5,630	24,360	
	<i>Senecio coronatus</i>	South Africa	24,000			<i>L. wrightii</i>	Cuba	7,410	12,600	
BORAGINACEAE (むらさき科)	<i>S. pauperculus</i>	Newfoundland	1,900			<i>Phyllanthus 16 taxa</i>	New Caledonia	1,090	38,100	
	<i>Solidago hispda</i>	Newfoundland	1,020			<i>P. chamaecristoides</i> subsp.				
	<i>Heliotropium sp.</i>	Brazil	2,020			<i>chamaecristoides</i>	Cuba	18,530		
BRASSICACEAE (あぶらな科)	<i>Alyssum 48 taxa</i>	S.Europe/Turkey	1,280	29,400	EUPHORBIACEAE (とうだいぐさ科)	subsp. <i>baracoensis</i>	Cuba	3,400	31,740	
	<i>Bormmuellera 6 taxa</i>	Balkans/Turkey	11,400	31,200		<i>P. chryseus</i>	Cuba	10,790	13,790	
	<i>Cardamine resedifolia</i>	Italy	3,270			<i>P. cinctus</i>	Cuba	11,510	21,870	
	<i>Cochlearia aucheri</i>	Turkey	17,600			<i>P. comosus</i>	Cuba	9,340	19,380	
	<i>C. sempervivum</i>	Turkey	3,140			<i>P. comptus</i>	Cuba	7,260		
	<i>Peltaria emarginata</i>	Greece	34,400			<i>P. cristalensis</i>	Cuba	4,200	8,750	
BUXACEAE (つげ科)	<i>Streptanthus polygaloides</i>	California	14,800			<i>P. discolor</i>	Cuba	13,670	31,499	
	<i>Thlaspi 23 taxa</i>	Worldwide	2,000	31,000		<i>P. ekmanii</i>	Cuba	12,060	19,060	
	<i>Buxus aneura</i>	Cuba	1,450			<i>P. formosus</i>	Cuba	7,400		
	<i>B. baracoensis</i>	Cuba	1,590			<i>P. incrustatus</i>	Cuba	10	1,582	
	<i>B. crassifolia</i>	Cuba	8,350	12,250		<i>P. microdictyus</i>	Cuba	4,950	19,750	
	<i>B. excisa</i>	Cuba	2,150			<i>P. mirificus</i>	Cuba	4,480	7,690	
	<i>B. flaviramea</i>	Cuba	4,500	8,360		<i>P. myrtilloides</i> subsp. <i>alainii</i>	Cuba	14,330		
	<i>B. foliosa</i>	Cuba	1,320		subsp. <i>erythrinus</i>	Cuba	16,940	33,240		
	<i>B. gonoclada</i>	Cuba	2,610		subsp. <i>myrtilloides</i>	Cuba	8,490	9,970		
	<i>B. heterophylla</i>	Cuba	3,480	8,740	subsp. <i>shaferi</i>	Cuba	7,910	21,710		
	<i>B. historica</i>	Cuba	4,810		subsp. <i>spathulifolius</i>	Cuba	5,780	8,900		
	<i>B. imbricata</i>	Cuba	1,940		<i>P. nummularioides</i>	Cuba	12,240	22,930		
	<i>B. moana</i>	Cuba	1,100	1,760	<i>P. orbicularis</i>	Cuba	4,140	10,950		
	<i>B. pilosula</i>	Cuba	4,870	9,200	<i>P. ? pallidus(discolor ? orbicularis)</i>	Cuba	15,390	60,170		
	<i>B. Pseudoaneura</i>	Cuba	1,240		<i>P. phlebocarpus</i>	Cuba	4,890	19,400		
	<i>B. retusa</i>	Cuba	310	10,310	<i>P. pseudocicca</i>	Cuba	9,460	22,670		
<i>B. revoluta</i>	Cuba	7,870	15,630	<i>P. scopulorum</i>	Cuba	13,650	21,930			
CAMPANULACEAE (ききょう科)	<i>B.serpentinicola</i>	Cuba	10,410		<i>P. williamioides</i>	Cuba	232	18,100		
	<i>B. vaccinioides</i>	Cuba	25,420		FABACEAE (まめ科)	<i>Anthyllis sp.</i>	Italy	4,600		
	<i>Campanula scheucheri</i>	Italy	1,090		<i>Pearsonia metallifera</i>	Zimbabwe	10,000			
CARYOPHYLLACEAE (なでしこ科)	<i>Arenariaa 3species</i>	USA/Canada	2,300	2,370	<i>Trifolium pallescens</i>	Italy	1,990			
	<i>Minuartia laricifolia</i>	Italy	2,710		FLACOURTIACEAE (いいぎり科)	<i>Casearia silvana</i>	New Caledonia	1,490		
	<i>M. verna</i>	Italy	1,390		<i>Homalium 7species</i>	New Caledonia	1,160	14,500		
CONVOLVULACEAE (ひるがお科)	<i>Merremia xanthophylla</i>	Zimbabwe	1,400		<i>Xylosma 11species</i>	New Caledonia	1,000	3,750		
CUNONIACEAE	<i>Geissois 7 species</i>	New Caledonia	1,000	34,000	JUNCACEAE (いぐさ科)	<i>Juncus lutea</i>	Italy	2,050		
DICHAPETALACEAE	<i>Pancheria engleriana</i>	New Caledonia	6,300		MELIACEAE (せんだん科)	<i>Walsura monophylla</i>	Philippines	7,090		
	<i>Dichapetalum gelonioides</i> subsp. <i>tubercultum</i>	Philippines	26,600		MYRISTICACEAE (にくずく科)	<i>Myristica laurifolia</i>	Indonesia	1,100		
DIPTEROCARPACEAE	subsp. <i>andamanicum</i>	Andaman Is.	3,160		OCHNACEAE	<i>Brckenridgea palustris</i> subsp. <i>foxworthyi</i>	Philippines	7,600		
	<i>Shorea tenuiramulosa</i>	Sabah	1,000		subsp. <i>kjellbergii</i>	Sulawesi	1,050			
ESCALLONIAACEAE	<i>Argophyllum grunowii</i>	New Caledonia	1,380		ONCOTHOACEAE	<i>Oncotheca balansae</i>	New Caledonia	2,500		
EUPHORBIACEAE (とうだいぐさ科)	<i>A. laxum</i>	New Caledonia	1,900		POACEAE (いね科)	<i>Trisetum distichophyllum</i>	Italy	1,710		
	<i>Baloghia sp.</i>	New Caledonia	5,380		RANUNCULACEAE (きんぼうげ科)	<i>Ranunculus glacialis</i>	Italy	1,260		
	<i>Cleidion viellardii</i>	New Caledonia	9900			RUBIACEAE (あかね科)	<i>Mitracarpus sp.</i>	Brazil	1,000	
	<i>Onidoscolus bahianus</i>	Brazil	1,020		SAPOTACEAE	<i>Psychotria douarrei</i>	New Caledonia	19,900		
EUPHORBIACEAE (とうだいぐさ科)	<i>Leucocroton acunae</i>	Cuba	10,140		<i>Sebertia acuminata</i>	New Caledonia	11,700			
	<i>L. angustifolius</i>	Cuba	6,790	19,160	SAXIFRAGACEAE (ゆきのした科)	<i>Saxifraga 3species</i>	Italy	2,970	3,840	
	<i>L. anomalus</i>	Cuba	13,330		SCROPHULARIACEAE (ごまのはぐさ科)	<i>Esterhazyia sp.</i>	Brazil	1,060		
	<i>L. baracoensis</i>	Cuba	2,260		<i>Linaria alpina</i>	Italy	1,990			
	<i>L. bracteosus</i>	Cuba	11,660		STACKHOUSIACEAE	<i>Stackhousia tryonii</i>	Queensland	21,500		
	<i>L. brittonii</i>	Cuba	5,800		TILIACEAE (しなのき科)	<i>Trichospermumu kjellbergii</i>	Sulawesi	1,600		
EUPHORBIACEAE (とうだいぐさ科)	<i>L. comosus</i>	Cuba	6,470	11,740	TURNERACEAE	<i>Turnera subnuda</i>	Brazil	6,130		
	<i>L. cordifolius</i>	Cuba	2,040	19,620	VELLOZIACEAE	<i>Vellozia sp.</i>	Brazil	3,080		
	<i>L. cristalensis</i>	Cuba	4,970	8,070	VIOLACEAE (すみれ科)	<i>Agatea deplanchei</i>	New Caledonia	2,500		
	<i>L. discolor</i>	Cuba	7,670		<i>Hybanthus 5 taxa</i>	New Caledonia	3,000	17,600		
					<i>H. floribundus</i>	W. Australia	10,000			
					<i>Rinorea bengalensis</i>	SE Asia	17,500			
					<i>R. javanica</i>	Kalimantan	2,170			

[参考文献]

- 1) Plants that Hyperaccumulate Heavy Metals, Their Role in Phytoremediation, Microbiology, Archaeology, Mineral Exploration and Phytomining, Edited by R. R. Brooks, CAB INTERNATIONAL, Oxon, UK (1998).
- 2) Cunningham, D.D. and Lee, C.R.: Phytoremediation plant-based remediation of contaminated soils and sediments, In: Skipper, H.D. and Turco, R.F.(ed.s), Bioremediation: Science and Applications, pp. 145-156, Soil Society of America et al, Madison (1995).
- 3) Markert, B.: Progress Report on the Element Concentration Cadaster Project (ECCE) of INTERCOL/IUBS, International Union of Biological Sciences, 25th General Assembly, Paris (1994).

[研究発表]

- 1) Ishii, T.: Specific accumulation of iodine by the operculum of the strawberry conch *Strombus luhuanus*, Fisheries Sci., 63, 646-647 (1997).
- 2) Ishii, T.: Characterization of vanadium in the fan worm, *Pseudopotamilla ocellata*, Volume 30 in the Wiley series in advances in environmental science and technology, 30, 99-216 (1998).
- 3) Ishii, T., Miyazaki, T., and Numako, C.: State analysis of zinc in the retina of fishes by X-ray microbeam analysis using synchrotron radiation. Photon activity report 1999, 17, 243 (2000)
- 4) Ishii, T.: Characterization of vanadium in a marine organism. 2000 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (2000)
- 5) Ishii, T.: Speciation of iron in marine organisms. 2000 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (2000)
- 6) Ishii, T.: High accumulation of elements by marine organisms in the subtropical zone. Midoriishi. 11, 1-3 (2000)
- 7) Hashimoto, H. and Ishii, T.: State analysis of iodine in the marine organisms by XAFS, The 11th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, 11, 258 (2000)
- 8) Zhang, J. and Ishii, T.: Rare earth and trace element biogeochemistry of white clam in off Hatsushima cold seepage. JAMSREC J. Deep Sea Res., 16 II, Geochemistry, Geophysics and Dive Survey, 155-161 (2000)
- 9) 松葉満江、石井紀明、中原元和、中村良一、渡部輝久、平野茂樹：海洋生物中のウラン濃度と濃縮係数、RADIOISOTOPES、49、346-353 (2000)
- 10) Miyazaki, T., Nakahara, M., Ishii, T., Aoki, K. and Watabe, T.: Accumulation of cobalt in newly hatched octopus *Octopus vulgaris*, Fisheries Sciences, 67, 170-172 (2001).

II-3 食品中の放射性物質からの被ばく低減化に関する研究

西村義一、湯川雅枝、渡辺嘉人、白石久二雄（人間環境研究部）、
渡部輝久、宮崎多恵子（那珂湊放射生態学研究センター）、村松康行、内田滋夫（第4研究グループ）

Radiation Exposure Mitigation through Food

Y. Nishimura, M. Yukawa, Y. Watanabe, K. Shiraiishi (Division of Human Radiation Environment),
T. Watabe, T. Miyazaki (Laboratory for Radioecology),
Y. Muramatsu, and S. Uchida (Environmental and Toxicological Sciences Research Group)

ABSTRACT: $^{137}\text{CsCl}_2$ was incorporated into plants (tomyao and broccoli) and these homogenized solutions were administered to rats. The whole-body retention was determined with an Armac counter. The whole body retention patterns of ^{137}Cs incorporated into the plants were not significantly different from that of the $^{137}\text{CsCl}_2$ solution.

Chitosan is derived from chitin, which is a cellulose-like biopolymer distributed widely in nature, especially in crustaceans, insects, fungi and yeast. The present study was to investigate whether chitosan can be applied to animal and human bodies in order to reduce the bioavailability of radio-iron and -zinc in food. Chitosan inhibits dietary iron absorption only when rats eat on iron-deficient diet. The effectiveness of phytate (myo-inositol 1,2,3,4,5,6-hexakis dihydrogen phosphate) and chitosan in reducing the bioavailability of radio-zinc depend on the concentration of phytate and chitosan.

Recently, the share of imported foods increased ca. 40 % of Japanese total food consumption. Radioactivities in imported foods must be checked from the viewpoints of internal radiation for Japanese subjects. Concentrations of ^{232}Th and ^{238}U in some imported mineral waters were higher than domestic waters. However, internal doses of portable waters are negligible. Individual foodstuffs in major food groups (fish and shellfish, meats, mushrooms, root vegetables and so on), which contributed to some radionuclide intakes in Japanese, were also analyzed to clarify the critical pathway in Japanese subjects.

I 研究目的

これまで、動植物中に取り込まれた放射性核種のラット体内での動態を調べる研究、チェルノブイリ事故直後に採取した葉菜類の洗浄などによる除染効果を調べる研究、食品中安定元素分布の測定法の確立、食品別放射性核種の摂取寄与率の推定する研究などを行ってきた。今回の特別研究では、食品から人体および人体内における微量物質の移行メカニズムを制御するバイオアベイラビリティに関する研究を行なうとともに、食品中の放射性物質の化学形態と消化管吸収との関連、ならびに輸入食品による決定食品の検索などを行い、緊急時における適切な食品処理法等に関する情報を得ることを目的とした。

II 経過

食物連鎖を考慮し、食品中に取り込まれた放射性セシウムの動物体内での動態を調べる実験を行った。また、食品中の安定元素の分布を調べるための測定法の確立に努めた。

さらに日本人が摂取する食品群別の放射性核種による摂取寄与率を求めるとともに、輸入食品摂取による内部被ばく低減化のため、決定食品の探索、決定経路を解明するための研究を行った。

III 成果

放射性セシウムの化学形が胃腸管吸収に及ぼす影響を

調べるため、椎茸、人參、豆腐、牛乳、豆苗、ブロッコリーなどの食品にセシウム-137（塩化セシウム）を添加、あるいは取り込ませ、これをラットに経口投与したところ、塩化セシウムだけを投与した対照との間に体内残留率の違いは観察されなかった。すなわち、見かけ上は塩化セシウムと同様な挙動を示す。塩化セシウム存在下で栽培した植物のホモジナイズ抽出液をラジオクロマトグラフィで展開しても対照群との間に分布パターンに差はなく、塩化セシウムは植物中で変化を受けていないことが推測された。

食品中に含まれるキレート物質としてフィチン酸があり、亜鉛などをキレートすることが知られている。フィチン酸を飲料水に加えて飼育すると、5%では亜鉛-65の吸収を阻害したが、毒性によるものと考えられる摂食障害、消瘦が認められた。1%では亜鉛-65を単独投与した対照群との間に胃腸管吸収率の差が見られず、濃度に依存傾向があった。しかし、単独では吸収抑制の効果のなかった1%フィチン酸を飲料水で摂取させた群をキトサン添加飼料で飼育すると、体内残留率が明らかに減少した（図-1）。被ばくが長期にわたる場合、排泄促進剤も連続的に摂取する必要がある、生体に大きな負荷を与えないことが望ましい。キトサンは動物性の食物繊維で毒性がないため、他のキレート剤との併用により相乗効果が期待できる。また、キトサンは外部放射線にも強いものと考えられているが、キトサンを摂取したマウスで放射線

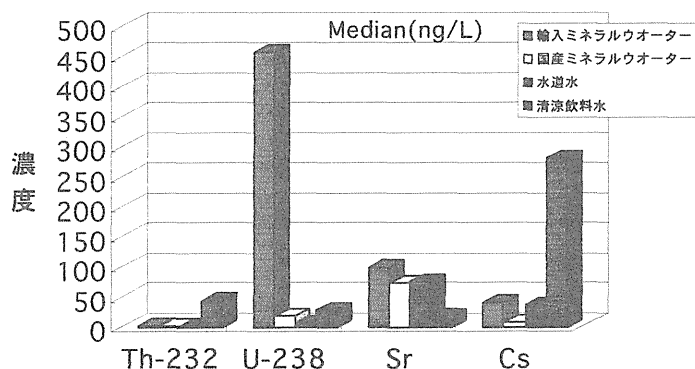
抵抗性を示すことも明らかになり、現在、その研究を進めている。

一方、キトサン自体の代謝に関しては不明な点も多い。すでに ^{14}C ラベルキトサンを合成し、その代謝を調べているが胃腸管から吸収されないと言われているキトサンの一部は分解を受けて吸収されることが明らかとなった。 ^{14}C -キトサンは母体から胎児、母乳から新生児へも移行し、投与後数時間で母乳中に出現すること、クリーム層に最も高い割合で分布することなどがわかり、調理、加工に際しての貴重な情報を得ることができた。

また、日本国民の被ばく線量低減化の観点から、食物摂取による内部被ばくの実態（決定食品・決定経路）を知ることを目的とした研究を行なった。近年、食品の国外依存性は高まるばかりであり、魚介類、肉類、野菜類等の食品類に加えて輸入物のミネラルウォーターの利用も急増している。日本人の食品摂取からの内部被ばくへの影響について検討するために、輸入ミネラルウォーター中の ^{232}Th 、 ^{238}U 濃度について測定し、国内産の飲料水濃度と比較した。

^{232}Th の濃度範囲は輸入ミネラルウォーター 0.51-65 ng/L、国産ミネラルウォーター 0.2-1.8 ng/L、水道水 0.34-4.9 ng/L

飲料水中の Th-232, U-238, Sr, Cs 濃度



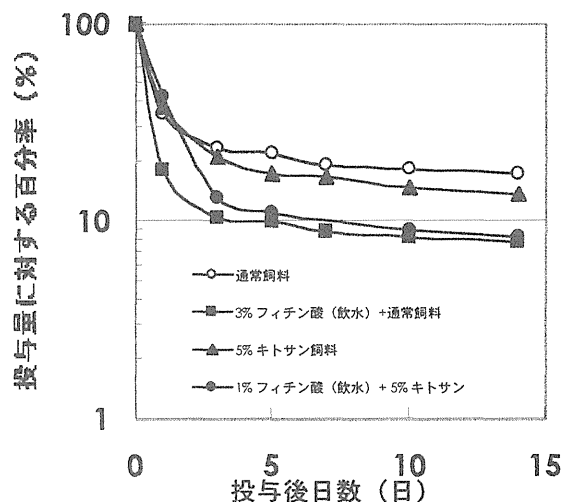
[研究発表]

- 1) 佐藤 薫、宮原研三、一政満子、西村義一、一政裕輔、マウスにおけるヘマトクリット値と生存におよぼすタングステン酸の放射線防護効果、第36回理工学における同位元素研究発表会、1999.7、東京
- 2) 金 熙善、西村義一、渡辺嘉人、湯川雅枝、和田正裕、姜 文日、キトサンの乳汁移行について、第13回キチン・キトサンシンポジウム、1999.8、松戸
- 3) 白石久二雄、坂内忠明、村松康行、山本政儀、日本人の18食品別によるセシウム摂取量、第41回日本放射線影響学会、1998.12、長崎

であった。 ^{238}U 濃度は輸入ミネラルウォーター 2.1-2,200 ng/L、国産ミネラルウォーター 3.7-660 ng/L、水道水 3.9-36 ng/L と範囲が広い（図-2）。最大濃度の輸入ミネラルウォーターを飲用した場合、 $2.2\mu\text{g}/\text{人}/\text{日}$ は食事からの1日摂取量に相当する。胃腸間吸収率を無視して計算した ^{238}U からの内部被ばく線量、 $0.4\mu\text{Sv}/\text{年}$ は食物摂取による主要核種に基づく日本人の年間線量、 $0.32\text{mSv}/\text{人}$ の1,000分の1程度であった。

また、日本において、放射性核種がどのような食品を経て日本人の体内に取り込まれ、蓄積していくのかを知るために、食品を18群に分類し、食品群別の放射性核種の摂取寄与率についても研究を行って来た。核種にもよるが、日本食の場合は総じて海藻類、魚介類などの水産食品の寄与率が高い。例えばセシウムの場合はキノコ類等の寄与率が高く、種実類、肉類、芋類の濃度が高いことが解ったが、食品群別研究では、個別の食品における濃度差については情報が得られない。具体的な決定食品を知るために寄与率の高い食品群であるキノコ類、種実類、海藻類等について、個別的に食品の収集を行い、化学分析を進めている。

フィテン酸とキトサンを摂取させたときの ^{65}Zn の体内残留率



- 4) Shiraishi, K., Ban-nai, T., Muramatsu, Y. and Yamamoto, M.: Comparison of stablecesium and radiocesium on dietary intakes by Japanese subjects using 18 food categories, J. Radioanal. Nuc. Chem. 242, 687-692, 1999.
- 5) 白石久二雄: 輸入食品中の放射性核種濃度、1. ミネラルウォーター中のウラン・トリウム濃度、第42回日本放射線影響学会、1999.10、広島
- 6) Yukawa, M., Watanabe, Y., Nishimura, Y., Guo, Y., Yongru, Y., Lu, H., Zhang, W., Wei, L. X., Tao, Z. Determination of U and Th in soil and plants obtained from a high natural radiation area in China using ICP-MS and gammna-counting, Fresenius J. Anal Chem., 1999
- 7) Kaoru Sato, Michiko Ichimasa, Kenzo Miyahara,

- Masae Shiomi, Yoshikazu Nishimura, Yusuke Ichimasa, Radioprotective Effects of sodium Tungstate on Hematopoietic Injury by Exposure to ^{60}Co γ -rays in Wistar Rats. *J. Radiat. Res.*, 40,101-113,1999
- 8) Nishimura, Y., Kim, H.S., Kawano, A., Watanabe, Y. and Yukawa, M., Induction of Radiation Resistance by Chitosan in Mice. Research seminar of Nuclear medicine in near future1, March, 2000, Kwang-ju
 - 9) Kim, H. S., Nishimura, Y., Watanabe, Y., Yukawa, M., Wada, M. and Kang, M. I.:Transfer of ^{14}C -chitosan into rat's milk, *Chitin and Chitosan Research*, 6: 51-58,2000
 - 10) Nishimura, Y., Kim, H. S., Yan, A., Watanabe, Y., Yukawa, M., Imai, K., Watari, K. and Inaba, J., Biokinetic Study of Radionuclides in Rats after feeding a Chitosan Diet, *IRPA-2000*, 14-19, May, Hiroshima
 - 11) Nishimura, Y., Kim, H. S., Watanabe, Y., Yukawa, M., Imai, K., Watari, K. Inaba, J. and Matsusaka, N., Decorporation of Radiostrontium in Rats after Treated a Chitosan, Sorption Methods and Technologies in Settlement of Ecological and Endoecological Problems of the Chernobyl Accident,14-17 July 2000, Kyiv, Ukraine.
 - 12) 西村義一、金 熙善、河野明広、金 桂、和田政裕、渡辺嘉人、湯川雅枝、キトサンによる放射線抵抗性の誘導 1.X線照射後の生存曲線と血液変化, 第 14 回キチン・キトサンシンポジウム、2000. 5, 吹田市
 - 13) Shiraishi, K., Tagami, K., Muramatsu, Y. and Yamamoto, M.: Contributions of 18 Food Categories to Intakes of ^{232}Th and ^{238}U in Japan, *Health Physics*, 78, 28-36, 2000.
 - 14) 白石久二雄, 日本食からの放射性核種摂取の経路, *ぶんせき*, 9, 522-527, 2000.
 - 15) Kim, H. S., Nishimura, Y., Watanabe, Y., Yukawa, M., Wada, M., Kim, H. K., Woon, J. O. Biokinetics of ^{14}C -chitosan after administration into different part of the gastrointestinal tract, *Chitin and Chitosan Research*, 6:226-233,2000

II-4 緊急時におけるヒト集団の被ばく線量及びリスク低減化評価に関する研究

河村日佐男、吉本泰彦、米原英典、吉永信治、木村真三（人間環境研究部）、
本郷昭三、竹下洋（人材・研究基盤部情報化推進室）

A Study to Reduce Radiation Doses and Risks of the Public in Japan after Radiological Emergency

H. Kawamura, Y. Yoshimoto, H. Yonehara, S. Yoshinaga, S. Kimura (Division of Human Radiation Environment),
S. Hongo and H. Takeshita (Information Network Promotion, Division of Education and Scientific Services)

ABSTRACT : Our object is to get useful findings to reduce radiation doses and risks of the public in Japan after radiological emergency including the views from radiation epidemiology. A constant review was conducted for serious radiation accidents associated with nuclear facilities in the past. Furthermore, three main aspects were examined: 1) to determine physiological, metabolic and ecological characteristics for internal individual dose estimate, 2) to demonstrate an effect of protective action by the control foodstuffs, 3) to examine geographic information system (GIS) for epidemiological risk assessment after the radiological emergency. Several findings were gotten for volume of respiration, urinary excretion of α -emission radionuclides using ICP-MS, and different-area food consumptions in Japan. An effect of protective action from ^{137}Cs and ^{131}I intakes by imported non-contaminated milk for infants was demonstrated by a model calculation on the basis of the Japanese body burdens for the radionuclides from the fallouts due to atmospheric nuclear weapon explosion tests and Chernobyl accident. For the various radiuses from the Japanese nuclear power plants the number of population and deaths are estimated within a circle of the nuclear power plants with 16 sectors on the basis of small areas using GIS

I 研究目的

放射線事故発生後における一般公衆の諸種の放射線（放射性核種）による被ばく線量の把握およびそれらの低減化方策のため、疫学的視点による健康影響評価上の問題点を含めて、集団線量・リスクの評価上の問題点を検討することを目的とする。

II 経過

一般公衆であっても急性症状を伴うような高線量被ばくに巻き込まれるような小規模の放射線事故はしばしばある。一方、大規模の放射線事故は稀ではあるが事故に巻き込まれた一般公衆の集団では事故後長期にわたる放射線の後影響（がん等）が懸念されるであろう。放射線事故の種類によって対象とする放射線被ばくの形態も異なるけれども、事故による放射線被ばくの予測線量は線量率と時間で経時的に計算され、その予測線量は防護処置による回避線量と残存線量に概念的に分けることができる（ICRP Pub.60）。残存線量に関しては、被ばくの実態を把握するために放射線被ばく集団の個人個人の被ばく線量を正確に評価することが重要である。例えば、放射性核種の吸入・経口摂取による内部被ばく線量は、国別或いは国内の、年齢などの人体の生理的パラメータや食生活等の環境の違いに大きく変動するかもしれない。他方、特定集団を対象とした外部被ばくや吸入による内部被ばくの即時的防護処置に加えて、不特定集団を対象とした

通常の生活状態へ復帰したと判断されるまで汚染した食品・水の摂取及び汚染物質との接触を回避する防護処置が必要となることがある。最後に、放射線事故後の防護処置、即ち被ばく線量低減化方策の妥当性の検証或いは放射線事故による健康影響の実態把握をするために、十分に定義された集団に基づく疫学調査の実施が考えられる。このような観点から、緊急時線量算定、緊急時線量低減化方策、過去の大規模な放射線事故及び原子力防災計画の恒常的なレビューを行った。加えて、1) 放射性核種の吸入・経口摂取による内部被ばく線量に関する人体の生理的パラメータ及び食品摂取量、2) 乳児の放射性核種の食品摂取による内部被ばくの低減化方策、及び3) 放射線源周辺住民のリスク評価のための GIS（地理情報システム）の構築と有用性、の具体的な 3 課題を取り上げて研究を行った。平成 10 年度は、日本人の標準的な呼吸量、日本人乳児へのフォールアウト（放射性降下物）による内部被ばく線量、及び GIS 基本ソフトを主に検討した。平成 11 年度は、 α 核種の排泄量の測定、 ^{137}Cs 汚染による乳児の内部被ばく線量低減化方策の効果、及び GIS に利用可能な人口データを主に検討した。また、日本でも 1999 年に東海村の JCO ウラン加工工場で臨界事故が起き、周辺の環境調査や 350m 以内の周辺住民の被ばく線量評価に必要な臨界終息までの行動調査にも協力した。正確な被ばく実態を把握することで一般公衆の心的不安の低減化が期待できるであろう。平成 12 年度は、

食品摂取量、 ^{131}I 汚染による乳児の内部被ばく線量低減化方策の効果、及び GIS を用いて原発からの距離と方位による人口算出を主に検討した。

Ⅲ 成果

1. 緊急時の迅速な被ばく線量評価とその妥当性に関わる人体の生理的パラメータについていくつか検討した。一つには正常日本人の性・年齢別の呼吸量（肺容積、肺活量、1 分間値、8 時間値）に関する文献調査から標準的な呼吸量を検討した。他の一つは、 α 核種 (^{238}U 、 ^{232}Th) の排泄量を ICP-MS により分析測定した。 ^{232}Th の排泄量には個人差があることが示唆された。また、国民栄養調査資料から性・年齢・地域・生計（農家非農家所帯）別の食品摂取量についても検討した。今回は、放射性核種の吸入・経口摂取による内部被ばく線量を評価する上で、年齢などに依存した標準的呼吸量と放射性核種の排泄量に関する人体の生理的パラメータ、及び食習慣と食品の産地等に関して、個人に対する実際の線量の変動を理解するための必要な知見がいくつか得られた。

2. 原子力施設事故時の住民の危機管理システム構築において、乳児の内部被ばく線量の低減化方策が重要課題の一つである。その事例研究として ^{137}Cs と ^{131}I による乳児の内部被ばくについて検討した。大気圏核実験由来及びチェルノブイリ事故由来のフォールアウトの ^{137}Cs による日本人乳児の内部被ばく線量を評価し、その大きさの特徴を調べた。その結果、大気圏核実験由来のフォールアウトが顕著であった時期には、人工栄養の乳児の被ばく線量が母乳児の約 5 倍であった。これと対照的に、チェルノブイリ事故以後にはこのような大きな差は認められなかった。これらのデータを基に、日本の原子力施設事故により ^{137}Cs で国内が広域汚染した場合、汚染されていない粉ミルクと食品の輸入による乳児の内部被ばく線量低減効果を日本人乳児の被ばく線量推定モデルを用いて評価した。例えば、50%或いは 80%の割合で輸入した場合、通常レベルの食品では線量は各々 91%及び 87%の低減であるが、粉ミルクでは線量は各々 58%及び 34%の低減になると考えられた。このような ^{137}Cs による低減効果についてのモデル計算を基に ^{131}I についても検討した。 ^{137}Cs と比べ ^{131}I の半減期が短いことから、 ^{131}I の場合は相対的に母乳より粉ミルクの影響が大きく、また粉ミルクの製造時期が関係する。この他、汚染粉ミルクの回収や粉ミルクの製造過程における除染対策による低減化も考えられよう。今回は、原子力施設事故時の住民の危機管理システム構築において、粉ミルクの製造・流通制限による低減化対策に必要な知見がいくつか明らかになった。

3. 一般公衆への原子力防災計画の必要性が認識されるようになったのは 1957 年の英国ウィンドスケールのプルトニウム生産炉での火災事故によるといわれる。この事故で放出された ^{131}I による甲状腺がんリスクの増加が懸念された。その後、商業用原子力発電所における最初の重大事故が 1979 年に米国のスリーマイル島 (TMI) 原子力発電所で、次いで 1986 年には旧ソ連のチェルノブイリ原子力発電所で起きた。TMI 原発事故における施設外への放射性核種の放出は限られたものであり、周辺住民の最大

被ばく線量は 0.85 mSv と推定されている。16 km 周辺約 16 万人の事故前後 5 年間のがん罹患率 (1975-1985) 調査でも事故によるがんリスクの増加は確認されていない。チェルノブイリ原発事故では、30km 周辺住民約 11 万 6 千人は避難を余儀なくされたが、その外部被ばく線量は最大で 380 mSv 程度と推定されている。また、原子炉から 100km 以内周辺地域（西と北西）、原子炉から 200km を中心とする地域（北と北東）及び 500km を中心とする地域（北東）で重度の ^{137}Cs 沈着濃度が見られた。特に、このような旧ソ連内の広域汚染と主に ^{131}I 汚染ミルク摂取による内部被ばくを原因として、事故時に乳児・青少年であった人々に甲状腺がんリスクの著しい上昇が事故後約 5 年経過して見られ、その過剰リスクは現在も継続している。前述のように 1999 年には日本でも JCO 臨界事故によって、放射性核種の放出はほとんどなかったが、周辺住民が中性子線の外部被ばくを受けた（行動調査による推定線量では約 20 人が 5~21 mSv）。この外部被ばくの範囲は、例えば 0.5 km 周辺住民では約 0.3 mSv と推定されている。この被ばくによる周辺住民への健康影響は極めて小さいと考えられ、心的不安を含めた長期的な健康管理への取り組みが検討されている。原子力発電所事故の国際原子力事象評価尺度 (INES) によれば、1957 年のウィンズケール事故は放射性物質の施設外放出によりレベル 5、1979 年の TMI 原発事故は原子炉の炉心の損傷によりレベル 5、1986 年のチェルノブイリ原発事故は放射性物質の施設外の重大な放出によりレベル 7、1999 年の JCO 臨界事故は施設内の重大な被ばくによりレベル 3 とされている。

日本国内では 1998 年 12 月末で 12 道県 (20 市町村) に 51 基 (ふげんを含み、東海発電所は 1998 年 3 月末停止) の原子力発電所が運転している。一般的に原発は社会経済的中心地から離れた海岸沿いに位置している。日本の原子力防災体制は災害対策基本法に基づいている。これら 12 道県の原子力防災計画の中で原子炉から 10 km 周辺を 16 方位別に人口集計がされている。また、スリーマイル島原発事故を契機に原子炉事故を対象にして、原子炉周辺数 10km 四方の諸種の放射線核種線量を予測する緊急時環境線量情報予測システム (SPEEDI) が日本原子力研究所で開発された。しかしながら、チェルノブイリ原発事故による一つの教訓は小児期の自然誘発甲状腺がんの低いリスクと広域で大規模な被ばく集団が対象となる場合個人レベルによるリスク評価が容易でないことである。例えば、ベラルーシの全国土は約 20 万 8 千 km² で、その約 22% が沈着濃度による汚染地域とされている。事故時 18 才以下の人口はベラルーシ全国土で約 300 万人、その約 16% が汚染地域の人口とされている。なお、日本の全国土は約 37 万 8 千 km² で、人口密度はベラルーシの約 6.6 倍である。また、死亡統計に加えて、甲状腺がんの多くは致死的でないために既存の腫瘍登録がない場合甲状腺がんモニタリングシステムの構築が不可欠である。

放射線事故後の防護処置、即ち被ばく線量低減化方策の妥当性の検証或いは放射線事故による健康影響の実態把握をするために、十分に定義された集団に基づく疫学調査の実施が考えられる。広域で大規模な集団の個人レベルによるリスク評価は困難である。一方、市町村単位の行政単位に基づく簡便な地理的相関研究はしばしば行

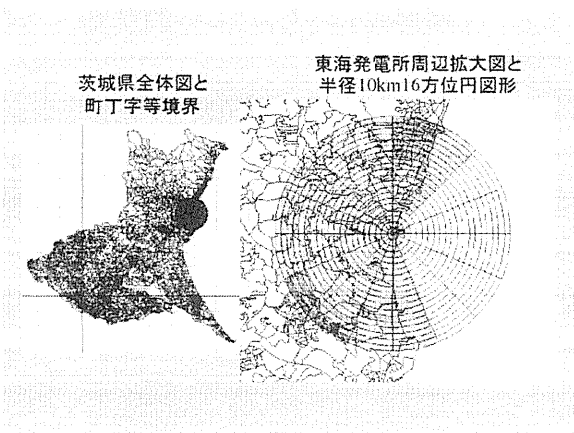
われるが、その結果の解釈には限界がある。例えば、前述したように、原発は一般に社会経済的中心地から離れた海岸沿いに位置しており市町村単位内で同一のリスクを想定する妥当性が弱い。そこで、小地域単位（町丁字等）と個人レベルの情報を併用した効率的な放射線疫学研究の一つの手法として「公衆のためのリスク評価 GIS(地理情報システム) (仮称)」の構築と有用性を検討した。GIS 基本ソフトには ArcViewGIS を用いた。福島、茨城、及び福井の 3 県の所在する原子力発電所について検討した。これら 3 県の 1995 年国勢調査（町丁字等別集計）人口データ（性・年齢別）を用いて原発周辺の 16 方位（真北から 22° 30' 毎）円図形内で中心から 500m 毎の人口数集計について検討した。図形境界域で分割される小地域単位の人口数を面積比で比例配分した。死亡概数の算定には人口動態統計による日本全国の性・年齢別死亡率（1993-1997 年）を用いた。

茨城県の 1998 年に閉鎖された東海発電所は原子力産業

の地域振興により例外的に周辺人口数が多い（10km 周辺で約 22 万 6 千人）。同県で臨界事故が起きた JCO 東海事業所は内陸に位置するためにその周辺人口数はさらに多くなる（10km 周辺で約 37 万人）。この他、原発周辺 10km 以内（約 314 km²、約半分は海域）の人口数は原発所在市町村単位の人口数より大きい場合と小さい場合がある。原発周辺の人口数は福島県（福島第一、第二）で約 15 万人、茨城県（東海）で約 122 万人である。目的に応じた効率的な処理方法や集計結果の出力方法など解決すべき課題が明らかになった。例えば、フォールアウト汚染地域のような飛び地も考えられる。最終的に、個人レベルで把握された健康影響指標（死亡・罹患）データと、SPEEDI 等による地理的線量分布及び危険集団データをリンクすることが必要である。今回は、放射線疫学研究の一つの手法として「公衆のためのリスク評価 GIS（地理情報システム）(仮称)」の構築と有用性に関して、いくつか必要な知見が得られた。

原発周辺 10km 以内の人口概数と全国死亡率を基準にした死亡概数					
対象範囲	原発施設	1995 年	想定 5 年間(1993-97)の死亡概数		
		人口概数	全死因	全がん	白血病
福島県	福島第一	51900	2040	582	13
	福島第二	34300	1230	347	8
茨城県	東海	226100	6880	2049	51
	(JCO 東海)	(372400)	(10677)	(3186)	(81)
福井県	敦賀	3700	195	53	1
	美浜	6300	265	73	2
	大飯	8600	314	87	2
	高浜*	14600	760	205	4

*京都府を含まない



[研究発表]

- 1) G. Tanaka, H. Kawamura, R.V. Griffith, M. Cristy and K. F. Eckerman: Reference man models for males and females of six age groups of Asian populations., Radiat. Prot. Dosim. 79 (1-4): 383-386,1998.
- 2) H. Kawamura, M. Yamamoto and G. Tanaka: Ra-226 in bone of the general public in Japan. International conference on health effects of throrast, radium and other alpha emitting nuclides, Tokyo, 1999.1.19.
- 3) 河村日佐男、M. Hasyim、木村真三：日本人の生理代謝特性：成人尿中 ²³²Th および ²³⁸U 排泄量の ICP-MS による測定。日本放射線影響学会第 42 回大会、広島、1999.9.1.
- 4) 原子力施設事故等における食品放射能の測定および安全性評価に関する研究（第 4 章）、平成 12 年度厚生省科学研究（出雲義郎班長）、2000 年 3 月.
- 5) Y. Yoshimoto, S. Yoshinaga: A review for the epidemiological study as a health monitoring of potential risk of radiation exposure near the nuclear power plants in Japan. IRPA-10, Hiroshima, 2000.5

平成13年12月刊行

放射線医学総合研究所

研究交流・情報室

千葉県稲毛区穴川4丁目9番1号（〒263-8555）

電話 千葉 （043）206-3027（ダイヤルイン）

<http://www.nirs.go.jp>

E-mail : kouryu@nirs.go.jp