

放医研環境セミナーシリーズ No. 27

# ラドン、その人間への影響まで

下 道國  
山田 裕司 編

放射線医学総合研究所

放医研環境セミナーシリーズ No.27

# ラドン、その人間への影響まで

下 道國  
山田 裕司 編

放射線医学総合研究所

# **Radon and Thoron**

**- Opportunities, Properties and Health Effects -**

**Proceedings of the 27th NIRS Seminar on Environmental  
Research held at Chiba, December 2-3, 1999**

**Edited by  
Michikuni SHIMO  
and  
Yuji YAMADA**

**June, 2000**

**National Institute of Radiological Sciences  
Chiba, Japan**

# 序 文

人工元素も入れて100を超える元素の中で、ラドンは、研究者ばかりでなく広く一般の人々にも興味を持たれ、また話題にされている。その理由は必ずしも一様ではないが、天然で唯一の放射性希ガスであるという事実や、放射性であるが故の害が認識されながら、一方では放射能（ラドン）温泉としての魅力が公衆に少なからず支持されていることなどが背景にあると思われる。

この10年ほどを振り返ってみて、ラドンがシンポジウム等の課題として取り上げられた回数は、国内外では数多く、国内だけでも10回に及ぶ。放医研では、1977年に「人間環境と自然放射線」と題した第5回環境セミナーで取り上げられて以来、主題として以外を含めて環境セミナーで取り上げられたのは5回に及ぶ。初期の頃の屋外ラドン濃度の数少ない測定例と性状と動態の報告から、昨年の測定技術の総括、屋内外ラドン濃度、トロン、線量評価と被曝影響に至る総括的な取りまとめまでをみると、この間のラドンとその子孫核種による人間への影響に関する研究分野の進捗がよく理解される。

放医研では、これまでに屋内外ラドン濃度レベルと線量評価等について、測定器の開発を含めて先導的に調査研究がなされてきている。現在は、特別研究や原子力基盤技術総合的研究、放射能調査等の中でさらに調査・研究が進められているが、その主な研究内容は、放医研としての特徴を生かした、ラドンの生物への影響を調べる「ラドン健康影響研究」に主眼が置かれている。さらに、次年度からの独立行政法人化に合わせて、自然環境濃度に近いレベルでの人への影響について何らかの答えを出すことを目標に計画が立てられつつある。

本論文集は、上記の背景の下、平成11年12月に行われた第27回環境セミナーでの発表論文を取りまとめたものである。締めくくりに替わりに、1977年以降に国内でに開催されたラドン関連のシンポジウム、セミナー等の開催年表を示し、もってこの論文集が今後の研究の一里塚となることを望む。

第27回放医研環境セミナー実行委員長  
下 道國

# ラドン関連シンポジウム等の年表

1977年以降、国内で開催されたラドン関連のシンポジウム、セミナー等  
( ) 内は講演題名や、シンポジウムの内容

1. 1977 放医研第5回環境セミナー「人間環境と自然放射線」  
(大気中のラドン濃度と性状)
2. 1987 放医研第15回環境セミナー「生活環境におけるラドン濃度とそのリスク」  
(影響：ラドン測定法から線量、低減化まで)
3. 1991 '91ラドンシンポジウム「環境ラドン」  
(全般：測定法、濃度、性状と挙動、地震、影響)
4. 1993 岐阜医療短大シンポジウム「ラドン」  
(測定法、校正、その他)
5. 1994 放医研第22回環境セミナー「生活と放射線」  
(自然環境からの内部被曝：ラドン)
6. 1995 京大原子炉研究専門委員会「トロンとその娘核種の性状と挙動」  
(トロン：測定法、濃度、線量、特異的課題)
7. 1997 東和大学国際シンポジウム「人間環境のラドンとトロン」  
(環境と計測が中心、影響若干)
8. 1997 放医研国際ワークショップ「7のサテライト」  
(影響、動物実験、線量評価、疫学調査)
9. 1999 保物シンポジウム「専門研究会の報告」  
(影響：線量評価、害が有るや否や)
10. 1999 放医研第27回環境セミナー「ラドン—その人間への影響まで」  
(総括：測定、濃度、トピックス、線量、生物影響)

# 目 次

I. ラドン計測技術	
I-1. ラドン測定法の現状	児島 紘 ..... 1
I-2. 測定値の品質保証	山崎 敬三 ..... 9
I-3. これからのラドン計測	床次 眞司 ..... 14
特別講演「水文学におけるラドン」	堀内 公子 ..... 22
II. わが国のラドン濃度	
II-1. 屋内ラドン濃度の全国調査	真田 哲也 ..... 31
II-2. 屋内ラドン濃度の地域特性	藤元 憲三 ..... 39
II-3. 職業環境におけるラドン濃度	服部 隆利 ..... 46
II-4. 屋外のラドン濃度～人形峠を中心として	古田 定昭 ..... 54
III. 最近の話題	
III-1. 地震とラドン	安岡 由美 ..... 64
III-2. 台風とラドン	H. Climent ..... 70
III-3. 水とラドン	田阪 茂樹 ..... 76
III-4. 送電線とラドン	三枝 純 ..... 94
IV. トロン問題	
IV-1. 環境中のトロン濃度と性状・挙動	山崎 直 ..... 101
IV-2. トロンによる線量寄与	米原 英典 ..... 109
V. 被曝線量評価	
V-1. 線量評価法	下 道國 ..... 118
V-2. わが国の線量評価値	飯本 武志 ..... 124
V-3. 線量評価と生物学的パラメータ	石樽 信人 ..... 131
特別講演「ラドン吸入曝露による肺がんと喫煙等複合因子並びに低線量率による修飾」	G. Monchaux ..... 142
VI. 被曝影響	
VI-1. BEIR VIにみるラドン影響の考え方	土居 雅広 ..... 156
VI-2. 三朝地区における疫学調査	祖父江友孝 ..... 168
VI-3. 環境放射線による染色体異常	早田 勇 ..... 174
VI-4. 動物実験の現状	緒方 裕光 ..... 179

# Contents

I -1. Radon Measuring Methods – Retrospective Radon Monitoring .....	H. KOJIMA	1
I -2. Quality Assurance of Radon Measurement .....	K. YAMASAKI	9
I -3. Measurement Techniques of Radon and its Associated Radionuclides for the Future Study .....	S. TOKONAMI	14
<b>Special Lecture</b>		
Radon in Hydrology .....	K. HORIUCHI	22
II -1. Measurement of Nationwide Indoor Radon Concentration in Japan .....	T. SANADA	31
II -2. Locality of Indoor Radon Concentration .....	K. FUJIMOTO	39
II -3. Radon Concentrations in Some Workplaces .....	T. HATTORI	46
II -4. Outdoor Radon Concentration in Japan - Around Ningyo-toge .....	S. FURUTA	54
III -1. Radon Related to the Earthquake .....	Y. YASUOKA	64
III -2. Correlation Analysis Applied to Atmospheric Radon and Typhoon .....	H. CLIMENT	70
III -3. Radon Measurement in the Underground Water .....	S. TASAKA	76
III -4. Power Cable and Radon .....	J. SAEGUSA	94
IV -1. Characterization of Environmental Thoron and its Progeny .....	T. YAMASAKI	101
IV -2. Dose Contribution of Inhalation of Thoron and its Progeny to the Effective Dose to the Public .....	H. YONEHARA	109
V -1. Dose Estimation Methods for Human Exposure to Radon Decay Products .....	M. SHIMO	118
V -2. Effective Dose due to Radon in Japan .....	T. IIMOTO	124
V -3. Bio-medical Parameters in Lung Dosimetry .....	N. ISHIGURE	131
<b>Special Lecture</b>		
Radon-induced Lung Cancers in Rats : Influence of Dose-rate and of Combined Exposure to Tobacco Smoke and Other Agents .....	G. MONCHAUX	142
VI -1. Health Effects of Radon : A Review of BEIR VI Report .....	M. DOI	156
VI -2. Epidemiologic Studies in Misasa Area .....	T. SOBUE	168
VI -3. Chromosome Aberrations Induced by Environmental Radiation .....	I. HAYATA	174
VI -4. A Review of Experimental Animal Studies .....	H. OGATA	179

**座 長 一 覧** (担当セッション順)  
**List of Chair-persons (Sessional Order)**

セッションⅠ ラドン計測技術 The 1 <sup>st</sup> Session	西川 嗣雄 (福井大学) Tuguo NISHIKAWA (Fukui University)
特別講演Ⅰ Special Lecture I	中村 清 (放射線医学総合研究所) Kiyoshi NAKAMURA (National Institute of Radiological Sciences)
セッションⅡ わが国のラドン濃度 The 2 <sup>nd</sup> Session	小村 和久 (金沢大学) Kazuhisa KOMURA (Kanazawa University)
セッションⅢ 最近の話題 The 3 <sup>rd</sup> Session	坂下 哲哉 (放射線医学総合研究所) Tetsuya SAKASHITA (National Institute of Radiological Sciences)
セッションⅣ トロン問題 The 4 <sup>th</sup> Session	飯田 孝夫 (名古屋大学) Takao IIDA (Nagoya University)
セッションⅤ 被曝線量評価 The 5 <sup>th</sup> Session	甲斐 倫明 (大分看護大学) Michiaki KAI (Oita University of Nursing and Health Sciences)
特別講演Ⅱ Special Lecture II	小木曾洋一 (放射線医学総合研究所) Yoichi OGHISO (National Institute of Radiological Sciences)
セッションⅥ 被曝影響 The 6 <sup>th</sup> Session	酒井 一夫 (電力中央研究所) Kazuo SAKAI (Central Research Institute of Electric Power Industry)
総合討論 Discussion	下 道國 (放射線医学総合研究所) Michikuni SHIMO (National Institute of Radiological Sciences) 藤元 憲三 (放射線医学総合研究所) Kenzo FUJIMOTO (National Institute of Radiological Sciences)



執筆者一覧 (五十音順、所属は1999年12月2日現在)  
**List of Contributors (The Order of the Kana Syllabary)**

石樽 信人 Nobuhito ISHIGURE	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences	床次 眞司 Shinji TOKONAMI	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences
飯本 武志 Takeshi IIMOTO	東京大学 The University of Tokyo	服部 隆利 Takatoshi HATTORI	電力中央研究所 Central Research Institute of Electric Power Industry
緒方 裕光 Hiromitsu OGATA	国立公衆衛生院 National Institute of Public Health	早田 勇 Isamu HAYATA	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences
クレモン エレン Helen CLIMENT	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences	藤元 憲三 Kenzo FUJIMOTO	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences
児島 紘 Hiroshi KOJIMA	東京理科大学 Science University of Tokyo	古田 定昭 Sadaaki FURUTA	核燃料サイクル機構 Japan Nuclear Cycle Development Institute
三枝 純 Jun SAEGUSA	原子力研究所 Japan Atomic Energy Research Institute	堀内 公子 Kimiko HORIUCHI	大妻女子大学 Otsuma Women's University
真田 哲也 Tetsuya SANADA	日本分析センター Japan Chemical Analysis Center	モンシユー ジョルジュ Georges MONCHAUX	フランス原子力庁 CEA
下 道國 Michikuni SHIMO	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences	安岡 由美 Yumi YASUOKA	神戸薬科大学 Kobe Pharmaceutical University
祖父江友孝 Tomotaka SOBUE	国立がんセンター National Cancer Center Research Institute	山崎 敬三 Keizo YAMASAKI	京都大学原子炉研究所 Research Reactor Institute of Kyoto University
田阪 茂樹 Shigeki TASAKA	岐阜大学 Gifu University	山崎 直 Tadashi YAMASAKI	中部電力 Chubu Electric Power Company, Inc.
土居 雅広 Masahiro DOI	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences	米原 英典 Hidenori YONEHARA	放射線医学総合研究所 National Institute of Radiological Sciences

## ラドン測定法の現状—Retrospective Radon Monitoring

児島 紘

東京理科大学 理工学部

### Radon Measuring Methods—Retrospective Radon Monitoring

Hiroshi KOJIMA

Science University of Tokyo

2641, Yamasaki, Noda-shi, 278-8510, Japan

#### Abstract

One of the major difficulties in carrying out epidemiological surveys on indoor radon is accurately assessing individual radon exposures. For estimating the historical radon exposures for few decades, several researchers have presented methods for the measurement of a long-lived radon daughter  $^{210}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Po}$ ) in household objects. The methods are called as a retrospective radon monitoring. There are two kinds of method in the retrospective monitoring. One is the volume trap technique in which the  $^{210}\text{Po}$  activity deposited in porous materials like spongy materials used for mattresses and cushions is measured. The other is the surface trap technique in which the surface activity of  $^{210}\text{Po}$  trapped by  $\alpha$ -recoil driven implantation on the surface of mirror and glass in household is counted.

In this report, I will describe both measuring principles of methods of volume and surface traps and survey about several sources of error to cause by applying both techniques to exposure assessment in indoor environment.

#### 1. はじめに

ラドン測定法を得られるデータ、特に時間分解能や積算期間をもとに考えると、Active法とPassive法に分けられる。ラドンデータの用途、特に被曝線量の評価という観点からは長期間の積算値が得られるpassive法が適切であり、実際に大規模の調査研究に用いられている。このpassive法で得られる積算期間は環境中のラドン濃度や用いる検出器にも依存するが、数ヶ月程度であろう。線量評価に最終的に必要な期間は人間の一生であるので、数十年の期間の積算ラドン濃度、実際にはラドンの短寿命娘核種の濃度が求められれば、疫学データとの直接比較が可能になる。このような観点から長期間のラドンの積算値を求めようとする、Retrospective Radon Monitoringの研究がここ10年来盛んに行われるようになった。本報告ではこのRetrospective Methodに着目し、研究の現状について述べてみたいと思う。

過去数十年間の被曝の経歴を量的に求めるために着目されている核種はラドンの長寿命娘核種、 $^{210}\text{Pb}$  (半減期約22年)である。ラドン娘核種被曝を考えると、土壌中や建材中に存在する $^{226}\text{Ra}$ は発生

源、それから生じる気体のラドン( $^{222}\text{Rn}$ )は地中や建材中から屋内への運搬体、その短寿命娘核種は線量寄与核種、そして長寿命ラドン娘核種は線量寄与核種のトレーサーとしてそれぞれの役割を果たしていると言える。このトレーサーとして $^{210}\text{Pb}$ が着目されている訳である。

Retrospective methodでは $^{210}\text{Pb}$ が短寿命娘核種の時と同じ場所に固定されている必要がある。そのためにそれら娘核種を長期間一定の場所に保持している適切なトラップ体を探す必要がある。なお、計測上の都合から実際に計測されるのは $^{210}\text{Pb}$ ではなく、後続アルファ線放出核種の $^{210}\text{Po}$ (半減期138日)である。では、この $^{210}\text{Po}$ が含まれている、または沈着している物体(トラップ体)として何を測定すればよいか。これについては我々人間の一生のうちに被曝する線量の評価しようとするのであるので、我々が生活している周囲にある物や、場合によっては人間自身が対象になる。人間自身に含まれる $^{210}\text{Po}$ が評価できれば非常に都合が良いことになる。実際に人間の血液、毛髪、排泄物中の $^{210}\text{Po}$ の測定が試みられた。しかし、短寿命ラドン娘核種の影響が大きく、過去の被曝線量のモニターとして実用的ではないことが分かった。一方、人間の骨は長寿命核種のトラップ体として適切であることは被曝した鉱夫についての研究から分かっている。しかし、人間の骨を入手することは容易でなく、また倫理的にも問題があり、人骨をトラップ体として用いることは広範囲の調査には実際上無理がある。

人間自身は適切でないので、人間の周囲に存在し、 $^{210}\text{Po}$ を保有する物体を選ばざるをえない。例えば、居間や寝室に長期間置かれているガラス、木製品、ソファーなどに用いられているスポンジなどが候補になる。それらを分類するとスポンジの空間、結局はスポンジ組織に沈着した核種を計る体積トラップ法とガラス製品などに沈着、または $\alpha$ 崩壊時にガラス内部に埋め込まれた核種を計測する表面トラップ法になる。

## II. 体積トラップ法

この方法では木材やスポンジなどの多孔性の物質をトラップ体とする。それら多孔性の物質をトラップ体として用いる利点は、ラドンの半減期に比べて拡散長が長くなるので、それら物質の内と外の濃度差がほとんどなく、常に物質内の濃度が環境の濃度と等しいと仮定できる点である。

体積トラップ体として我々の周囲に存在する物として木材家具が考えられる。家具は長期間にわたり屋内に置かれることが多く、また、それを購入した年も推定しやすいため、被曝期間を正確に推定しやすいという利点がある。しかし、 $^{210}\text{Pb}$ のバックグラウンドレベルが木材によりばらつきが大きく、実用にならなことが分かった<sup>1)</sup>。体積トラップ体としてはスポンジのような物質の方が実用的であろう。

Oberstedt<sup>2)</sup>はマットレスやクッションに用いられているポリエステルのスポンジを体積トラップ体として用いる可能性を検討した。堅さ(密度)の異なる4種類のスポンジをラドンの高濃度環境で曝露し、7.8~78kBq/m<sup>3</sup>yに相当する被曝量を与えた。その後、自然環境濃度に近い20Bq/m<sup>3</sup>以下の環境に138日( $^{210}\text{Po}$ の1半減期に相当)以上放置する。各スポンジを化学処理した後、 $^{210}\text{Po}$ の計測を行った。その結果、被曝量(被曝中のラドン濃度の測定から推定)とクッション中の $^{210}\text{Po}$ (または $^{210}\text{Pb}$ )と間に直線関係が得られた(Fig.1)。ただし、その関係はクッションの堅さに依存するが、それについては補正することが可能であった。この方法によると20Bq/m<sup>3</sup>のラドン濃度で20年間被曝した場合、30%程度の不確か度で過去の被曝量を推定できる事になる。

この体積トラップ法では化学処理を要するためトラップ体を壊さないと計測ができないという欠点がある。

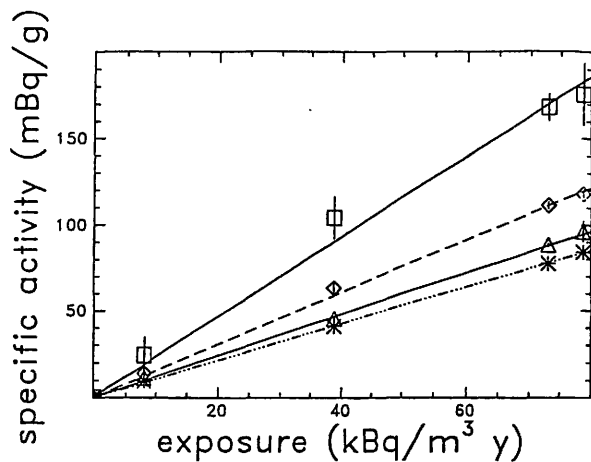


Fig. 1 Specific sample activity as a function of the radon exposure.  
Different symbols refer to different sample densities.

あり、広範囲の調査研究に適してない。上記のような予備実験的な研究はなされているが、今日まで実際に線量評価に応用された例は無いようである。

### Ⅲ. 表面トラップ法

表面トラップ法の原理をFig. 2に示す。屋内に存在するラドンから崩壊により生じた短寿命娘核種は金属原子であり、それら核種の一部は室内に置かれた物体にプレートアウトにより沈着する。ガラスのように堅い表面をもつ物体に沈着した娘核種の一部は $\alpha$ 崩壊( $^{218}\text{Po}$ や $^{214}\text{Po}$ )時にその反兆エネルギーにより、物体中に入り込む。その深さは表面から $0.1\ \mu\text{m}$ 程度である。埋め込まれた短寿命娘核種はその場所に長期間、長寿命娘核種に崩壊するまで留まる。この長寿命娘核種の $^{210}\text{Pb}$ の蓄積をもとに、ラドン短寿命娘核種による被曝経歴を推定しようとするものである。

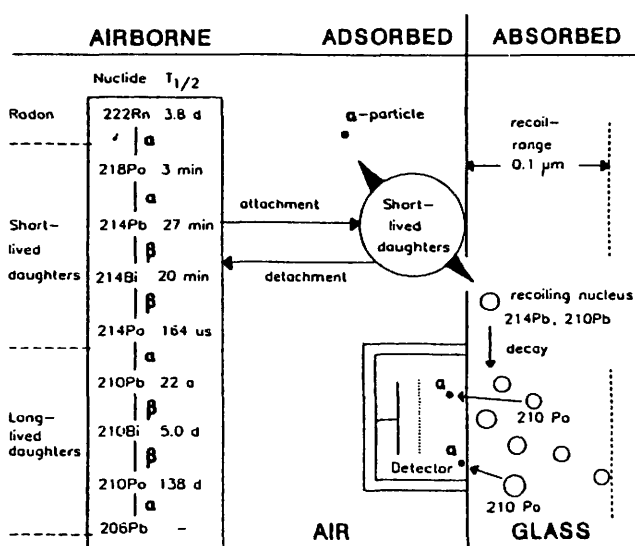


Fig. 2 A schematic illustration of surface trap technique.

実際の計測は、その核種の後続核種で $\alpha$ 放射体の $^{210}\text{Po}$ の半減期が138日と $^{210}\text{Pb}$ と比べて短く、近似的に両者の放射能平衡が成り立っていると取り扱えるので、 $^{210}\text{Po}$ からの $\alpha$ 線を計測する。なお、表面から $0.1\ \mu\text{m}$ の深さは $^{210}\text{Po}$ からの $\alpha$ 線が表面から出られる厚さである。埋め込まれた $^{210}\text{Po}$ からの $\alpha$ 線を計測するため表面にCR-39を密着して計測<sup>3, 4, 5, 6)</sup>、表面からの $\alpha$ 線を半導体検出器や<sup>7)</sup>、パルス型電離箱<sup>8)</sup>で受けるなどの方法が採用されている。

この表面トラップ法は現実的な方法として予備的ではあるが線量評価に応用され、またその方法の特質についても多くの研究がある。次に、表面トラップ法の問題点およびその対策の現状について述べる。

### 1. 娘核種のプレートアウト

表面トラップ法では空气中でラドンから崩壊した短寿命娘核種がガラス表面などに沈着し、その後表面上の娘核種が $\alpha$ 崩壊し、その時に反兆エネルギーにより娘核種がガラスなどに埋め込まれる事を仮定している。このように、埋め込まれた娘核種から空气中のラドン濃度を推定するためには、まず、つまり空气中でのラドンとその娘核種との関係、平衡比と室内の娘核種のうちどの程度が表面に沈着するか、つまり沈着速度を見積もらなくてはならない。平衡比はエアロゾルの濃度、粒径分布などに依存する。また、沈着速度は娘核種が存在した空气中のエアロゾルの濃度と粒径分布、部屋の表面積対容積比、換気率の大小、など部屋の構造や住人の生活習慣に大きく依存する。また実際問題として、エアロゾルや換気の過去の状態を正確に推定することは不可能であり、この表面トラップ法の欠点の本質的な問題である。Hopke<sup>9)</sup>やKnutson<sup>10)</sup>のモデルを用い、標準的な室内を想定してラドン濃度と埋め込まれた長寿命娘核種との関係を求める例が多い。

Fitzgerald<sup>4)</sup>はガラス中の $^{210}\text{Po}$ 測定から空气中のラドン濃度の見積もる場合のプレートアウト効果を明確にするため、Fig. 3に示す装置を開発した。その装置はA面を着目するガラスに密着させて使用する。 $\alpha$ 線を計測するために、A,B,Cのそれぞれの面にCR-39を張り付けてある。面Aは埋め込まれた $^{210}\text{Po}$ からの $\alpha$ 線、面Bはpassive法によるラドン計測法と同様に、その閉鎖された空間内でラドンから崩壊した

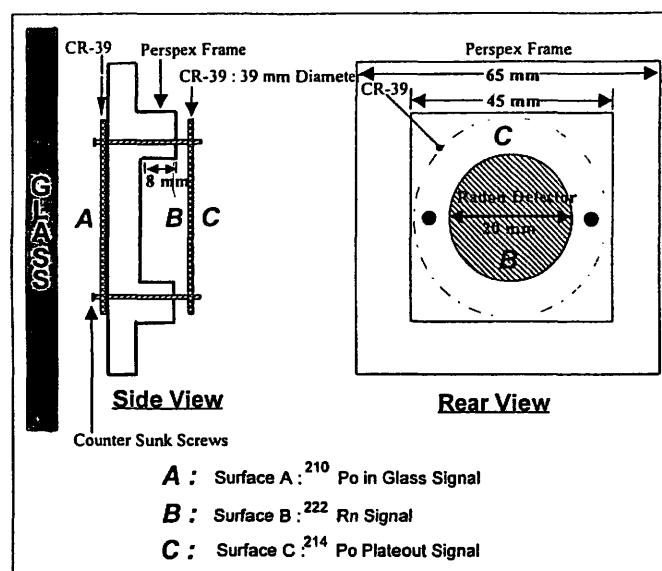


Fig. 3 Schematic of the final detector configuration used in the field trials.

短寿命娘核種からの $\alpha$ 線、室内空気に直接さらされているC面は空気中の短寿命ラドン娘核種からの $\alpha$ 線、を計測できる。これを用いると、ガラス中の $^{210}\text{Po}$ 濃度、空気中のラドン濃度、空気中のラドン娘核種濃度の情報が同時に得られる。この装置を数軒の家屋に応用した予備実験では、 $^{210}\text{Po}$ からラドン濃度の推定において、プレートアウトの差により、6倍程度の差が生ずると報告している。他のこれに関する研究としてSamuelsson<sup>11)</sup>は2倍程度の差で見積もることができると報告している。

## 2. ガラス表面の汚れと洗浄効果

屋内に置かれたガラス製品の表面は長期間の間にダストの蓄積などで汚れ、時には居住者がそれらを洗浄する可能性もある。そのような汚れや洗浄が $^{210}\text{Po}$ からのラドンの推定にどの程度の誤差を招くのか推定する必要がある。ガラス表面にダストの層ができると、その層の表面に沈着したラドン娘核種は反射によりガラス内部に侵入できず、ダスト層でエネルギーを失い、その層に止まってしまう可能性がある。そのような場合には洗浄により娘核種は取り除かれる。

Livelyら<sup>7)</sup>はガラス表面に沈着した娘核種と埋め込まれた娘核種の割合にガラス表面の汚れ・洗浄がどの程度関係するかを調べる実験を行った。チェンバー(Revigator)と家屋内で実験を行った。両方にガラスを入れ、曝露したが、短寿命娘核種用に24時間、長寿命娘核種用に1年間曝露した。なお、ガラスは、洗浄したガラスと表面に薄い膜を乗せたガラスの2種類を用意した。曝露後、洗浄により取り除かれた割合を測定した結果をTable 1に示す。短寿命娘核種の $^{218}\text{Po}$ についてはガラスの面が清浄であっても汚れていても、90%以上が除去された。まだ、ガラス内に埋め込まれた娘核種はほとんど無い事を示している。 $^{214}\text{Po}$ の場合、埋め込まれる核種の割合が増えて、除去率は低下するが、清浄と汚れたガラス面の顕著な差は見られない。長寿命娘核種の $^{210}\text{Po}$ の場合、清浄なガラス面の場合、5%程度が取り除かれる。つまり、殆どの $^{210}\text{Po}$ は埋め込まれた状態にあると言える。一方、薄い膜があるガラスの場合、除去率は30%と高い値であった。ただし、埋め込まれた $^{210}\text{Po}$ の原子数はガラス表面に膜の有無に関わりなく同じ程度であった。モデル計算から除去率が50%以下になることは考えにくく、この結果は埋め込まれないで沈着している状態の $^{210}\text{Po}$ が清浄な面の場合には離れやすいと解釈できる。この研究の結果からは薄い膜(汚れ)の有無は埋め込まれた $^{210}\text{Po}$ の割合には影響しないことを示している。

Table 1 Results from experimental and theoretical exposure vs. activity calculations.

Atmosphere	Sample #	Experimental Slope <sup>a</sup> Ky m <sup>-1</sup>	Percent Coefficient of Variation <sup>b</sup>	R <sup>2</sup>	Theoretical Slope <sup>c</sup> Ky m <sup>-1</sup>
Revigator	21	1.7 ± 0.2	30	0.94	1.4 ± 0.3
Mixed-air	9	0.4 ± 0.1	30	0.91	0.4 ± 0.2
EPALV chamber	3	0.5 ± 0.3	5	0.99	0.3 ± 0.2
House	6	0.6 ± 0.2	70	0.75	—
Adjusted house	5	—	65	0.99	0.3 <sup>d</sup>

一方、Johansson<sup>12)</sup>もエアロゾルの濃度レベルが一般家屋程度に設定した実験施設において汚れ・洗浄効果の実験を行った。その結果は清浄なガラスの場合<sup>210</sup>Poの32%が、汚れた場合には49%が除去されるというものであった。Liveryらの結果と同様にガラス表面に沈着した娘核種のうち50%が埋め込まれるという仮定は成り立たないことが分かった。彼らはこの実験結果を汚れた表面の場合には埋め込まれる娘核種の割合が減少すると解釈した。

このようにガラス表面の汚れの影響はダスト層の厚さに依存し、実際上どのように補正すべきか明確になっていないと言える。

### 3. バックグラウンドの影響

表面トラップ法で検出される<sup>210</sup>Poの濃度は非常に低いため、ガラス自身に含まれている<sup>210</sup>Poの濃度が無視できない。また、このバックグラウンドの値がガラスによって異なり、ガラスの種類によっては埋め込まれた<sup>210</sup>Poの濃度と同レベルになる可能性がある。

以上の欠点を補うためにFalkら<sup>13)</sup>はガラスのバックグラウンドと埋め込まれた<sup>210</sup>Poからの $\alpha$ 線を分別する方法を提唱している。着目するガラス表面に2種類の $\alpha$ トラック検出器、CR-39とLR-115を密着させて用いる。これはMETRO-detectorと呼ばれている。反兆により埋め込まれた<sup>210</sup>Poは表面から0.1 $\mu$ m程度の深さに存在するので、それからの $\alpha$ 線は約5MeVのエネルギーを持ち、それより深い場所に存在するバックグラウンドとしての<sup>210</sup>Poからの $\alpha$ 線より大きい。 $\alpha$ トラック検出器の感度はCR-39は1MeV以上、LR-115は1.2~4.8MeVであるので、CR-39はバックグラウンドと信号をLR-115は主にバックグラウンドを計数ことになる。両検出器からの計測値の差をとればバックグラウンドの補正が可能になる。この方法により、1Bq/m<sup>2</sup>以下の低濃度の<sup>210</sup>Poを評価できるようになった。

Trottiら<sup>5)</sup>はCR-39をスペクトル解析に用いてスペクトル解析を行い、検出された<sup>210</sup>Poのエネルギー分布からバックグラウンドを補正する方法を用いている。

このようにバックグラウンドの問題は計測上の工夫により解決できるであろう。

### 4. 試料の代表性

過去のラドン被曝の経歴を知るために室内に置かれたガラス製品の極く小面積の<sup>210</sup>Poを計数して、はたしてガラス製品が置かれていた室内環境を代表しているかという疑問が生じる。ガラス製品が置かれた場所によっては、娘核種の沈着速度が局所的な条件、特にエアロゾル条件、熱的な流れ、ガラス周辺の電場などに依存するので、得られたデータの代表性が乏しくなる。

Samuelsson<sup>11)</sup>は室内の全面が開けた壁に置かれたガラス製品(OP1,OP2)と階段下に置かれたガラス製品や(B1)や引っ込んだ場所に置かれた本棚のガラス(B2)をトラップ体として用い、<sup>210</sup>Pb(<sup>210</sup>Po)と被曝量の関係を求めた(Fig. 4)。この図から分かるように、それぞれのトラップ体において被曝量と<sup>210</sup>Pbの間にほぼ直線関係が得られた。しかし、単位面積当たりの<sup>210</sup>Pbの放射能は、全面が開けた場合と引っ込んだ場所とでは2倍位の差があることが分かった。このようにガラス製品がどのような場所に置かれたかにより、<sup>210</sup>Poの計数値の違いが生じる。それゆえ、ガラス全面が開けた場所に置かれたガラス製品をトラップ体として選ぶ、念のため室内にある複数のトラップ体で計数する、などの注意を払うことにより、2倍以内の精度で被曝量を推定できると推定している。一般に、トラップ体として適しているのは壁に掛けられた鏡、写真や絵画のガラス枠などで、避けなくてはならない物は窓ガラスや奥まった場所に置かれがちな本棚のガラスである。

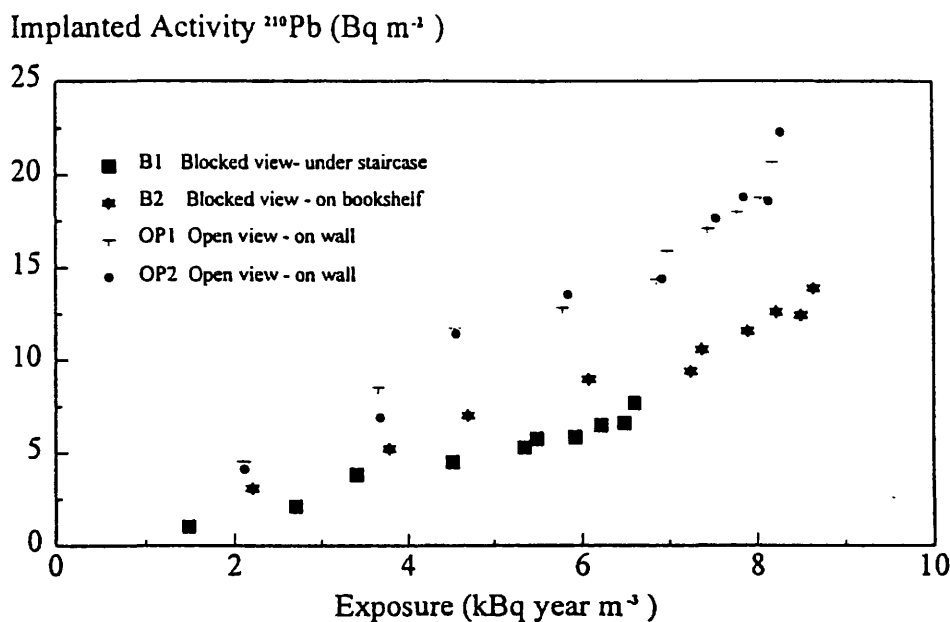


Fig. 4 The growth of implanted <sup>210</sup>Pb in four different framed sheets in a radon dwelling for 3.5 y.

以上の他にこの方法で注意しなければならない点はガラス製品などのトラップ体が室内に置かれていた期間の推定である。この年数は居住者に聞いて決めるが、往々にして居住者の勘違いがある。その観点から購入した年がはっきりした物、例えば結構記念の写真のガラス枠などがよい。Mahaffeyら<sup>3)</sup>は年数推定の不確かさを、年数に応じ誤差を含めて線量評価することを提唱している。

#### IV. 終わりに

過去数十年間の被曝経歴をトラップ体の長寿命娘核種<sup>210</sup>Pb(<sup>210</sup>Po)を計数する方法、Retrospective Radon Monitoringについて述べた。この方法で精度良く被曝線量を評価できれば、その値は数十年間の積算値であるため疫学データとの直接比較ができるという利点がある。

トラップ体として体積と面積トラップ体があるが、現在ほとんどの研究者はガラス製品などに埋め込まれた面積トラップ体を用いている。その面積トラップ体は体積トラップ体のように物体を壊さなくても計測ができるという利点があり、大規模研究に適している。その方法にしても上記のように多くの問題点が含まれている。各研究者の結果をみるといずれも<sup>210</sup>Pb(<sup>210</sup>Po)と被曝量の関係は直線関係が得られているが、その比例係数(校正係数)を一義的に決めるのに苦労しているのが現状である。しかし、この分野の研究は非常に活発であり、いずれ解決するであろう。

#### 参考文献

- 1) J. Paridaens and H. Vanmarcke : *Health Physics*, **76**, 657-663(1999)
- 2) S. Oberstedt and H. Vanmarcke : *Health Physics*, **70**, 222-226(1996)
- 3) J. A. Mahaffey, M. A. Parkhurst, A. C. James, F. T. Cross, M. C. R. Alavanja, J. D. Boice, S. Ezrine, P. Henderson and R. C. Brownson : *Health Physics*, **64**, 381-391(1993)



- 4 ) B. Fitzgerald and J. P. McLaughlin : *Environmental International*, **22**, S845–855 (1996)
- 5 ) F. Trotti, P. Mozzo, A. Temporin, M. Lanciai, F. Predicatori, F. Righetti and A. Tacconi : *Environmental International*, **22**, S863–869 (1996)
- 6 ) R. Falk and I. Ostergren : "*Indoor Radon Exposure its Health Consequences*", edited by J. Inaba, H. Yonehara and M. Doi, Kodansha Sci. Ltd. 11–18 (1999)
- 7 ) R. S. Lively and D. J. Steck : *Health Physics*, **64**, 485–490 (1993)
- 8 ) C. Samuelsson and L. Johansson : *Rad. Prot. Dos.*, **45**, 123–126 (1994)
- 9 ) E. O. Knutson, : "*Radon and its Decay Products in Indoor Air*" , edited by Nazaroff and Nero, John Wiley and Sons Inc., 491–504 (1988)
- 10) P. K. Hopke, B. Jensen, Li. Chih–Shan, N. Montassier, P. T. Wasiolek, A. J. Cavallo, R. H. Socolow, and A. C. James : *Environ. Sci. Technol.*, **29**, 1359–1365 (1995)
- 11) C. Samuelsson : *Environmental International*, **22**, S839–843 (1996)
- 12) L. Johansson, M. Wolff and C. Samuelsson : *Rad. Prot. Dos.*, **56**, 141–143 (1994)
- 13) R. Falk, H. Mellander, L. Nyblom and I. Ostergren : *Environmental International*, **22**, S857–861 (1996)

## 測定値の品質保証

山崎 敬三

京都大学 原子炉実験所

### Quality Assurance of Radon Measurement

Keizo YAMASAKI

Research Reactor Institute of Kyoto University

Noda, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan

#### Abstract

Calibration and quality control are important aspects of any radon and radon progeny measurement program. The only primary standards are the vials of  $^{226}\text{Ra}$  solution prepared by the National Institute of Standards and Technology (NIST) in USA. Radon calibrations are this based on laboratory standards that are referred to as being traceable to NIST. Calibration of radon counter is accomplished by transferring a known amount of radon gas from solution to the counting system. There are presently no standards for the short-lived radon progeny. Measurements of the progeny must be made with device which have meticulously calibrated flow rates, frequent efficiency measurements of the counting device and replicate samples in order to ensure stability.

Quality assurance should consists of some form of standard samples, along with duplicates and blanket samples. Results on standards are a measure of the accuracy of the system and results on duplicates are measure of the precision and reproducibility. One practical approach to calibration is to establish a room or chamber and attempt to maintain a fixed radon concentration. It is easier to maintain a constant radon atmosphere, than a constant radon progeny atmosphere in a room-sized chamber, particularly when sampling.

#### I. はじめに

ラドン・トロンの存在は放射線・放射能の発見からまもなく確かめられた<sup>1)</sup>。鉱山(洞穴)内や一般環境中での存在が確認されてから<sup>1)</sup>、健康影響、環境放射能、あるいは大気電気現象と関連づけて細々と研究されてきた<sup>2)</sup>。ところが、UNSCEARの1977年報告において、臓器別線量としてラドンとその娘核種の一般公衆の吸入による肺線量が大きいことが示された<sup>3)</sup>。さらに同1982年報告において、実効線量当量が入り入れられ、ラドンとその娘核種の被ばく線量が自然放射線による被曝線量の半分を占めることが示された<sup>4)</sup>。これを契機に、多くの研究者の注目を集めることになり、多くのグループが種々の測定技術を駆使して、地方レベルあるいは国レベルで、屋内外環境のラドン濃度調査を行ってきた<sup>4, 5, 6)</sup>。

ところが、ラドン濃度測定に関しては、基準的な測定方法(測定器)や測定器の校正方法が確立しておらず、各グループはそれぞれ独自の方法を開発し、それぞれの事情に応じた校正方法を適用してきた。このため、グループ間でのデータのばらつきや偏りが大きく、データ相互間の信頼性を互いに確認できない状況にあった。このような状況を危くする人々によって国内あるいは国際レベルでの相互比較・相互校正が数多く行われてきた<sup>7,8,9,10,11,12,13,14,15,16,17)</sup>。

本稿では、ラドン測定値の品質保証のために行われてきた取り組みについて概説する。

## II. ラドン測定の目的と要求される精度

屋内外環境における空気中のラドン・トロン及びそれらの娘核種濃度の測定は、多くの研究者並びに実務者によって行われている。その目的は大きく分けて、①肺ガン発生に対する健康影響評価、②地理学的(地質学的)高濃度地域の特定及び③ラドンとその娘核種の生成・消滅並びにそれらの動態に関する研究に分類される。それぞれ測定目的に応じ、測定器の特長を生かした測定方法が適用されている。即ち、①と②の目的に対しては、広域かつ長期間にわたる平均濃度が要求されるため、安価で取扱いの簡単なパッシブ型測定器(固体飛跡検出器を用いたベア法、カップ法、静電捕集法等)が主に用いられる。③の目的に対しては、濃度の時間変動や性状に関する情報を得ることができるアクティブ型測定器が主に用いられるが、一般に高価であるため広域測定には適さない。

ラドン測定に際して必要とされる精度・確度は、不確かさが入ってくる度合いが異なるため、測定の目的によって変わってくる。即ち、①と②に対しては20%程度の精度で十分であるが、③に対しては5%程度の精度と確度が要求される。

## III. ラドン測定器の校正

ラドン濃度の測定法には大きく分けてアクティブ法とパッシブ法がある。さらにアクティブ法の中には、電離箱法、通気式電離箱法、シンチレーションセル法、2段フィルタ法、通気式静電捕集法、液体シンチレーション法、活性炭法等がある。またパッシブ法の中にはベア法、カップ法、静電捕集法、活性炭法等がある。一方、ラドン娘核種濃度の測定法には、グロスアルファ線の3回測定法やアルファ線スペクトルの2回測定法を用いたディケイ法やグロスアンドディケイ法などがある。

多くの測定法があり、測定器の種類のみならず個々の測定器でも得られる情報は異なっており、濃度の絶対値を求めるためには換算係数が必要となる。絶対測定値が可能な場合は別として、測定器の校正により換算係数(校正定数)が決定される。通常、厳密な意味での校正は、国家(国際)標準とトレーサビリティの確立した標準器(放射能)を用いて行われるべきものである。しかし、ラドンとその娘核種に関しては、そのような標準は存在しない。かろうじて、NISTで標準ガンマ線源として値付けされたアンブル入りのラジウム溶液についてはトレーサビリティが確立しているものと考えられる。それらから得られるラドンガスについては、バブリングや移し換え等のいくつかの操作を必要とするため、緊密なトレーサビリティを維持しているとは言い難い。注意して操作すれば、ラドン測定器については5%以上の精度での校正が可能と思われるが、熟練を要する。標準ラジウム溶液の入手が困難な現在では、この種の校正が出来る機関は少なく、このような方法で校正された機関の測定器(日本では電離箱を用いることが多い)を基準として、相互比較を行う2次校正により値付けしていることが多い。

ラドン娘核種測定器の校正については、サンプリングと放射能測定に分けられる。サンプリングに関しては、捕集フィルタ及びフィルタホルダの選定、サンプリング流量・時間、流量計の種類と値付け、捕集ポンプの選定等について注意を払う必要がある。また捕集された放射能の測定に関しては、検出器の計数効率の決定が最も重要となるが、標準ラドン娘核種などは存在しない。このため、ラドンの場合よりさらに悪い状況で、ウランや超ウラン核種をステンレス板等電着または蒸着したりファレンスアルファ線源を模擬線源として校正を行うか、フィルタの捕集面積と検出器の幾何学的配置から計数効率を計算またはシミュレーションにより求めており、トレーサビリティを云々する状況ではない。さらに、これすら困難な場合には、メーカーの取扱いマニュアルの記載事項に頼らざるを得ない場合もある。以上、ラドンとその娘核種測定器の校正に関しては、国際基準と言ったものは存在せず、各機関の事情により各自の方法で行っているのが現状である。

#### IV. 相互比較(相互校正)の必要性和意義

前述のようなラドンとその娘核種測定器の校正のもとで、ラドン関連の測定業務並びに研究に従事している人々は測定値の確かさあるいは信頼性について不安を抱いている。特に、従事し始めた人々にとってこの不安は大きい。このような状況のもとで、共通の場で多数の機関が同時並行して同じ量測定する相互比較(相互校正)は重要である。特に少数ではなく多数の機関が参加して行われる相互比較(相互校正)では、濃度の真値は不明でも、測定値の平均値は真値に近いことが期待される。従って、各自のデータの位置づけが判明し、平均値に近い場合には測定値に対する自信が持てるようになる。また、不幸にして平均値から外れた場合でも、その問題点を探る検討材料を得ることになるうえに、他の機関から適切な助言が得られるはずである。相互比較の効果をより高めるためには、測定の間が一様で安定していること、測定がブラインド測定であること、さらには測定後、結果の相互批判や検討が自由にできる雰囲気と十分な時間が必要である。相互比較(相互校正)は、国内レベルに留まらず国際レベルで行うことで、その効果はより大きく確かなものとなるし、さらにそれらを反復継続して実施することは、相互理解と信頼性を高めるためにも必須であると同時に測定値の品質保証の基盤となるものである。

#### V. 日本におけるラドン測定の品質保証の現状

相互比較(相互校正)を効率的に行うには、ラドンテストチャンバーまたは外気の影響の少ない大きな部屋が必要である。日本においては、現在のところ、前者の例として核燃料サイクル開発機構人形峠環境技術センターの測定器校正用ラドン標準チャンバー(体積約 $8\text{m}^3$ )があり、後者の例としては、京都大学原子炉実験所臨界集合体実験装置棟(CA)の炉室(体積約 $6 \times 10^3\text{m}^3$ )がある<sup>18, 19)</sup>。特に、CA炉室はコンクリート壁で気密性が高いうえに高性能フィルタを介した環境換気系を有しており、室内エアロゾル濃度を $1 \times 10^3\text{cm}^{-3}$ とすることができ、センコウの煙などの人工エアロゾルの投入が容易である。このため、ラドン濃度を $1 \times 10^2 \sim 6 \times 10^2\text{Bqm}^{-3}$ 、平衡係数を0.3~0.9、非付着成分比を0.01~0.3程度まで制御できる等の特長を有する。さらに、共同利用施設であるため多くの研究者を受け入れることができるため、国内レベル(一部外国を含む)での相互比較(相互校正)が、北海道から沖縄に及ぶ全国約30機関の参加で、10数年間にわたり多数回実施されてきた<sup>8, 9, 11, 12)</sup>。この間主要測定項目は、当初のラドン濃度とラドン娘核種平衡仮定濃度から娘核種個別濃度(全成分、非付着成分)と平衡等価娘核種濃度、さらには娘核種付

着成分の粒径分布へと進展してきた。

日本のラドン関連測定値の技術レベルとしては、ラドン濃度 $5 \times 10^2 \text{Bqm}^{-3}$ の安定した測定場という条件付きではあるが、次の程度と考えられる。

- (1)ラドン濃度は、アクティブ法で5～15%、パッシブ法で5～35%のばらつきとなっている。パッシブ法には改善の余地がある。
- (2)ラドン娘核種の平衡等価濃度については10～15%、同全成分個別濃度については10～25%、同非付着成分個別濃度については15～30%のばらつきとなっている。フィルタの荷電状態等による偶然誤差と計数効率や流量測定等による系統誤差に改善の余地がある。
- (3)ラドン娘核種の粒径分布やラドン散逸率等に関しては、個々の測定に関する検討を行っている段階で、全体としての信頼性を云々する状況にはない。

## VI. 最後に

現在、放医研で動物のラドン曝露実験を目標としたラドンチャンバーの設置が進められている。諸外国に比べて約30年遅れて、やっと日本での本格的ラドンテストチャンバーの出現であり、多くのラドン研究者が待ち望んでいた設備である。しかし、昨今の厳しい国家経済の中で、トレーサビリティの確立、十分な人数のオペレータの確保等、最高レベルの信頼性と品質保証のために解決すべき課題は多い。さらに、設置完了後の利用については、国内外の大学、研究所並びに関連企業に対し、共同利用研究などの開かれた形での運営が望まれる。

放医研のラドンチャンバーが日本のラドン研究の信頼性に大きく貢献されることを期待している。

## 参考文献

- 1) 阪上正信: ラドン族放射能とその生体影響に関する調査研究報告. (財)喫煙科学研究財団(1992)
- 2) B. Hultqvist: Studies on naturally occurring ionizing radiation. *Kungl. Svenska Vetenskapsakademiens Handlingar* (1956)
- 3) UNSCEAR: United Nations, New York (1977)
- 4) UNSCEAR: United Nations, New York (1982)
- 5) UNSCEAR: United Nations, New York (1988)
- 6) UNSCEAR: United Nations, New York (1993)
- 7) 川野実, 他: 環境放射能測定法に関する研究. KURRI-TR-107, 134 (1972)
- 8) 阿部史朗, 他: ラドンとラドン娘核種測定の共同比較. 保健物理, **25**, 373-384 (1990)
- 9) 飯田孝夫, 他: パッシブ法によるラドン測定の国内共同比較実験. 保健物理, **29**, 179-188 (1994)
- 10) 下道國, 他: 米国におけるラドン共同比較実験. 保健物理, **32**, 285-294 (1997)
- 11) K. Yamasaki, *et al.*: Intercomparisons of Current Measurements of Radon and its Progeny in Japan. *Radiat. Prot. Dosim.*, **45** (1/4), 81-84 (1992)
- 12) H. Kojima, *et al.*: Intercomparisons of Active Instruments for Radon and its Decay Products in Japan. *Proceedings of Asia Congress on Radiation Protection Held at Beijing, China, Oct.18-22*, 630-633 (1993)
- 13) S. B. Solomon, *et al.*: OECD/NEA Radon Intercalibration and Intercomparison Programme. Pacific Region

Intercomparison Programme, ARL/TR068(1985)

- 14) J. C. H. Miles and J. Sinnaeve : Results of the second CEC intercomparison of active and passive dosimeters for the measurement of radon and radon decay products. CEC (1986)
- 15) A. Reineking *et al.* : Intercomparison of Methods for Investigating the Physical Characteristics of Radon Decay Products in the Indoor Environment. *Radiat. Prot. Dosim.*, **45** (1/4), 41-46 (1992)
- 16) P. K. Hopke *et al.* : The Measurement of Activity-weighted Size Distributions of Radon Progeny: Methods and Laboratory Intercomparison Studies. *Health Physics*, **63**, 560-570 (1992)
- 17) Keng-Wu Tu : International Intercalibration and Intercomparison Measurements of Radon Progeny Particle Size Distribution. EML-589 (1997)
- 18) 古田定昭, 他 : 測定器校正用ラドン標準チャンバの製作. *Radioisotopes*, **48**, 725-731 (1999)
- 19) 山崎敬三, 他 : 原子力施設内空气中的ラドンとその娘核種の性状と挙動. *保健物理*, **22**, 236-240 (1987)

## これからのラドン計測

床次 眞司

放射線医学総合研究所 人間環境研究部

### Measurement Techniques of Radon and its Associated Radionuclides for the Future Study

Shinji TOKONAMI

National Institute of Radiological Sciences

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

#### Abstract

The following problems on radon face us : establishment of the dose assessment, exposure due to thoron and technologically-enhanced exposure due to radon/thoron based on human activities. The radon problem has not yet been solved. When estimating dose, two different approaches are used for assessment. One is an epidemiological approach. In the epidemiological approach, the dose is derived from the relationship between the alpha exposure, i. e., the potential alpha energy concentration and the estimated excess relative risk for lung cancer among miners. The other is a dosimetric approach. The dose is derived from laboratory investigation in this case. There is a three-time difference between the two. It is obvious that information on the particle size of radon progeny is indispensable for accurate dose assessment. In order to combine the two estimates from the two approaches, both mine and home aerosols should be sufficiently characterized. As the second problem, recent studies have shown that attention must be paid to thoron because high thoron concentrations were occasionally observed in some areas. Although most of passive radon detectors are generally designed to minimize the entry of thoron, some of them were affected by the presence of thoron. It is important to understand the performance of the detector with an adequate thoron exposure facility before practical use. As the third problem, radon/thoron concentrations might be enhanced in a closed environment. In this circumstance, their concentrations should be mitigated with proper countermeasures. Building materials can be recognized as the their sources. Exhalation rates of radon and thoron from walls were measured in a traditional Japanese wooden house where a high thoron concentration was observed. No radon exhalation was detected but thoron exhalation rate was as high as that from soil. The dose due to thoron progeny cannot be ignored in such indoor environment.

## I. はじめに

現在我々が直面しているまたは今後取り組むべきラドン( $^{222}\text{Rn}$ )に関連した問題には次の3つが挙げられる。(1)線量評価法の確立、(2)トロン( $^{220}\text{Rn}$ )による被ばく、(3)人間の活動領域の拡大に伴うラドン(またはトロン)による過剰の被ばくである。本稿では、まず線量評価法の確立について、これまでの問題点を列挙するとともに、それに関連した最近の成果等を交えながら、今後のラドンの計測技術について私見を述べてみたい。トロンによる被ばくに関しては、ラドン濃度計測において、環境中に混在するトロンによる測定値への影響について述べる。ここでは、固体飛跡検出器を用いたパッシブ型ラドン測定器に限定して、実際に高トロン濃度雰囲気場において測定器のトロンに対する応答試験を行ったので、そのトロン曝露試験設備・方法の概要と試験結果の例を示す。また人間の活動領域の拡大に伴うラドン等による過剰の被ばくの問題に関して、閉鎖的環境においては、建築材料等からのラドン等の散逸により人為的に濃度が高められる可能性がある。その潜在的なレベルを知る上で様々な建築材料や土壌からのラドン・トロンの散逸率測定が考えられるが、著者らによる測定例を挙げ、その問題について言及する。

## II. 線量評価法の問題とそれを克服するための計測技術

居住環境におけるラドンの被ばくの問題は、未だ解決されていない。この理由には、ウラン鉱山における坑内作業者に発生した過剰な肺がんのリスクが通常的生活環境に適用できるかという点にある。被ばくする人間を取り巻く環境は鉱山と居住空間では大きく異なる。とりわけ、ラドン濃度のレベルは勿論、線量評価に必要なパラメータは環境によって多種多様である。現在、ラドンによる線量を評価する方法には2つの方法がある。それらは疫学的手法と線量計測的手法である。前者は坑内作業者の疫学調査の結果に基づいた肺がんの発生リスクを用いている。一方、後者は動物実験等で得られた結果を基にモデルを構築して人間に適用する方法である。現時点では両者の評価法には整合性が得られていない。疫学的手法によってラドンによる線量を評価しているICRP Publication 65<sup>1)</sup>では、5 mSv/WLMを採用しているが、線量計測的手法(ICRP Publication 66<sup>2)</sup>のモデルはラドンに適用されない)を用いて評価すると約15 mSv/WLMとなっている。Table 1に鉱山及び家屋のラドン娘核種エアロゾルに関するパラメータの代表値を示す。この表はNRC(National Research Council)による1991年に出版したBEIR、の手引き書<sup>3)</sup>から引用した。この表を見ても明らかなように、従来の測定法および評価法による結果では両者に差を見い

Table 1 Typical characteristics of radon progeny aerosols in mines and homes.

parameter	mines	homes
unattached fraction of PAEC ( $f_p$ )	0.005 (with diesel)	0.03 (smokers)
	0.02-0.09 (w/o diesel)	0.08 (non smokers)
particle size	250 nm (AMD)	150 nm (AMD)
	2.5 (GSD)	2.5 (GSD)

PAEC: potential alpha energy concentration

AMD: activity median diameter, GSD: geometric standard deviation

Adapted from "Comparative dosimetry of radon in mines and homes" (NRC 1991), which was a companion to the BEIR IV(1988).



だすことは難しい。そこで、そのギャップを埋めるため、70年代のウラン鉱山におけるラドン娘核種の粒径分布について再評価が行われ<sup>4)</sup>、また当時鉱山で電力源として使用されたディーゼル発電機から発生したディーゼル排気微粒子の粒径分布を最新式の機器を導入し評価して、ウラン鉱山坑内作業員の線量の再構築が行われてきた。例えばKnutsonらの報告<sup>5)</sup>によれば、ウラン鉱山において1000nm以上の粗大粒子の存在が確認された。またTuらの測定<sup>6)</sup>では、従来考えられていたラドン娘核種の粒径(250nm)より小さい50~85nmの観測結果が数多くみられた。両者の結果はともに線量を高める方向に作用するので、これまでのウラン鉱山作業員の線量を過小評価していたことになり、このような傾向のデータが今後集まれば先に述べた線量評価上のギャップを小さくすることになると考えられる。その線量評価に際し、鉱山での被ばくと生活環境での被ばくに整合性を持たせることができる物理的パラメータはラドン娘核種の粒径分布であると考えられる。実際、この種のデータは他のパラメータに比べて明らかに乏しく、今後データの蓄積が望まれる。一般環境ではラドン娘核種濃度自体が低いため、放射能基準の粒径分布を評価することは難しい。このような場合、個数基準のエアロゾル粒径分布を用いて付着理論から放射能基準の粒径分布を推定する方法が有効であろう<sup>7)</sup>。Figure 1に個数基準のエアロゾル中央径とラドン娘核種の放射能中央径との関係を示す。幾何標準偏差(Geometric Standard Deviation: GSD)が1に近づけば両者の径は等しくなるが、GSDが大きくなるにつれて、両者の径の開きは大きくなるのがわかる。例えば、個数分布の幾何平均径が60nmでGSDが2.0の場合、放射能中央径は155nmと推定される。このような手法によって、環境中のラドン娘核種の粒径分布を推定することが可能であると考えられる。また、粒径分布測定技術の進歩によって、超微粒子領域(エアロゾル非付着成分を含む)におけるラドン娘核種の粒径分布が明らかにされつつある。メタルワイヤスクリーンを用いた多段式のサンプラー(Graded Screen Array)はその有効な手段の一つである。このサンプラーを使った超微粒子領域のラドン娘

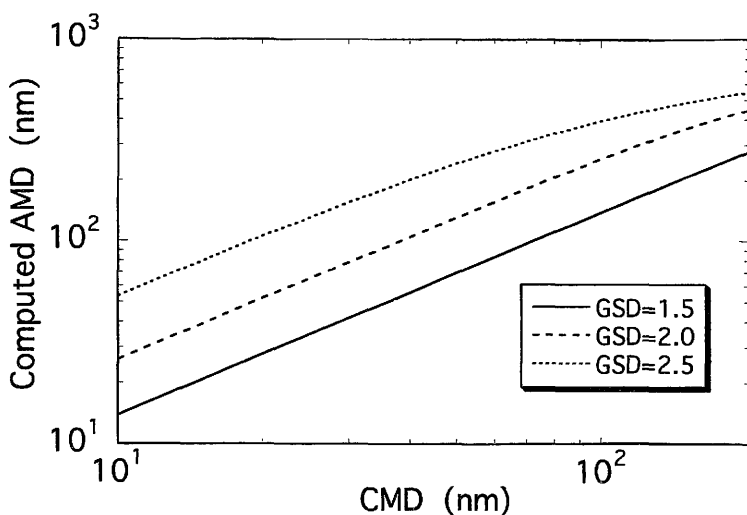


Fig. 1 The relationship between the computed activity median diameter (AMD) and the count median diameter (CMD) with several different geometric standard deviations (GSD).

核種粒径分布の測定法及びその観測結果については別報<sup>8)</sup>を参照していただきたい。Figure 2 に著者が EML ラドンチェンバーにおいて測定評価したラドン娘核種非付着成分の粒径分布の一例を示す。その際、チェンバー内のエアロゾルを強制的に除去し、温度20℃、相対湿度20%の環境条件下で試料採取が行われた。これにより、非付着成分の<sup>218</sup>Poの粒径は、幾何平均径0.73 nm、幾何標準偏差1.34の分布を示した。この粒子サイズの娘核種の線量寄与は、通常の付着成分の粒径100～300nmに比べて20倍大きく、わずかな粒径の違いによって線量も大きく異なる<sup>9)</sup>ことから、実環境においても詳細な調査が必要であると考えられる。

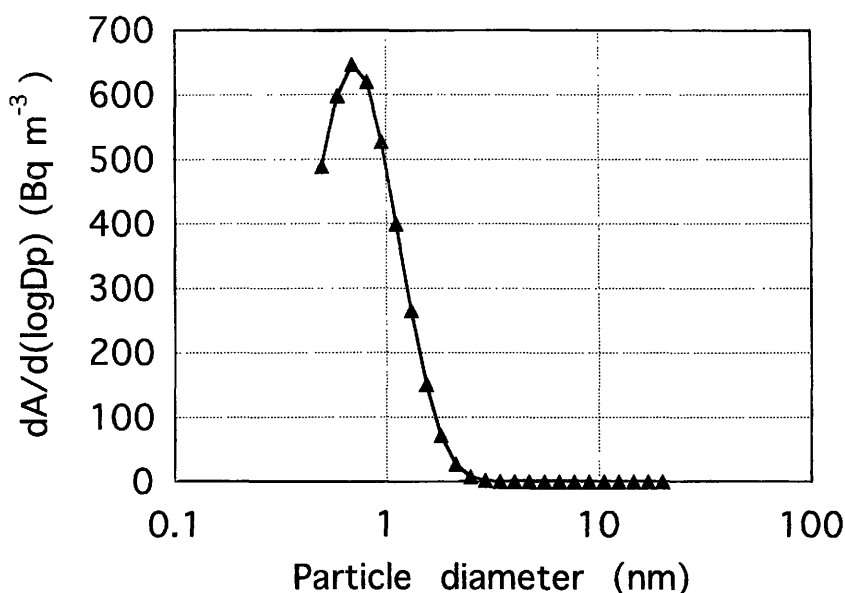


Fig. 2 The estimated activity weighted particle size distribution of the unattached <sup>218</sup>Po. Temperature=20.6℃ ; relative humidity=20% ; geometric mean diameter (GMD)=0.73 nm ; geometric standard deviation (GSD)=1.34.

### Ⅲ. 環境中に混在するトロンに関連した計測技術とその問題

近年の研究から、とりわけわが国では地域によって高トロン濃度の家屋が数多く存在することが判明した<sup>10, 11)</sup>。このことから、大規模な調査で使用されるパッシブ型ラドン測定器のトロンの影響が危惧されるようになった。ただしトロンは発生源近傍で高濃度であっても、数十センチも離れるとほとんど検出されない空間分布を示すため、測定器の設置場所に細心の注意を払えばその影響を小さくすることができる。いずれにせよ、調査を開始する前にラドン測定器のトロンに対する応答特性を把握することはきわめて重要である。さらに、トロン娘核種による線量寄与は、存在量は少ない場合でも大きく寄与することから、実環境においてもどの程度トロンが存在しているか知る必要が生じている。このような目的のため、著者らはトロン曝露チェンバーを整備するとともにトロン濃度の測定法についても検討を行ってきた。さらに幾つかのパッシブ型ラドン測定器について、現在そのチェンバーを用いたト

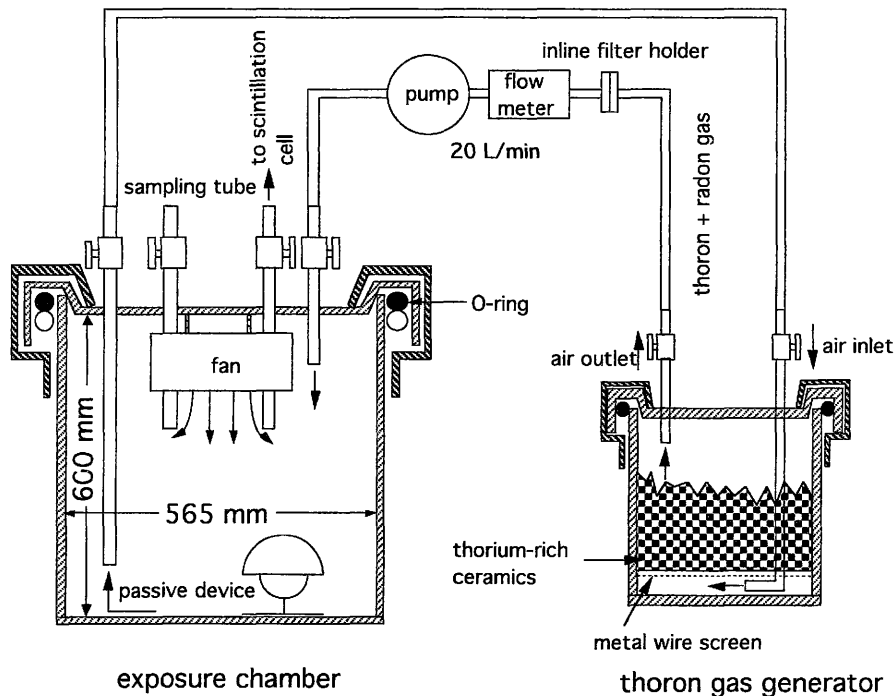


Fig. 3 A sectional view of the thoron chamber system when thoron exposure tests are carried out for passive radon detectors.

ロン・ラドン混在雰囲気場での曝露試験を行っている。装置の仕様および曝露試験の結果についての詳細は別報<sup>12)</sup>に譲るが、以下に簡単に装置の概要と結果の一例を述べる。

Figure 3 にトロン曝露試験のための実験装置配置図を示す。トロンチェンバーは主として測定器を曝露するための曝露容器とトロンガスを発生させるための発生装置で構成される。両者はインライン型のフィルタホルダー、流量計、ダイヤフラム式ポンプを介して接続される。トロンガスの供給では、トロンの半減期が非常に短い(55.6秒)ので、曝露試験ではガスを供給し続ける必要がある。発生源としてはトリウムを豊富に含んだセラミックを細かく砕いたものを用いた。曝露容器内のトロン濃度は循環する流量に依存するが、今回は使用したポンプの性能もあって約20L/minであった。曝露試験中、トロン濃度を測定する必要があり、その方法について検討を行った。実際の曝露において、この発生源からはトロンだけでなくラドンも供給されるので、両者の濃度を弁別して測定しなければならない。今回用いた方法はシンチレーションセルによる2核種の半減期の違いを利用したものであり2回の計測からなる。1回目の計測では、試料を採取してから直ちに測定することによりトロンとラドンに起因する計数が得られる。2回目には、トロンの半減期を考慮してその存在量が無視できるほど時間が経過してから計測を行い、ここではラドンのみに起因する計数が得られることになる。これら2つの情報によってトロンとラドンの濃度が求められる。以上のような装置や方法を用いて、実際に使用されている2種類のパッシブ型ラドン測定器のトロン曝露試験を行った。一つはRadtrakというアメリカ製の市販されている測定器である。もう一つはドイツ製の測定器<sup>13)</sup>で、フィルタの開口面積が大きくまたガラス繊維フィルタを使用しているので換気率が大きいと予想される測定器である。どちらの測定器もCR-39(BARYOTRAK)

を使用しており、固体飛跡検出器としてはバックグラウンドが低くロットによる感度の違いが小さいので安定した検出器である。曝露は4日間にわたり行われ、その間の平均トロン濃度は2530Bq/m<sup>3</sup>、平均ラドン濃度は230Bq/m<sup>3</sup>であった。各測定器について、ラドンとトロン濃度に対する換算係数をTable 2に示す。Radtrakに関しては、1991年にPearsonらが同様の曝露試験を行っていた<sup>14)</sup>が、近年CR-39素材の変更があったため、再度評価されることとなった。さらにこれらの値を使って測定器のトロンによる影響を視覚化したものがFigure 4である。横軸には環境中に存在するラドンとトロンの濃度比、縦軸には測定器が与えるラドン濃度の相対値である。つまり横軸の濃度比が変わっても縦軸の相対濃度が変化しなければトロンの影響は小さいという解釈になる。例えば、ラドン濃度とトロン濃度が1：1のとき、Radtrakはその応答特性によって実際より1.8倍高いラドン濃度を示すことになる。またドイツ製測定器の場合、同濃度比で実際よりも高い2.1倍の濃度を示すことになる。このように測定器によってはトロンの影響が大きいこともあり得るので、測定に使用する前にあらかじめその特性を把握しておくことが必要である。

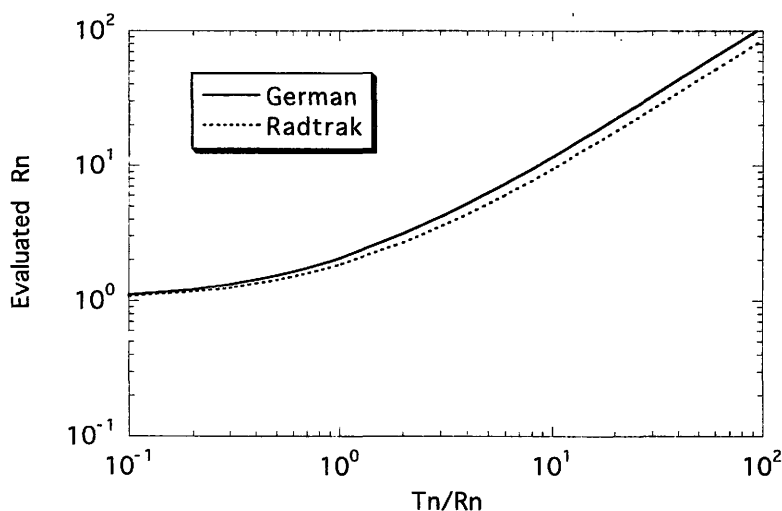


Fig. 4 Detection response to thoron on passive radon detectors.

Table 2 Conversion factors on radon and thoron concentrations.

measuring device	radon	thoron	remarks
Radtrak	6.74	4.51	ref. Pearson & Spangler 1991
German monitor	10.14	10.17	ref. Urban & Piesch 1981

unit: 10<sup>-4</sup> tracks/mm<sup>2</sup>/(Bq/m<sup>3</sup>-d)

科学技術の進歩によって、人間の活動領域がますます拡大されつつある。例えば地下空間の利用や宇宙空間への進出である。これらはいずれも閉鎖的な空間であるため、ラドンまたはトロンによる過剰の被ばくの可能性が高くなると予想される。このような状況下では発生源を特定し、その量を評価し、その発生を抑制する手法を検討する必要がある。そこで、著者らはトロンチェンバーで用いられるラド

ン・トロン迅速測定法を応用して、建築材料からのラドン・トロン散逸率の測定を検討している。現在、幾つかの地点で実測を試みており、その結果の一部を Table 3 に示す。世界の典型的な値<sup>15)</sup>として、土壌からの散逸率では、 $2.0 \times 10^{-2}$ (ラドン)、1(トロン)Bq/m<sup>2</sup>/s が与えられている。建築材料からの散逸率では、 $5.0 \times 10^{-4}$ (ラドン)、 $5.0 \times 10^{-2}$ (トロン)Bq/m<sup>2</sup>/s となっている。最近日本分析センターが中心となって行った我が国の全国調査の結果<sup>16)</sup>によると、家屋内ラドン濃度の平均値は 15.5 Bq/m<sup>3</sup> であり、諸外国と比べても低い。この理由としては、開放的な家屋構造に起因していると考えられている。しかしながら、将来の家屋構造については省エネルギー化が進むため、現在よりも気密性の高い家屋が増えていくことは容易に予想できる。また散逸率の結果を見ても、ラドンのポテンシャルは決して低いことはないので、家屋内のラドン濃度が上昇する可能性は高い。我が国にはもう一つの特徴的な問題がある。家屋の壁に土壁や壁の塗料として土壌が利用されることが多い。京都の木造家屋の実測例では、土壁からラドンの散逸は認められなかったものの、トロンの散逸率については土壌からのものに匹敵する結果となっている。容積の小さな室内環境では、トロン娘核種の濃度も高いことが予想されるため、トロン娘核種による線量寄与を十分に考慮する必要があると考えられる。

Table 3 Exhalation rates of radon and thoron from building materials.

site	radon (Bq/m <sup>2</sup> /s)	thoron (Bq/m <sup>2</sup> /s)	remarks
laboratory, NIRS	$5 \times 10^{-4}$	N.D.	high ventilation, mean radon conc.=10 Bq/m <sup>3</sup>
lecture room, NIRS	$8 \times 10^{-4}$	N.D.	low ventilation, mean radon conc.=100 Bq/m <sup>3</sup>
computer room, Ibaraki	$3 \times 10^{-5}$	N.D.	gypsum board with high radium content
Japanese-style room, Kyoto	N.D.	1.8	soil wall

#### IV. おわりに

前本稿では、ラドン計測に関して現在抱えている問題を提示するとともに、それに関連した測定法および実測例を紹介した。これまでのラドンの計測では、ラドン濃度のみが精力的に測られその量のみが問題とされてきたが、それだけでは説明できないことが明らかになっている。線量評価の観点からいえば、量だけでなく質も十分把握する必要がある。環境パラメータの中で質的な情報として注目しているものは娘核種の粒径分布である。この種のデータも蓄積していくことは今後の線量評価にかなり有益な情報を提供するものと考えられる。気密性の高い家屋構造または将来の閉鎖的環境では、建築材料等からのラドン・トロンの散逸を十分考慮しなければならない。また諸外国に比べて我が国の家屋ではトロン等による線量の寄与を無視することはできないと考えられる。建築材料等からのラドン・トロンの発生量を特定しそのメカニズムを明らかにする必要がある。さらに低減化の対策が必要であればその方法についても検討すべきであろう。

#### 参考文献

- 1) International Commission on Radiation Protection. ICRP Publication 65 Protection against radon-222 at home and at work. Pergamon (Oxford). ISBN 0 08 042475 9 (1993)
- 2) International Commission on Radiation Protection. ICRP Publication 66 Human respiratory tract model for radiological protection. Pergamon (Oxford). ISBN 0 08 041154 1 (1993)
- 3) National Research Council. Comparative dosimetry of radon in mines and homes. National Academy Press

- (Washington, D.C.). ISBN 0 309 04484 7. (1991)
- 4) Cavallo, A. J. : Reanalysis of 1973 activity-weighted particle size distribution measurements in active U.S. uranium mines. *Aerosol Sci. Technol.*, **29**, 31-38(1998)
  - 5) Knutson, E. O. and Tu, K.W. : Size distribution of radon progeny aerosol in the working area of a dry former uranium mine. *Environ. Intl.*, **22**, S617-S632(1996)
  - 6) Tu, K.W *et al.* : Short-and long-lived radionuclide particle size measurements in a uranium mine. USDOE Report EML-588, April (1997)
  - 7) Tokonami, S. : Experimental verification of the attachment theory of radon progeny onto ambient aerosols. *Health Phys.*, **78**, 74-79(2000)
  - 8) Tokonami, S. : Determination of the diffusion coefficient of unattached radon progeny with a graded screen array at the EML radon/aerosol chamber. *Radiat. Prot. Dosim.*, **81**, 285-290(1999)
  - 9) Solomon, S.B. : A radon progeny sampler for the determination of effective dose. *Radiat. Prot. Dosim.*, **72**, 31-42 (1997)
  - 10) Doi, M. *et al.* : Spatial distribution of thoron and radon concentration in the ambient air of a traditional Japanese wooden house. *Health Phys.*, **66**, 43-49(1994)
  - 11) Yonehara, H. *et al.* : Radon concentrations in residential housing in Hiroshima and Nagasaki. *Health Phys.*, **68**, 683-688(1995)
  - 12) 床次眞司ほか：パッシブ型ラドン測定器のトロンに対する応答特性. *Radioisotopes*, **49**, 1-8(2000)
  - 13) Urban, M. and Piesch, E. : Low level environmental radon dosimetry with a passive track etch detector device. *Radiat. Prot. Dosim.*, **1**, 97-109(1981)
  - 14) Pearson, M.D. and Spangler, R.R. : Calibration of  $\alpha$ -track monitors for measurement of thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ). *Health Phys.*, **60**, 697-701(1991)
  - 15) Porstendörfer, J. : Properties and behavior of radon and thoron and their decay products in the air. *J. Aerosol Sci.*, **25**, 219-263(1994)
  - 16) Sanada, T. *et al.* : Measurement of nationwide indoor Rn concentration in Japan. *J. Environ. Radioactivity*, **45**, 129-137(1999)

## 水文学におけるラドン

堀内 公子

大妻女子大学 社会情報学部

### Radon in Hydrology

Kimiko HORIUCHI

Otsuma Women's University

2-7-1, Karakida, Tama-shi, 206-8540, Japan

#### Abstract

Hydrology is the science which deals with the waters of the earth, their occurrence, circulation and distribution on the planet, their physical and chemical properties and their interactions with the physical and biological environments including their responses to human activity.

Hydrology is a field which covers the entire history of the cycle of water in the earth<sup>1)</sup>.

Ground water is very important for us to live. But it is very difficult for us to control ground water, because of complicated natural phenomena.  $^{222}\text{Rn}$  belongs to the rare gas elements which have lowest possibility of chemical reaction, the disturbance of the concentration in ground water caused by the chemical reaction with the rocks and soils is negligible. Therefore, from the variation of  $^{222}\text{Rn}$  concentration due to ground water movement, the system and mechanism of ground water can analyzed easily. In radioisotope hydrology,  $^{222}\text{Rn}$  is a good tracer to analyze water circulation and the changes caused by human activities by studying the changing distribution patterns of  $^{222}\text{Rn}$  concentrations in water.

In future, for further understanding of the complicated natural phenomena,  $^{222}\text{Rn}$  isotope hydrology will require correlative examination with some kinds of tracers.

#### I. はじめに

水文学は、「狭義には、陸地の水のありかた、循環、分布特質を自然科学的に研究する学問分野を指すが、広義には、水資源の開発、水の適正な利用、水と環境との関係、水文環境の管理など、人間と水との係わりあいに関する研究を含む水に関する総合科学」と定義される<sup>2)</sup>。

大気中の水分は冷却されて雨や雪となって地表面上に落ち、その一部はそのまま蒸発して大気に戻る。このように水は自然界において雲、雨、雪、川、湖、泉、氷河などいろいろに形を変えて、最も豊富に存在している。これらの水に共通している基本的な性質は常に「循環している」ことである。水は循環

する過程で熱や物質を運び、生物をそだてる。気候の形成、地形の形成、生態系の形成にはいずれも水循環が強く関与している。水は循環することによって、46億年の地球の歴史の中で莫大な仕事をして来たし、人間の活動も水によって規制される。古来中国では水を治めるものは国を治めるとさえ言われた。

地球上には約1.38億 $\text{km}^3$ の水が存在しているが、海水と塩湖がその97.507%を占めている(内塩湖:0.007%)。残りの淡水の70.20%は氷、28.88%が地下水である。しかし地球上の氷の99.46%は人間の住んでいない南極とグリーンランドにある。よってわれわれの身近に存在する水は殆どが地下水とすることになる。事実、地下水は地中に大量に存在し、古くから人間に利用されて来たが、その循環の速度は極めて遅い。全世界の地下水の滞留時間は平均すると830年だが、地域によって0.01年~数万年迄の幅があると言われている。

地下水の調査も古くから行われ、地下水が流れている場の条件、即ち地層の水文地質構造の解明には電気探査、弾性波探査等が行われてきた。しかし不均質な地下空間の全てを調べ尽くすことは出来ない<sup>2)</sup>。

現代の水文学はトレーサー追跡により可成りの程度まで解決された。1970年代の終わり頃になって同位体による地下水循環調査法がほぼ確立した。同位体を利用すると、地下水のもつ時間情報と空間情報を読み取る事が出来る。時間情報とは、その地下水が何時地下水になったかという情報であり、空間情報とはどこで地下水になったかという情報である。

トレーサーとして放射性同位体を用いる場合には時間情報が得られる。半減期が3.825日と短い $^{222}\text{Rn}$ の場合は数ヶ月迄の短時間の情報を得るのに使用される。ここでは水中の $^{222}\text{Rn}$ のみを対象とした。

## II. 水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の測定法

現在、水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の測定には主としてトルエン抽出-液体シンチレーションカウンター(以下LSC)測定法が用いられている。この方法は $^{222}\text{Rn}$ が有機溶媒によく溶けることを利用して開発されたもので、測定器の普及につれて広く利用されて来ている<sup>3-6)</sup>。予めシンチレーター(LS)を溶解させたトルエンで直接 $^{222}\text{Rn}$ を抽出した後、 $^{222}\text{Rn}$ と娘核種を含めて5核種を同時に測定するため感度が5倍になる。しかも積分計数法の適用により計数効率は100%である。即ち、計数率(cpm)から崩壊率(dpm)がわかり、簡単に濃度の算出が出来る。通常1lの試料水を用いた場合測定下限は0.02Bq/lである。

近年試料水10mlにLS10mlを共存させLSCで測定する直接法が開発された<sup>7)</sup>。直接法の改良、工夫もいろいろ検討されているが、測定下限は4Bq/lとやや高い。しかし試料の少ない時にはこれも有効な方法と言えよう。

これ以外、水中の $^{222}\text{Rn}$ の測定は直接 $^{222}\text{Rn}$ 自身を測定する方法、あるいは娘核種の $\gamma$ 線を測定しラドン濃度を求める方法など、多くの研究者により工夫・開発が行われている。

## III. 水文解析のトレーサーとしての $^{222}\text{Rn}$

自然界に存在する広義のラドンには、狭義のラドン( $^{222}\text{Rn}$ )、トロン( $^{220}\text{Rn}$ )、アクチノン( $^{219}\text{Rn}$ )が存在するが、半減期が短いため水文解析のトレーサーとして利用出来るのは $^{222}\text{Rn}$ のみである。地層の結晶内には地層毎に固有な量をもつウラン系列元素 $^{226}\text{Ra}$ が必ず含まれ、その放射性崩壊で生ずる $^{222}\text{Rn}$ が地下水へ移行するため、地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は地層毎に固有値を持つ。このため地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度分布



で地層が区分出来る。 $^{222}\text{Rn}$ は化学的に不活性な希ガス元素であること、放射線検出で極低濃度まで測定できることなどトレーサーとして優れた特性がある。さらに、短寿命の放射性同位体で、生成・崩壊過程をもつことが一般のトレーサーにない特性を示している。

地層の間隙を流動する地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は、半減期が短いため短期間で放射平衡に達する。測定精度を考慮して地層に接した地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は過去数週間から数ヶ月の流動環境の情報を伴ったトレーサーとして用いることが出来る。

また $^{222}\text{Rn}$ は降水・地表水には殆ど含まれていないが、地下水には数Bq/l～数百Bq/lといった高濃度のもまで存在し、明らかな濃度差がみられる。更に同じ帯水層においても停滞水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は循環水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度のほぼ3倍になっていることが経験的に知られている。以上の3つの $^{222}\text{Rn}$ の存在状態を利用して次のような流れの解析が行える。

- ①地表水への地下水浸出：河川、堰、水田等で地表水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の増加
- ②地下水への地表水の侵入：地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の減少、 $^{222}\text{Rn}$ 濃度の平面、垂直分布の検討から灌漑水の浸透、貯水の漏水機構、河川水の浸透現象の解析が可能
- ③地層内での流れの変化：揚水等の自然の流れを乱す人為的条件による水の平面、垂直浸透の発生、拡大を解析する。

循環水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は、場を特定して $^{222}\text{Rn}$ 収支機構をモデル化出来れば、降水・降雪中に生ずる大気中の $^{222}\text{Rn}$ の捕獲、地下水として流動中に発生する地層からの $^{222}\text{Rn}$ の溶解、河川水の伏流速度、帯水層間流動の計測、河川や湖沼と地下水との涵養状況、ダム漏水の解析等、水循環過程の諸現象を解析する事ができる<sup>8)</sup>。

#### IV. $^{222}\text{Rn}$ による水文解析

##### 1. 地下水帯水層の同定

深度1,000m以上の深層地下水では、地層が比較的均質でほとんど流動していないことから、 $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変動幅は小さい。こうした $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変動が小さく平衡状態が保証されている地下水の場合には、 $^{222}\text{Rn}$ 濃度から比較的容易に帯水層が同定できる。その例を図1に示した。図の上部の平面図には地下水

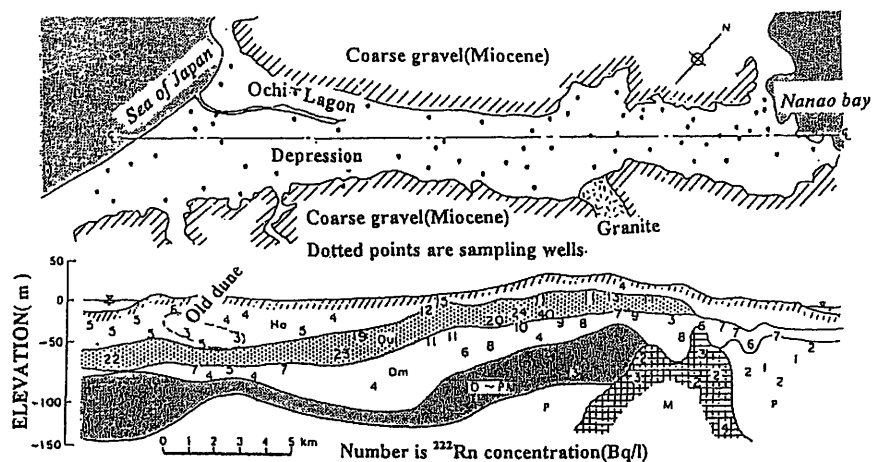


Fig. 1 Analysis of vertical hydrogeological structure.

の採水地点、下部の断面図には地質ボーリング調査による地質区分と採水深度の位置に $^{222}\text{Rn}$ 濃度が示されている。地質区分が地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度分布とよく調和していることが分かる。 $^{222}\text{Rn}$ 濃度を指標とした地下水帯水層の同定によって、地質情報や物理探査結果からは解析が困難な局所的な地下水流動系の実態解明が期待される<sup>9)</sup>。

## 2. 琵琶湖の湖底漏出地下水

水収支の観点から琵琶湖の湖底から地下水が湧き出ていることが予想されたが、その実態はよくわかっていなかった。そこでシーページメーターを湖岸近くの水深1~1.5mの湖底に設置して湖底漏出地下水を捕捉し $^{222}\text{Rn}$ 濃度を定量した(図2)。全域が砂、シルトを主成分とする薄い沖積層に覆われ、内陸部

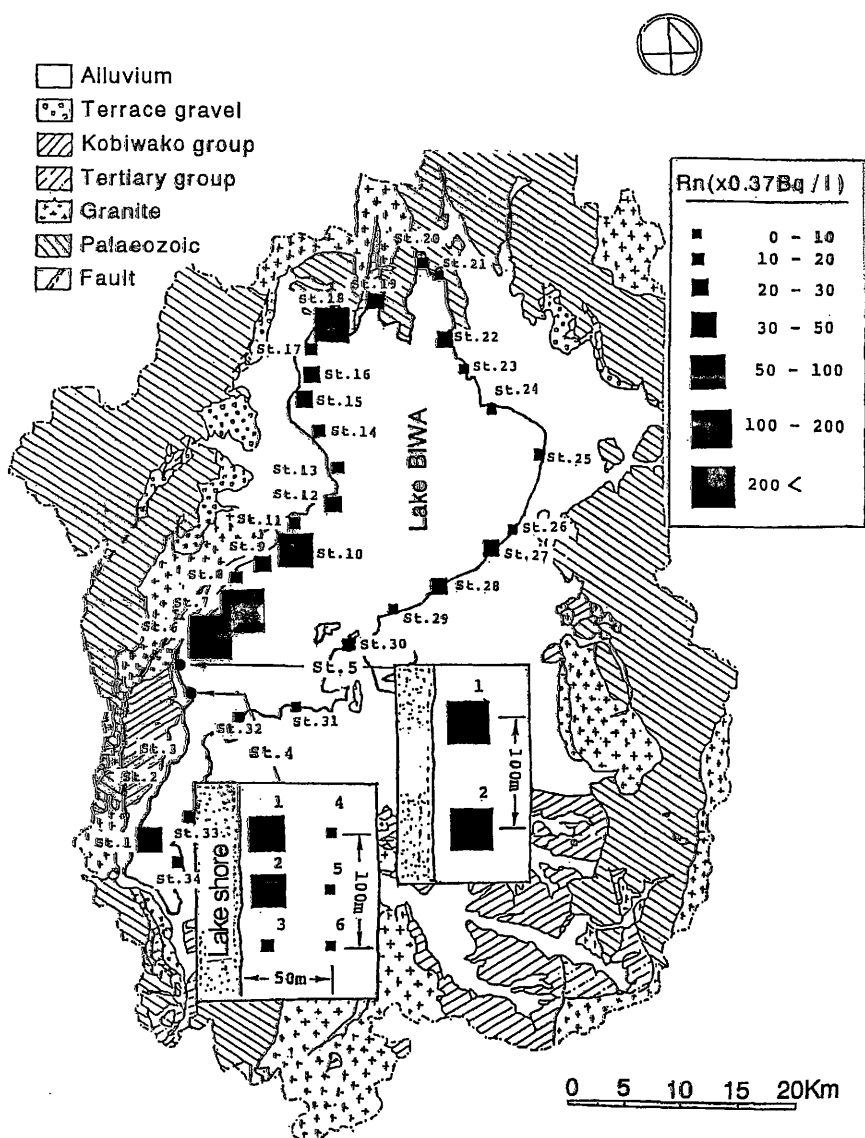


Fig. 2  $^{222}\text{Rn}$  concentration in seepage water at the bottom of the Lake Biwa.  
 ■ : graduated sizes represent increasing levels of concentration

に広範囲な被圧地下水帯が分布している湖東岸に比べ、砂質、砂礫質に富み不圧地下水帯の多い湖西岸の $^{222}\text{Rn}$ 濃度が高かった。特に基盤が花崗岩で構成されている比良山地を後背地に持つ松の浦浜が最大値を示した。

次に琵琶湖西岸の松の浦浜において湖岸直交線上にシーページメーターを設置し直接採取した湖底からの漏出地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度を測定した(図3)。従来地下水の漏出は離岸距離や水深に反比例し、指数関数的に減少すると報告されていたが、その結果とは一致しなかった。 $^{222}\text{Rn}$ 濃度は漏出速度に比例しシルト層で被圧された砂礫層から湖水に比べて溶存塩分の少ない漏出地下水が出ていることは、電気伝導度からもうかがえる。以上の結果より、帯水層の違いにより $^{222}\text{Rn}$ 濃度の異なる地下水が湖底から漏出していることが確認された<sup>10)</sup>。

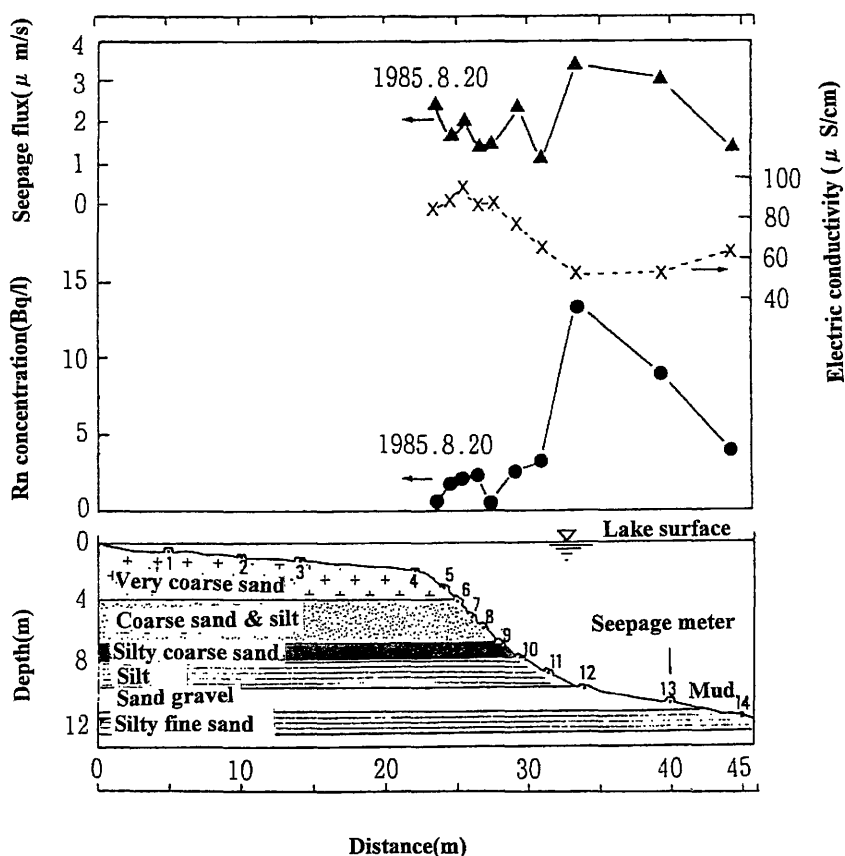


Fig. 3 A : Variation of Rn concentration, EC and seepage flux in seepage water.  
B : Stratum profile of Station 5.

### 3. 河川への地下水の浸出

河川への地下水浸出も同様の原理で調査・解析されている。河床からの $^{222}\text{Rn}$ の供給は一般に無視出来るので、河川水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は崩壊と流動による空中への飛散で濃度は流下につれて漸減する。地下水の混入は減少する筈の $^{222}\text{Rn}$ 濃度増として明示され、浸出区間も解析できた(図4)<sup>9)</sup>。

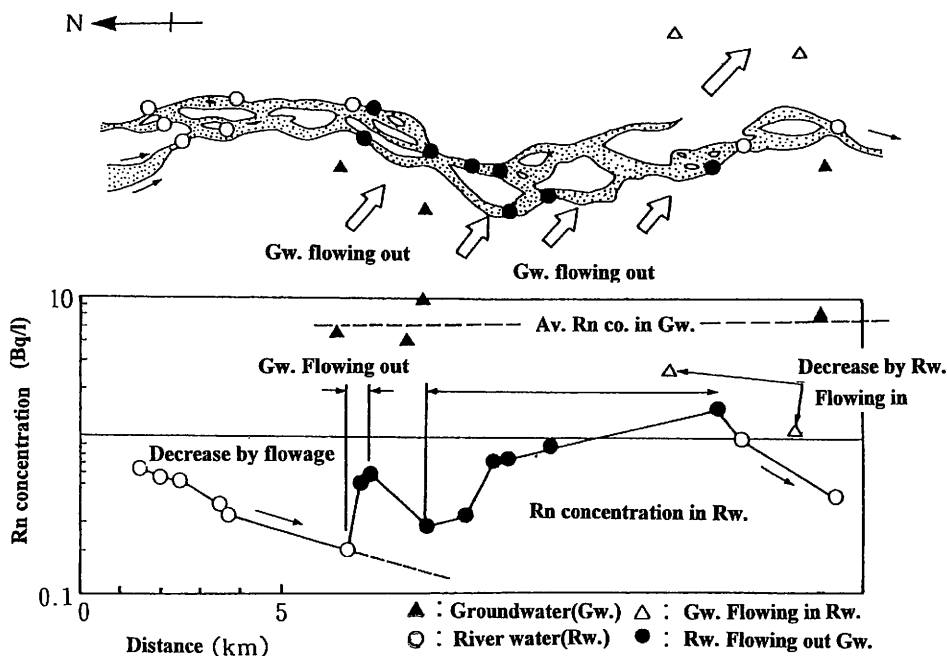


Fig. 4 Change of  $^{222}\text{Rn}$  concentration of river water.

#### 4. 地下水への地表水の注入

地表水と地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度が著しく異なることを利用して、地下水に注入した地表水の地下水観測孔への到達を $^{222}\text{Rn}$ 濃度の低下で説明した。岩盤中の割れ目の連続性を確認するために河川水を連続注入し、注入孔から23m, 36m, 81m離れた3ヶ所の観測孔で得た $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変化を示した(図5)。まず割

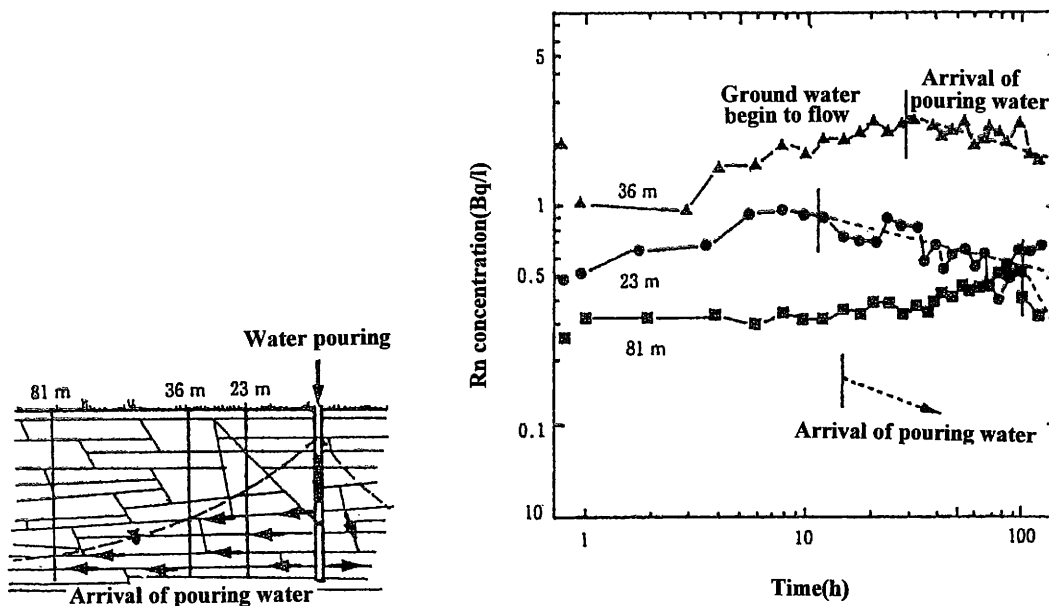


Fig. 5 Change of  $^{222}\text{Rn}$  concentration in water pouring test.

れ目内に貯留されていた比較的高濃度の地下水が流動化して観測孔に流入することで<sup>222</sup>Rn濃度が徐々に高くなり、その後低下しはじめる。低下しはじめた時が注入水の到達時点と判定出来る<sup>11)</sup>。

### 5. 揚水による停滞水の流動化

揚水井から地下水はその地層全体から一様に集水されるものと考えられがちであるが揚水の集水機構は、まず井戸周辺の高透水性部を流動する循環水が移動し、水圧の低下とともに周辺の低透水性部に存在する停滞性地下水が流動化し、さらに水圧が低下することによって、難透水層からの絞り出しや周辺帯水層からの地下水の浸出が発生する。

このような現象は、地下水が地層毎に固有な平衡<sup>222</sup>Rn濃度をもつことを前提として、揚水中の<sup>222</sup>Rn濃度が時系列的に変化する現象として捉えることが出来る。測定例とパターン化した図を示した(図6)。この現象は帯水層からの過剰揚水等の監視に利用出来る<sup>11)</sup>。

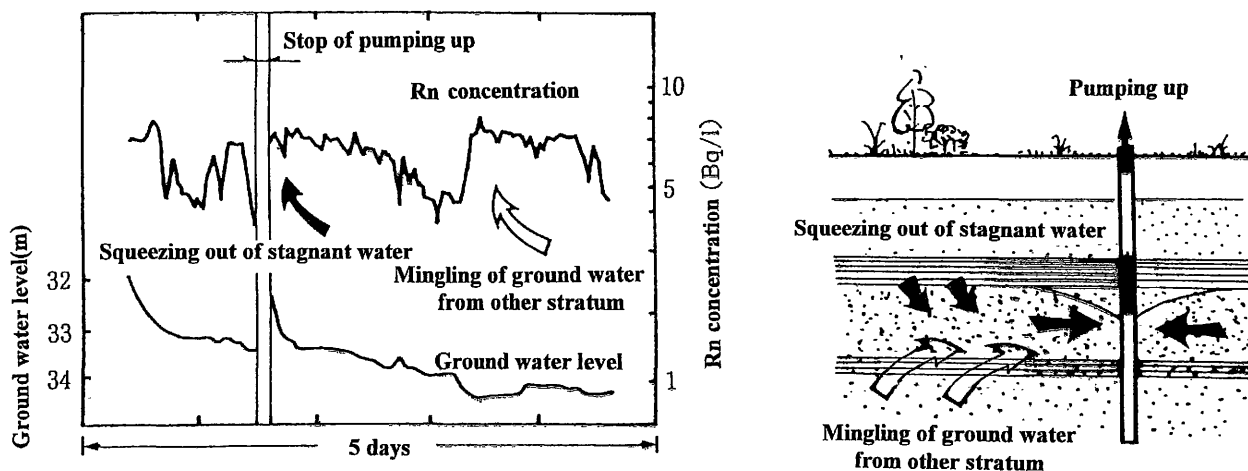


Fig. 6 Change of <sup>222</sup>Rn concentration in pumping test.

### 6. 灌漑による地表水の浸入

地層条件に応じた灌漑による浅層水の濃度変化をパターン化すると図7のようになる。灌漑による垂直浸透量の急増は地下水の<sup>222</sup>Rn濃度で明示される。始め不飽和層の停滞水の押し出しで、濃度増が起り、次いで灌漑水の到達で急減する。速度は不飽和層の厚さや透水度で変化する<sup>8)</sup>。三朝温泉でも周辺の田圃に水が張られると温泉の湧出量とラドン濃度が高くなることが報告されている<sup>12)</sup>。

## V. おわりに

水文学では地下水の挙動の不明確さが大きな障害であった。科学技術の進歩に伴って人間生活における水の重要性が増し水需要が急増し、安価な地下水の利用が関心をよび、関連する技術を著しく進展させた。特に水に含まれた同位体を指標に水循環を解析する同位体水文学の確立で地下の水の動きの実証的解析が可能になった成果は大きい。

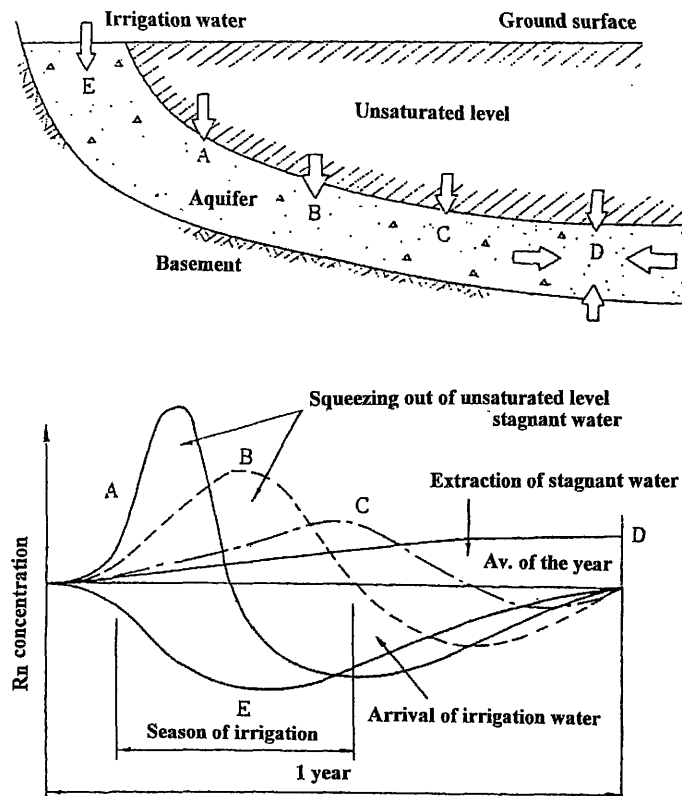


Fig. 7  $^{222}\text{Rn}$  concentration change pattern of surface water by irrigation.

$^{222}\text{Rn}$ による水文解析の基礎研究の多くは実用化へ向けての1970年代にかなり精力的に行われ、現在に至っている。それらの幾つかをここでは取り上げたが、その他にも人工涵養した地下水の挙動をトレースしたり、河川水の伏流速度の解析、ダムの漏水診断等に $^{222}\text{Rn}$ を指標とした水循環解析に関する研究が行われ、成果をあげている。これらは、地層に起源を持ち短寿命の $^{222}\text{Rn}$ の特性を利用した優れた調査解析法であるといえる。

今後同位体水文学の分野では幾つかのトレーサーを利用してより複雑な現象の解明を目指して行くことになるだろう。

しかし最近フランスのダム湖周辺で空気中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度を3年間連続測定している際、定期的に $^{222}\text{Rn}$ 濃度が急増する現象が見られている。ダムに水を溜めたり、放流したりすることによる周辺の地層への影響が関連していると考えられ、岩石内の物質の移行の説明に使えるのではないかと報告されている<sup>13)</sup>。

自然現象は複雑で常に未知の部分に満ちている。水の重要性が急増する中で、 $^{222}\text{Rn}$ 濃度を測定することによってはじめて可能になる水文学的研究分野も広がっていると考えられる。解析の高度化を図るため、 $^{222}\text{Rn}$ の挙動に関する研究や水流動の局所的な現象に関する研究の一層の進展が期待される。

## 参考文献

- 1) 高橋 裕: 河川水文学, 共立出版, 218, (1978)
- 2) 榎根 勇: 水文学, 1, 42, 大明堂, (1980)

- 3) 野口正安: 液体シンチレーターによる Radon の放射能測定, *RADIOISOTOPES*, **13**, 362-367 (1964)
- 4) 本間義夫, 村上悠紀雄: 液体シンチレーションカウンターにおける積分係数法の応用, *分析器機*, **15**, 227-231 (1977)
- 5) 堀内公子, 村上悠紀雄: 鉱泉中ラドンの液体シンチレーションカウンターによる新定量法とその基礎的条件の検討. *温泉科学*, **28**, 39-52 (1977)
- 6) 堀内公子: 鉱泉中ラドンの抽出-液体シンチレーションカウンターによる新定量法について. *温泉工学会誌*, **13**, 95-103 (1978)
- 7) M.J.Kessler: In " The 2nd International Seminar for Liquid Scintillation Analysis Proceeding," 43-67, June 8-9 Tokyo (1988)
- 8) 木村重彦: “地下水ハンドブック”, 地下水ハンドブック編集委員会編, 東京 (1979)
- 9) S.Kimura and T.Komae: Applications of Environmental Radon-222 to Some Cases of Water Circulation. *Natural Radiat. Environ. Part III*, **1**, 581-599 (1978)
- 10) 堀内公子, 村上悠紀雄: ラドン定量による漏出地下水と湖岸地下水の特性について. 地域環境要因としての地下水研究報告(第3集)文部省環境科学特別研究研究班, 91-106 (1986)
- 11) 小前隆美: ラドン水循環解析への応用. *RADIOISOTOPES*, **44**, 715-724 (1995)
- 12) 梅本春次, 杉原 健: 鳥取県三朝温泉の化学的研究(第1報)ラドン含量の変化について. *日化*, **80**, 1246-1249 (1959)
- 13) M. Trique, *et al.*: Radon emanation and electric potential variations associated with transient deformation near reservoir lakes. *Nature*, **399**, 137-141 (1999)

## 屋内ラドン濃度の全国調査

真田 哲也  
日本分析センター

### Measurement of Nationwide Indoor Radon Concentration in Japan

Tetsuya SANADA  
Japan Chemical Analysis Center  
295-3, Sanno-cho, Inage-ku, Chiba-shi 263-0002, Japan

#### Abstract

Indoor Rn ( $^{222}\text{Rn}$ ) concentrations in Japan were measured to estimate the effective dose to the general public due to Rn and its progeny. Twenty houses were selected in each prefecture throughout Japan. As a total, 940 houses were subjected to the measurement using passive Rn monitors. The Rn monitor was installed in a bedroom or a living room in each house for successive four three-month periods. Calibration experiments were carried out in a Rn chamber of the NRPB in the UK. The calibration factor was obtained to be  $0.0282 \pm 0.0014$  tracks  $\text{cm}^{-2} \text{Bq}^{-1} \text{m}^3 \text{day}^{-1}$ . The annual mean indoor Rn concentration was estimated from the four measurements in each house. The mean, median and geometric mean of indoor Rn concentration in Japan were obtained to be 15.5, 11.7 and 12.7  $\text{Bq m}^{-3}$ , respectively. The Rn concentration showed approximately a log-normal distribution. Seasonal and structural dependence of Rn concentration was observed. Seasonal variation of Rn concentration showed the lowest in summer. The effective dose to the general public due to Rn and its progeny was estimated to be  $0.47 \text{ mSv y}^{-1}$  in Japan.

#### I. はじめに

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) は主に地殻から生成される天然の放射性核種で、 $^{226}\text{Ra}$  が崩壊して生成する半減期が3.8日の $\alpha$ 線を放出する希ガスであり、その起源は地球創世まで遡る<sup>1)</sup>。

近年環境中でのラドンの濃度、挙動、および被ばく線量評価が盛んに行われ、世界各国で多くの調査研究がなされている。これは、国連科学委員会(UNSCEAR)の報告書<sup>2)</sup>によるところが大きい。また調査が進むにつれ、特に北欧諸国ではラドン濃度の高い家屋が見出されたこともラドンに関する調査研究に拍車をかけたと思われる。

地球環境の保護と相まって省エネルギー化が進み、例えば冷暖房の効率を向上させるため家屋の気密性を高めることにより換気率が低くなり、ラドン濃度が高くなる可能性も考えられる。ラドンは人工放射性核種ではないが、生活習慣、環境等の変化により人為的に濃度が高まる環境を作り出しているかも



しれない。例えば、リン酸石膏を壁等の建材として使用することにより室内のラドン濃度が容易に高まる<sup>3)</sup>こともあり、ラドンからの被ばく線量を把握することはきわめて重要であると考ええる。

## II. 調査方法

### 1. ラドン濃度測定器

調査に用いた測定器は放射線医学総合研究所で開発されたパッシブ型ラドン・トロン(<sup>220</sup>Rn)弁別測定器である<sup>4)</sup>。検出部にポリカーボネートフィルム(固体飛跡検出器)を用いたカップ型の測定器である。測定器は大きさの異なる半球を合わせた形をしておりその中央部に2枚のポリカーボネートフィルムを装着する構造になっている。空気は最初にラドン短寿命壊変生成核種の侵入を防ぐために取り付けられたグラスファイバー製のフィルタを介して上部の半球に流入し、ラドン、トロンおよび半球の内壁に付着したそれらの短寿命壊変生成核種から放出される $\alpha$ 線がフィルムに飛跡を残す。上部の半球に流入した空気は次に直径1mmのピンホールを通過して下部の小半球に流入する。このピンホールにより換気率の低い下部半球には半減期が56秒のトロンはほとんど侵入することができず、ラドンのみが下部半球内に到達することができる。従って、下部のポリカーボネートフィルムにはラドンおよびその短寿命壊変生成核種からのみの $\alpha$ 線により生成された飛跡が残ることとなる。このように本測定器の特徴はラドンとトロンを弁別して測定できることである。

### 2. 設置期間および設置場所

調査は1992(平4)年4月から1996(平8)年6月まで実施した。測定器は原則として3ヵ月ごとに交換し、対象とした家屋を1年間にわたり調査した。被ばく線量評価において居住係数が大きなファクタであることから、滞在時間が長い居間または寝室に測定器を設置した。

同時に47都道府県の調査は経済的および人力的に不可能であるため、一年間に14-17県の割合で分けて調査を実施した。

測定器の設置は1県あたり20家屋とし、家屋の選定は各都道府県に委ねた。調査を実施した家屋は合計940軒であった。

### 3. 電気及び化学エッチング

3ヶ月間設置した測定器からポリカーボネートフィルムを取り出し、速やかにエッチングを行った。エッチングを直ちに行わない場合は1枚ずつ専用の袋に入れ密封した後、シリカゲルの入ったデシケータ中に保存しバックグラウンドが上昇しないようにした。エッチングには8M KOHとエタノール溶液を8:2で混合し調製したエッチング溶液を用いた。ポリカーボネートフィルムをエッチングセルに装着し、30℃に調整された恒温槽に入れ化学エッチングを30分間行い、続いて800V, 2000Hzの交流電流を2時間30分通電して電気化学エッチングを行いフィルム上にエッチピットを均一に生成させた。

エッチング操作において常に適切な条件でエッチングされているかを確認する目的で、241Amの $\alpha$ 線で照射したフィルムを試料とともにエッチングした。フィルム19枚にエッチングチェックフィルムを1枚の割合で入れ、エッチングの質の管理を行った<sup>5)</sup>。

四半期ごとにバックグラウンド測定器を10台用意し、袋に入れラドンフリーの空気(純空気)で置換した後、密封し約3ヶ月間実験室内に保存した。測定器から取り出したフィルムを前述の方法でエッチングし他の試料とともにエッチピット数を計数し得られた値を当該四半期のバックグラウンドとした。

#### 4. エッチピットの計数

本調査では年間約2800枚のフィルムを処理するため、自動読取装置を導入し、ポリカーボネートフィルム上に生成したエッチピット数を計数した。装置は高性能のCCDカメラ、イメージアナライザ、実体顕微鏡、およびパーソナルコンピュータからなり、 $1\text{cm}^2$ 中のトラック数を自動で計数でき、通常20枚のフィルムを約1時間で計数可能である。また、トラック数が $200\text{tracks cm}^{-2}$ 以下の場合にはエッチピットの重なりによる補正をすることなく計数できる。

### Ⅲ. 校正実験

得られた測定データの信頼性を確保するため、国際的なラドンの校正施設である<sup>6)</sup>英国国立放射線防護庁(NRPB)においてラドン濃度測定器の校正実験を行った。NRPBの校正装置であるラドンチェンバーは縦4.4m、横4.4mで出入り口には二重の扉があり気密性が保たれていた。第一回の校正実験におけるラドンチェンバー内のラドン濃度は $4007 \pm 161\text{Bq m}^{-3}$ であった。このチェンバーは曝露中でも人の出入りが可能であるので、積算ラドン濃度は測定器の曝露時間を変えることで調整した。ラドンフリーの空気に置換したビニールバッグ内で保存したバックグラウンド測定器を含めて、2-3種類の積算ラドン濃度で曝露した校正実験を合計3回行った。

同じ時期に行った米国環境測定研究所(EML)の結果とともに図1に示す。3回の校正実験の積算ラドン濃度とエッチピット数の関係から $0.0280 \pm 0.0015$ 、 $0.0296 \pm 0.0013$ 、および $0.0269 \pm 0.0012\text{ tracks cm}^{-2}\text{ Bq}^{-1}\text{ m}^3\text{ day}^{-1}$ の校正定数がそれぞれ得られた。これら3回の校正実験は実施した時期は異なるが、方法、場所等その他の条件は同一であることから、それらを算術平均し誤差はその標準偏差を採用した。その結果、校正定数は $0.0282 \pm 0.0014\text{ tracks cm}^{-2}\text{ Bq}^{-1}\text{ m}^3\text{ day}^{-1}$ となった。

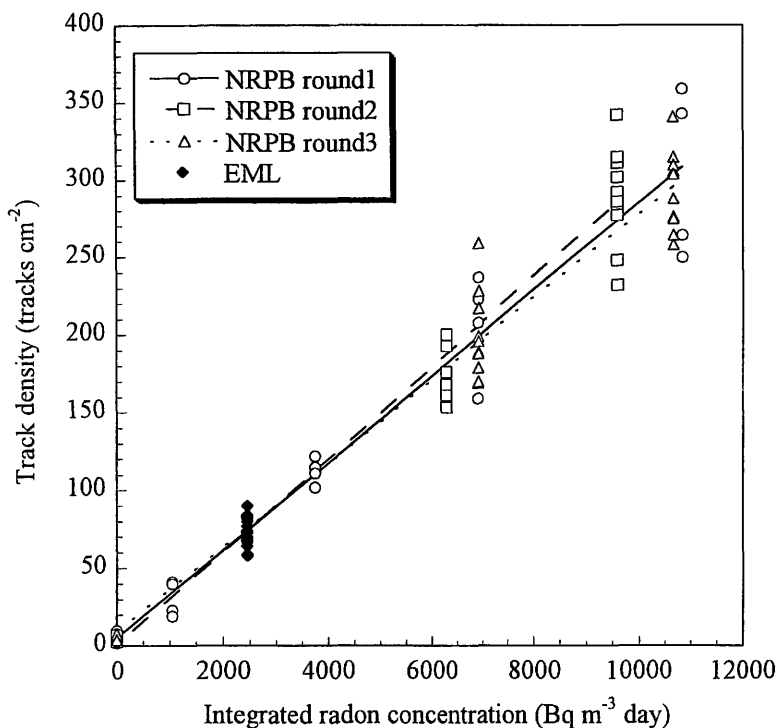


Fig. 1 Relationship between the track density and integrated Rn concentration.

## IV 結果および考察

### 1. 屋内ラドン濃度

調査を実施した940家屋の結果のうち、引越、不適切な設置場所、測定器の破損による中断等の理由で1年をとおして結果が得られなかった家屋を除いた899家屋の測定結果<sup>7)</sup>を解析に用いた。四半期ごとに得られた4つの測定結果を算術平均し、ラドン濃度の年平均値とした。その結果を図2に示す。算術平均、中央値および幾何平均値はそれぞれ15.5、11.7、12.7 Bq m<sup>-3</sup>であった。最大値は208 Bq m<sup>-3</sup>であった。ラドン濃度を昇順に並べて全体の90および97.5%の範囲にあるラドン濃度を表す、90および97.5パーセンタイルはそれぞれ27および52 Bq m<sup>-3</sup>であった。今回の調査からわが国は90%の家屋が27 Bq m<sup>-3</sup>以下のラドン濃度であることが確認された。

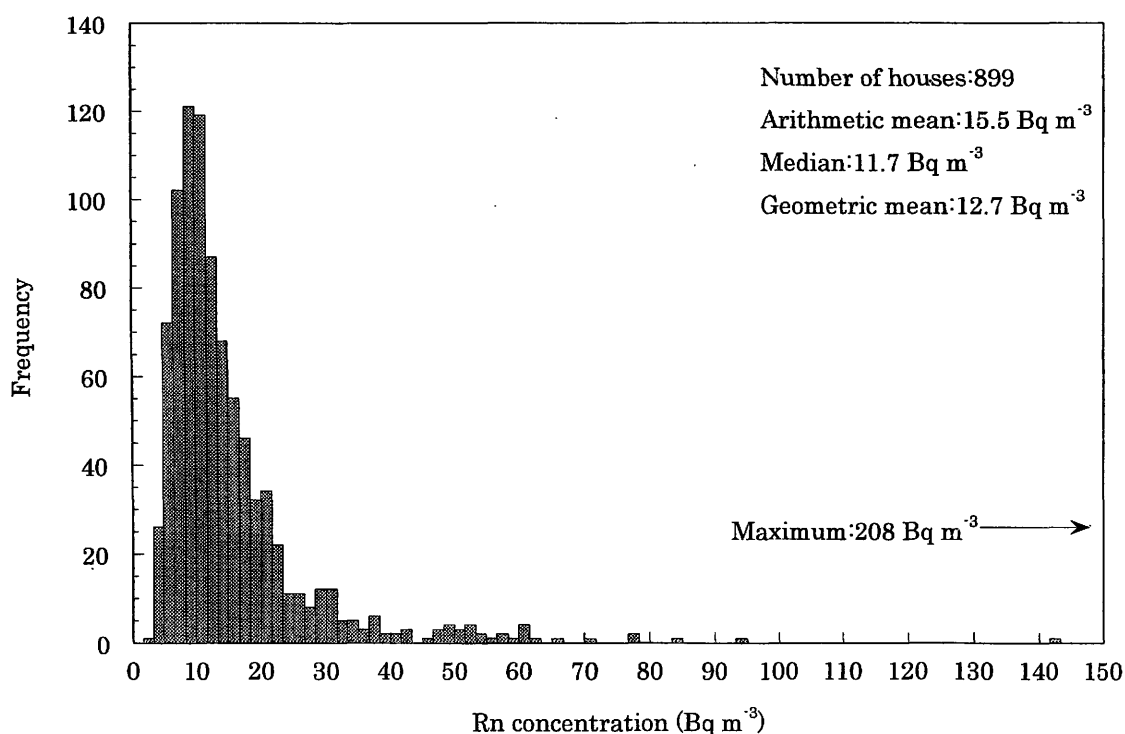


Fig. 2 Histogram of indoor Rn concentration.

### 2. 地方別ラドン濃度

ラドンは空間 $\gamma$ 線量率と同様にその地域の地質と関連があることが知られている<sup>8,9)</sup>。そこで、得られた結果を北海道・東北、関東、中部、中国、四国、および九州・沖縄の7地方に分けラドン濃度の差異を検討した。表1に結果を示す。中央値と比較すると中国地方が最も高く続いて近畿地方および九州・沖縄地方であった。一方最も低いのは関東地方であり、花崗岩の多い西日本では比較的高く、関東ローム層に覆われた関東地方では低い結果となった。

### 3. 家屋種別ラドン濃度

ラドンは地殻の他、家屋を構成する建材からも発生している。建材は家屋の種類により異なるため家屋種別にラドン濃度を比較した。家屋を5つに分類しラドン濃度とともに表2に示す。その結果、プレ

ハブ、鉄骨、木造家屋が低くコンクリートおよびコンクリートブロックの家屋のラドン濃度が高いことがわかった。これは、換気率および建材の差によるものと思われる。

本調査の家屋が実際の家屋種割合とどの程度整合性があるかを確認するため住宅統計調査<sup>10)</sup>との比較を行った。しかし、住宅統計調査の分類と本調査の分類が異なるため、それぞれに共通した家屋種すなわち木造、コンクリート、コンクリートブロックの3種類の家屋について比較した。その結果、木造家屋の割合が5.6%高く、コンクリート家屋の割合が6.7%低かったが、ラドン濃度の平均値には大きく影響しないと思われる。

Table 1 Annual mean indoor Rn concentration in seven regions (Bqm<sup>-3</sup>).

Region	Number of houses	Arithmetic mean	Standard deviation	Median	90 percentile	Maximum
Hokkaido & Tohoku	138	16.0	12.9	12.4	31	85
Kanto	134	12.4	9.5	9.7	22	70
Chubu	174	14.1	9.4	11.5	26	63
Kinki	132	17.1	16.2	12.7	29	143
Chugoku	95	16.7	9.8	14.4	29	55
Shikoku	78	14.4	8.7	12.2	21	61
Kyushu & Okinawa	148	17.6	20.4	12.7	29	208
Total	899	15.5	13.5	11.7	27	208

Table 2 Annual mean indoor Rn concentration in each house structure type (Bqm<sup>-3</sup>).

Structure type	Number of houses	Arithmetic mean	Standard deviation	Median	90 percentile	Maximum
Wooden	597	12.9	8.1	10.9	21	78
Concrete	182	23.1	15.5	18.7	47	94
Steel frame	90	12.8	9.5	11.0	20	77
Concrete block	16	42.5	55.4	22.6	163	208
Prefabricated	6	10.0	3.8	9.5	17	17

#### 4. 家屋種別ラドン濃度の季節変動

屋内のラドン濃度は人の生活習慣(例えば窓の開閉)に大きく影響される。このため、その変動を把握することは被ばく線量評価の際に重要となってくる。変動の周期には日変動、年変動等があるが、本調査では測定期間が3ヶ月であるため季節変動について検討した。家屋種別に四半期毎の季節変動を図3に示す。季節変動では家屋種の差異は認められず、夏季に低く冬季に高い傾向が認められた。これは、窓の開閉の頻度の違いによる換気率の変化が原因であると考えられた。コンクリートおよびコンクリートブロックの家屋は木造の家屋と比較して季節間の変動の差が大きく、家屋の気密性の違いが如実に示された。

#### 5. ラドンからの年実効線量の試算

年実効線量を本調査で得られた結果を基に試算した。一般公衆のラドンからの年実効線量(H)の評価方法はUNSCEARの1993年報告書に記載されている。算出式を下記に示す。

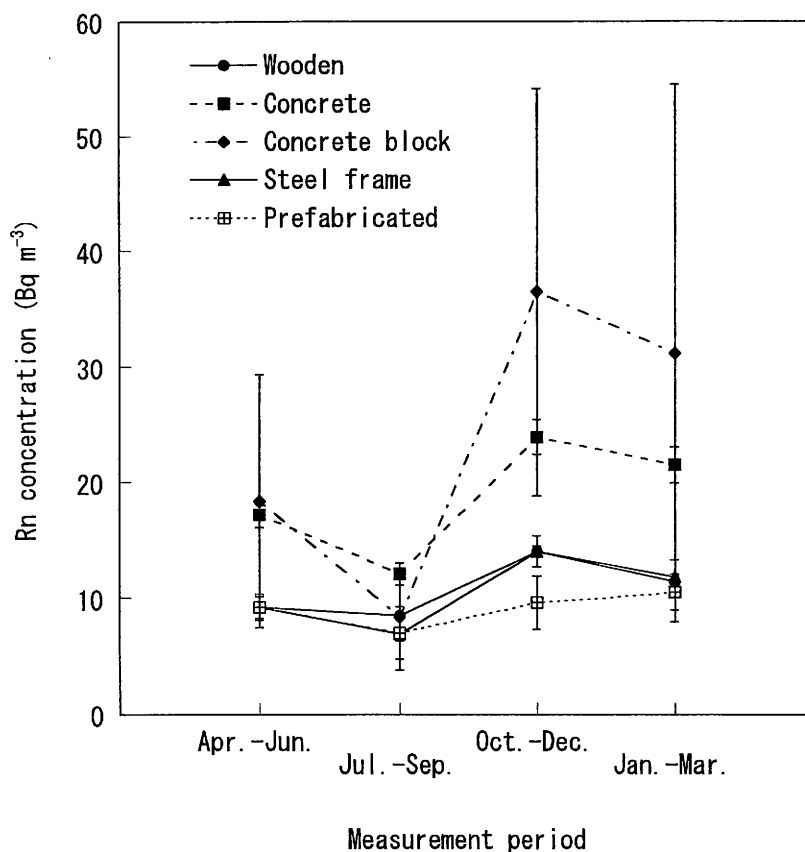


Fig. 3 Seasonal variation of indoor Rn concentration.

$H = \text{屋内ラドン濃度 [Bq m}^{-3}] \times 0.4 \text{ [平衡ファクタ]} \times 0.8 \text{ [居住係数]} \times 8760 \text{ [h y}^{-1}] \times 9 \times 10^{-6} \text{ [mSv Bq}^{-1} \text{ h}^{-1} \text{ m}^3] + \text{屋外ラドン濃度 [Bq m}^{-3}] \times 0.8 \text{ [平衡ファクタ]} \times 0.2 \text{ [居住係数]} \times 8760 \text{ [h y}^{-1}] \times 9 \times 10^{-6} \text{ [mSv Bq}^{-1} \text{ h}^{-1} \text{ m}^3]$

この式に本調査で得られた屋内ラドン濃度の平均値  $15.5 \text{ Bq m}^{-3}$  を代入し、屋外ラドン濃度は平成9年度から日本分析センターが実施している屋外ラドン濃度調査<sup>11)</sup>の平均値である  $6.2 \text{ Bq m}^{-3}$  を代入した。その結果、わが国におけるラドンからの年実効線量は  $0.47 \text{ mSv y}^{-1}$  と見積もられ、UNSCEAR<sup>12)</sup>が示している世界の平均値の約3分の1程度であり、非常に低いことがわかった。これは、屋内ラドン濃度が低いためであり換気率の高い木造家屋が多いことが理由の一つとして考えられた。

## V. まとめ

実施した屋内ラドン濃度の全国調査は合計899家屋でありラドン濃度の平均値は  $15.5 \text{ Bq m}^{-3}$ 、最高値は  $208 \text{ Bq m}^{-3}$  であった。コンクリートおよびコンクリートブロック家屋のラドン濃度が比較的高く、季節変動は家屋種によらず夏季低く、冬季に高い傾向が認められた。また、地域による差異も認められ、西日本が比較的高く、関東ロームに覆われている関東地方は低いことがわかった。これは、地質の影響

によるものと考えられた。ラドンからの年実効線量を試算したところ0.47 mSv y<sup>-1</sup>であり、UNSCEARが示している世界の平均値と比較すると本調査の結果は約3分の1であり低いことがわかった。

## VI. 今後の課題

本調査結果は屋内ラドン濃度の調査結果であり、今後屋外および職場環境におけるラドン濃度調査を実施し、より正確なラドン濃度の把握とそれを基にした線量評価を行うことが重要であると思われる。なお、屋外ラドン濃度については、現在日本分析センターにおいて屋内調査と同様な手法で調査を実施中である。また、2000(平12)年度からは職場環境におけるラドン濃度調査も開始される予定であり、これらの調査によりわが国の代表的な屋内、屋外及び職場環境におけるラドン濃度が求められることであろう。

今回の校正実験は英国で行われたが、我が国においてもまずトレーサビリティが確立したラドンの標準場を早急に整備する必要があると思われる。また、実効線量に大きく寄与する平衡ファクタ、居住係数、換算係数の各ファクタの精度を高め、将来的にはラドンによる生物への影響までを網羅した研究に取り組むことも必要であろう。

本報告は1992(平4)年度から1996(平8)年度にかけて科学技術庁の委託により財団法人日本分析センターが実施した「屋内ラドン濃度の全国調査」の成果<sup>13)</sup>の一部をまとめたものである。

## 謝辞

調査に協力して下さった全国の都道府県並びに家屋の方々に感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 月刊地球、宇宙と地球の放射線環境、22(1998)
- 2) UNSCEAR, Sources and Biological Effects, United Nations, New York(1982)
- 3) 伊藤和男、浅野賢二：生活環境におけるラドン濃度とそのリスク。放医研環境セミナーシリーズ, 15, 134-144(1989)
- 4) M. Doi & S. Kobayash : The passive radon thoron discriminative dosimeter for practical use. *Hoken Butsuri*, 29, 155-166(1994)
- 5) 真田哲也、篠田芳晴、上杉正樹：第34回理工学における同位元素研究発表会要旨集、142(1997)
- 6) J. C. Miles, E. J. Stares, K. D. Cliff & J. Sinnaeve : Results from an international intercomparison of techniques for measuring radon and radon decay products. *Radia. Prot. Dosim.*, 7, 1-4(1983)
- 7) T. Sanada, K. Fujimoto, K. Miyano, M. Doi, S. Tokonami, M. Uesugi & Y. Takata : Measurement of nationwide indoor radon concentration in Japan. *J. Env. Radioact.*, 45, 129-137(1999)
- 8) S. Abe, K. Fujitaka, M. Abe & K. Fujimoto : Extensive field survey of natural radiation in Japan. *J. Nucl. Sci. and Technol.*, 18, 21-45(1981)
- 9) M. Furukawa : Natural Radiation Level in Japan Island. *J. Geography*, 102, 868(1993)

- 10) 総務庁統計局、平成5年度住宅統計調査報告(1995)
- 11) ラドン濃度測定調査結果報告書(平成11年3月)、財団法人日本分析センター(1999)
- 12) UNSCEAR, Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York(1993)
- 13) ラドン濃度水準調査総合委託成果報告書(平成4年度～平成8年度調査結果)、財団法人日本分析センター(1996)

## 屋内ラドン濃度の地域特性

藤元 憲三

放射線医学総合研究所 人間環境研究部

### Locality of Indoor Radon Concentration

Kenzo FUJIMOTO

National Institute of Radiological Sciences

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

#### Abstract

Indoor radon concentration in Japan shows a lower value compared to other countries. Even the maximum value is in the range of a few hundred Bqm<sup>-3</sup>. However, the indoor radon concentration reveals some locality. One typical locality is found in Hokkaido area where they have relatively higher radon concentration than what is expected from the gamma exposure rate since the gamma exposure rate has relatively good relationship with indoor radon. In Hokkaido they have more air tight building than other parts of Japan due to the cold weather in winter. The year of construction was also considered to obtain the current radon concentration for each structure type as a function of year of construction. The indoor radon concentration in wooden houses was found to be relatively constant with year of house construction until 1960 and then decrease, whereas the radon concentration in concrete houses increased sharply in house constructed after 1970. This time trend is found every area in Japan. Seasonal variation was observed in the successive four three-month period measurements. In general the highest radon concentration was observed in the measurement from October to December while the lowest from June to August. However, the prefectures facing Japan Sea show a different pattern, i. e., the seasonal variation is suppressed and the measurement during April to June shows the lowest concentration.

これまでに実施された全国レベルの屋内ラドン濃度測定結果によれば我が国の屋内ラドン濃度は諸外国に比べても低く、最大濃度でも200ないし300Bqm<sup>-3</sup>に過ぎない。この比較的低いラドン濃度を示す我が国の屋内ラドン濃度ではあるが地域的な差異が認められている。図1には屋内ラドン濃度と大地からのガンマ線の県別の濃度を示してある<sup>1,2)</sup>。大地からのガンマ線線量率はウラン系列のみならずトリウム系列、カリウムからのガンマ線により構成されてはいるものの全般的な傾向としては両者には良い相関が認められている。図2は約4,242地点についてその両者の相関を示したものである<sup>3)</sup>。ラドンの濃度分布が対数正規分布に近い分布を示すためラドン濃度に関しては対数軸で表示してある。この相関図から



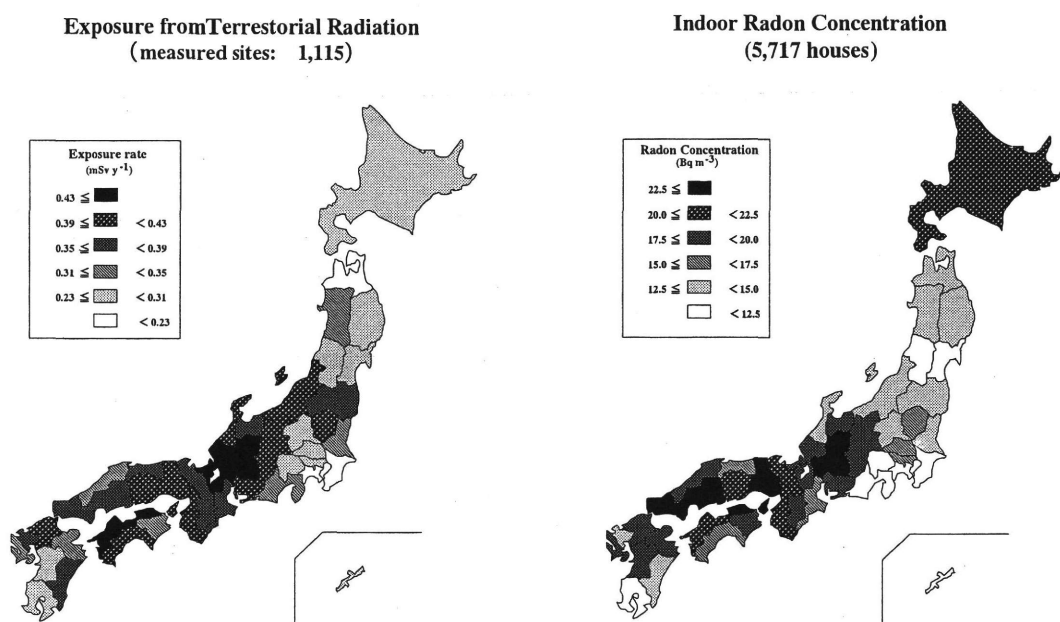


Fig. 1 Average exposure rate and indoor radon concentration in each prefecture in Japan.

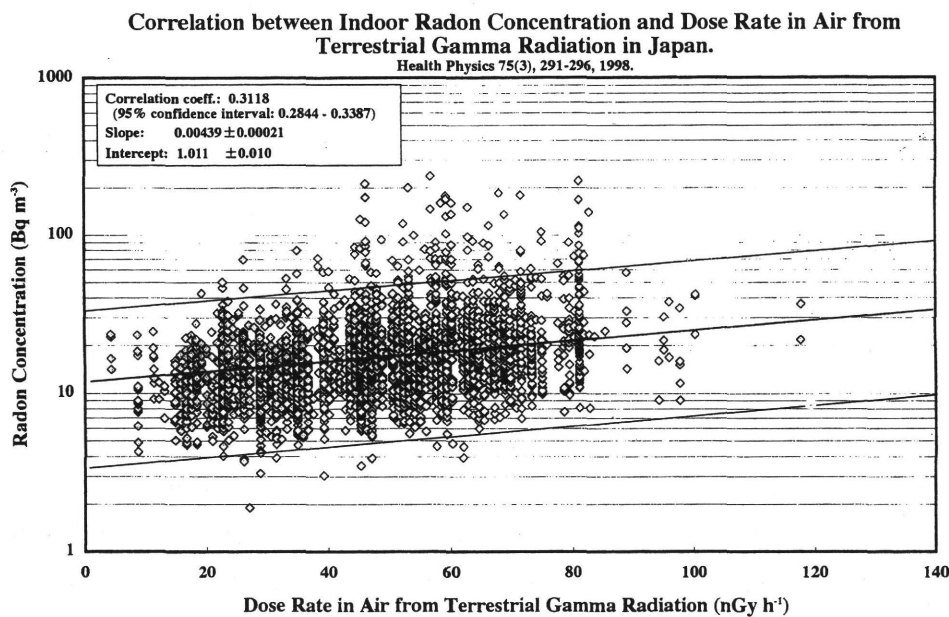


Fig. 2 Correlation between indoor radon concentration and exposure rate in each municipality.

言えることはガンマ線の線量率が低い地域はラドン濃度が相対的に低く、ガンマ線線量率が高い地域は相対的にラドン濃度が高い傾向を示すということである。更に詳細に傾向を検討すると分布の中のラドン濃度の低い部分を見ても大地からのガンマ線による線量率との間に相関があることが分かる。またラドン濃度の高い部分についても同じ傾向が認められている。これはガンマ線線量率が低い地域ではたとえ換気率の低い気密性の良い家屋が存在しても余りラドン濃度が高くなり得ず、比較的低い濃度に留まっていること、また、逆にガンマ線線量率の高い地域では気密性の良い家屋ではラドン濃度が高くなり得

ることを示している。ただ、同じガンマ線線量率を示す地域においても家屋によって屋内ラドン濃度には大きな幅があることが分かる。先ほどの図1に戻ると、ガンマ線線量率の影響を受けてガンマ線の線量率の高い岐阜から関西以西ではラドン濃度が高くなっていることが分かる。しかし、この一般的な傾向から外れる地域が北海道である。北海道ではガンマ線線量率は低いけれども、気候的に寒く、家屋構造が他の地域よりも気密性の優れた造りとなっており、その結果、屋内ラドン濃度が高くなる傾向を反映しているものと考えられる。

次に家屋の歴史的な変遷を検討する<sup>4)</sup>。図3が屋内ラドン濃度の歴史的変遷を示すものである。但しここでは過去の屋内ラドン濃度を計測することは出来ないので、現在計測した屋内ラドン濃度を建築年ごとに家屋を分類し検討を行っている。木造家屋は我が国では古くから存在し、1688年に建築された家屋がなお住まいとして利用されている。一方、コンクリート家屋が一般家庭の建築物として利用され始めたのは主として戦後であって、それ以前には一般家屋としてはほとんど見受けられず、統計上も現れてこない。木造家屋の場合にはかなり昔に建築された家屋から最近の家屋まで屋内ラドン濃度に大きな変化は認められていない。強いて言えば、第二次世界大戦後、屋内ラドン濃度に若干の減少傾向が認められている。一方、コンクリート家屋について見るとコンクリート家屋が一般住宅として導入され始めた頃には木造家屋と屋内ラドン濃度に差異はなく同程度の濃度を示している。しかし、その後、木造家屋は若干の減少を示しているのに対してコンクリート家屋の場合には逆に上昇傾向が認められ、最近建てられたコンクリート家屋においては1960年代のものに比べると1.5倍となっている。コンクリート家屋においては1960年以来屋内ラドン濃度は経年的に増加傾向を示している。コンクリートブロック家屋は調査対象家屋数が少ないため結果に大きな変動幅が認められるものの、コンクリート家屋と同じ傾向

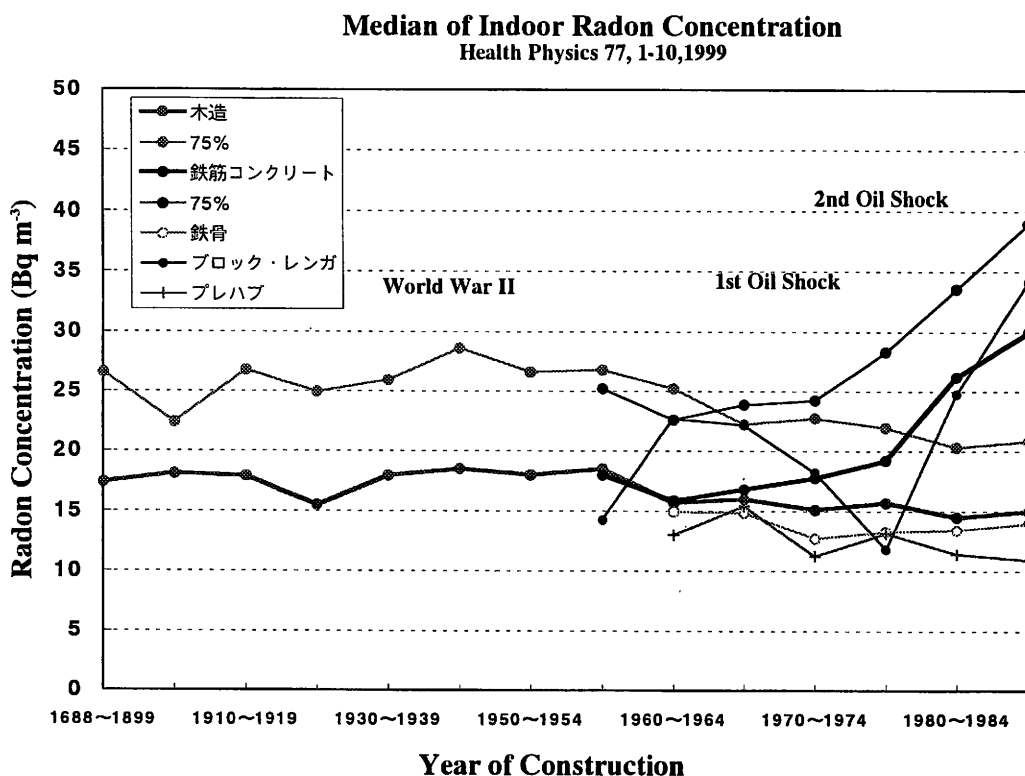


Fig. 3 Time trend of indoor radon concentration.

を示しているようである。これに比べ、鉄骨やプレハブの家屋は1965年ごろに誕生して以来一貫して木造よりも低い値を保っている。この図3は放医研の安全解析グループの全国ラドン濃度調査結果であるが、調査家屋数が少なく変動が大きいものの分析センターの全国調査結果においても同じ傾向が認められている。しかも、このコンクリート家屋のラドン濃度上昇傾向は安全解析グループの調査後に実施された分析センターの調査においては更に新しい建築年の家屋群が存在しているが、その家屋群においても引き続き増加が認められており、この増加傾向は現在も続いているものと考えられる。

次にこの歴史的な変遷の地域差について調べてみる。調査結果を家屋毎更には地方毎に分割するため、それぞれのグループの調査数が少なくなり変動が大きくなっていくものの全国で纏めた結果とほとんど同じ傾向を示している。特に、地方毎に分けてもコンクリート家屋は同じ傾向を示し、近年屋内ラドン濃度が増加傾向にある。地方毎に分けて屋内ラドン濃度を調べてみると前述のガンマ線線量率を反映して、ガンマ線線量率の高い地方では屋内ラドン濃度が高くなっていることが認められる。更に、大きな特徴は近畿、中国地方においてラドン濃度に多きなばらつきが認められる点である。近畿、中国地方は相対的にラドン濃度が高く、変動は他の地方に比べ増強されるものであるが、その割合を考慮して、ばらつきを平均値で除して相対的な変動を見ても、近畿、中国地方はラドン濃度の分布には大きな広がりがあることが認められている。特に広島県では比較的ラドン濃度の高い家屋が多く認められている。図4は都道府県別の木造家屋の平均ラドン濃度と75, 90パーセンタイルを示しているもので近畿、中国地方で高い家屋が存在することを示している<sup>2)</sup>。一方、図5は都道府県別の非木造家屋の平均ラドン濃度と75, 90パーセンタイルを示しているものである。木造家屋の場合とは趣が異なり、近畿、中国地方だけでなく全ての都道府県でラドン濃度の高い家屋がばらばらと認められている。これは木造家屋の場合には地方毎の土地の影響がより強く反映されているが、非木造家屋の場合には地方の特徴というものが消し去られ、建物からの影響がより強調されていることを物語っている。

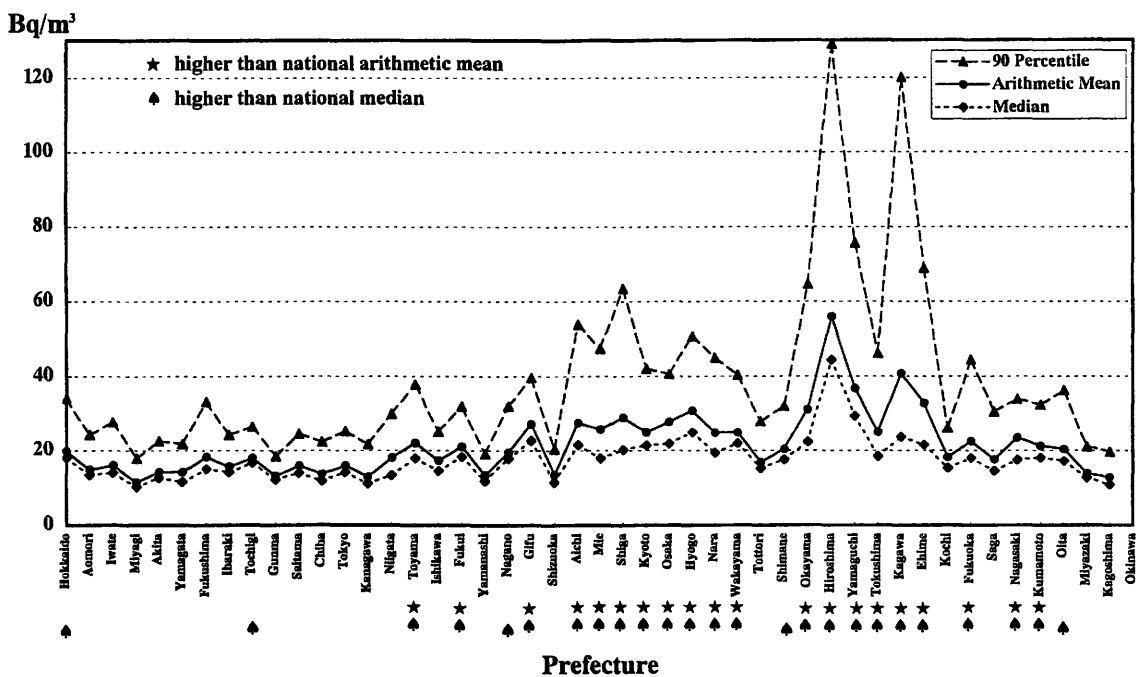


Fig. 4 Prefectural average of indoor radon concentration in wooden houses.

次に季節変動に関する考察を行ってみる。分析センターの測定では三か月ごとのラドン濃度が得られている<sup>5,6)</sup>。それぞれを第1、第2、第3、第4四半期に分類して都道府県別に表示した結果が図6である。第1、第2、第3、第4四半期はそれぞれ4-6、7-9、10-12、1-3月の期間に対応するものである。北海道のようにどの四半期も同じように高く出ている場所と、第2四半期は大きく低く、第3ま

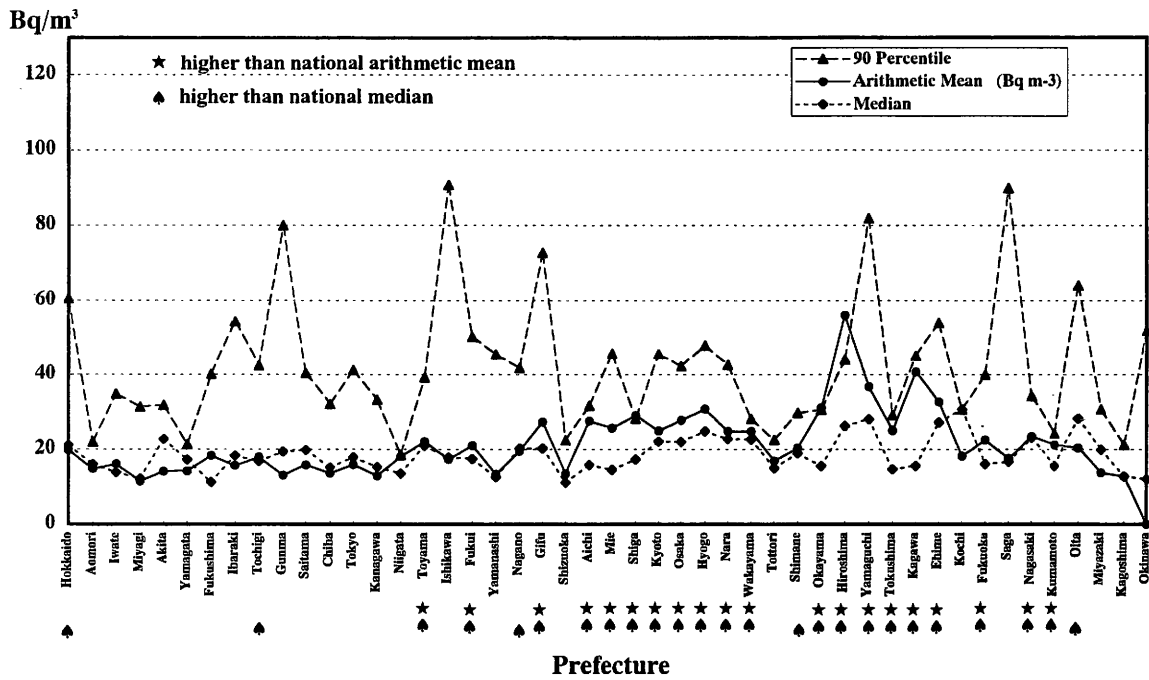


Fig. 5 Prefectural average of indoor radon concentration in non-wooden houses.

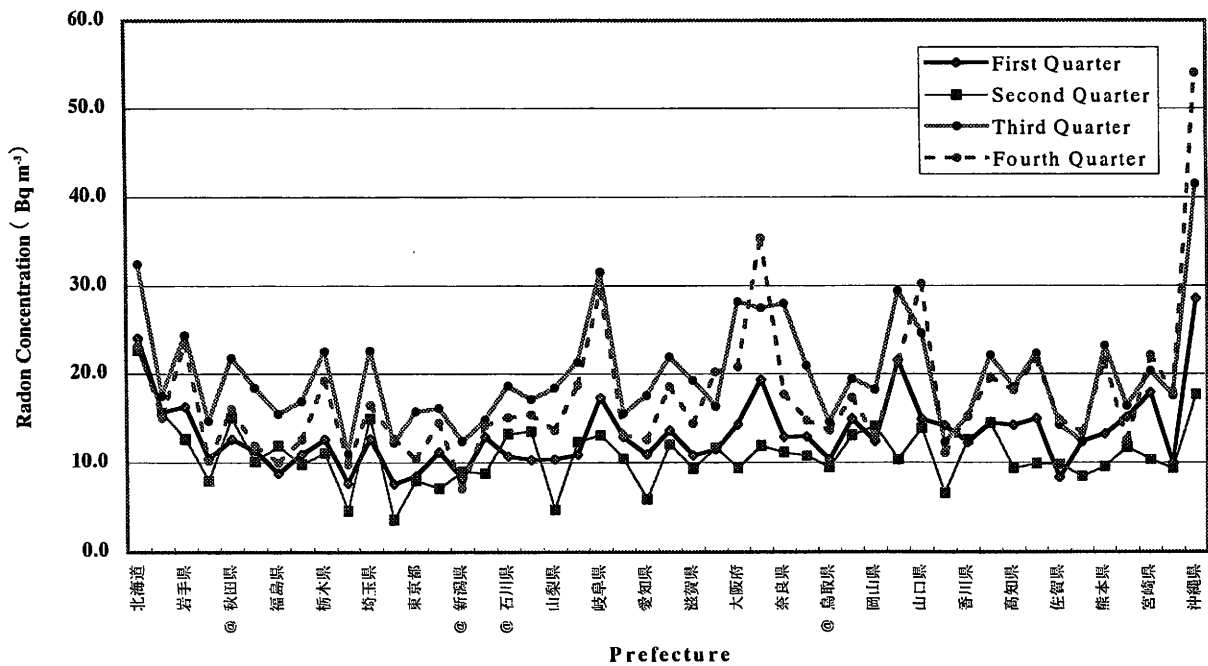


Fig. 6 Seasonal variation of indoor radon concentration in each prefecture.

たは第4 四半期が高く出ている場所とが存在している。このデータでは都道府県別の家屋数が20軒と少ないため統計的な変動が大きく含まれているものの地方毎の特色がよく反映されている。この季節変動を日本海側、太平洋側、内陸県に分類して比べてみると、図7に示すように日本海側と太平洋側とは若干異なる季節変化が認められる。即ち、太平洋側では第2 四半期、即ち、夏場の開放的な生活を反映しもっとも低い値を示し、比較的大きな季節変動を示している。一方、日本海側では第1 四半期と第2 四半期の差は余りなく季節変動は太平洋側よりも小さくなっている。内陸県はそれほど県数が多くはないが全体的な傾向としては太平洋側の県と同じ様な傾向を示している。

我が国のラドン濃度は米国の環境保護庁のアクションレベル $150\text{Bqm}^{-3}$ を越える家屋の割合が0.4%と低く、岐阜県、大阪府、広島県、沖縄県に若干ラドン濃度の高い家屋は存在するが、高いラドン濃度が高い地域、Radon proneと呼べるような地域は幸いなことに存在していない。ただ、前述のようにコンクリート家屋においては近年屋内ラドン濃度が高くなる傾向が認められており、一つの技術的に高められた、即ち、technologically enhanced natural radiationと言うこととなる。この増加したラドン濃度からの被ばくに注意を払って低減するか否かは今のところ個人的な趣味の段階に留まっていると言える。

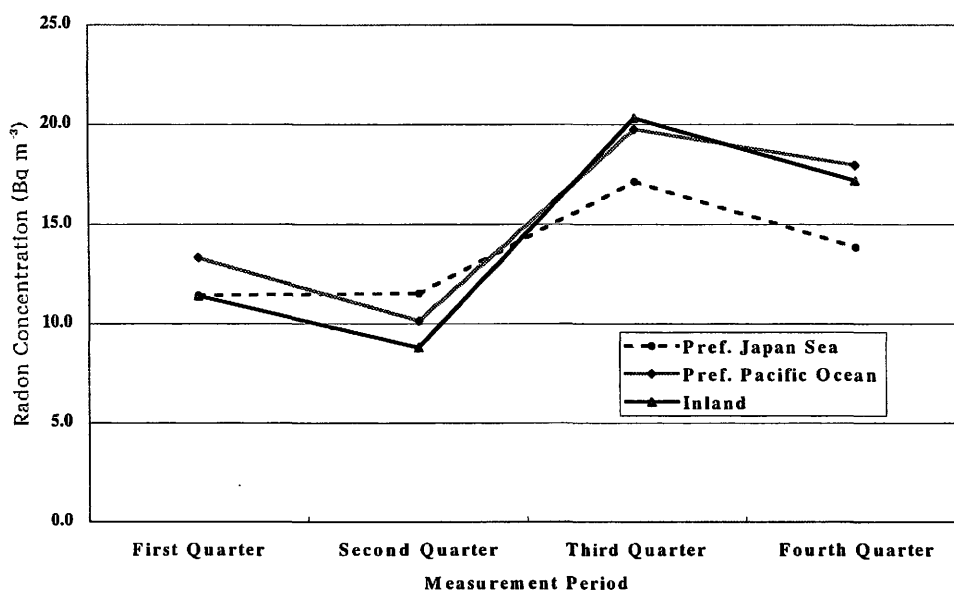


Fig. 7 Seasonal variation of prefectures facing Japan Sea, Pacific Ocean and inland.

## 参考文献

- 1) S. Abe, K. Fujitaka, M. Abe and K. Fujimoto : Extensive field survey of natural radiation in Japan. *J. Nucl. Sci. & Tech.* **18**, 21-45(1981)
- 2) 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)
- 3) K. Fujimoto : Correlation between Indoor Radon Concentration and Dose Rate in Air from Terrestrial Gamma Radiation in Japan. *Health Phys.*, **75**, 291-296(1998)
- 4) K. Fujimoto, T. Sanada : Dependence of Indoor Radon Concentration on the Year of House Construction. *Health*

*Phys.* **77**, 410-419 (1999)

5) ラドン濃度全国調査最終報告書, NIRS-R-32 (1997)

6) T. Sanada, K. Fujimoto, K. Miyano, M. Doi, S. Tokonami, M. Uesugi and Y. Takata : Measurement of Nationwide Indoor Rn Concentration in Japan. *J. Environ. Radioactivity*, **45**, 129-137 (1999)

## 職業環境におけるラドン濃度

服部 隆利  
(財)電力中央研究所

### Radon Concentrations in Some Workplaces

Takatoshi HATTORI

Central Research Institute of Electric Power Industry  
2-11-1, Iwado Kita, Komae-shi, Tokyo 201-8511, Japan

#### Abstract

Ventilation systems installed in indoor workplaces are periodically operated during business hours. In order to assess worker's radiation exposure level accurately, it is necessary to give careful considerations to the actual exposure time and the diurnal variations of radon concentration, equilibrium factor,  $F$ , and unattached fraction of potential alpha energy,  $f_p$ .

In this study, the simultaneous measurements of radon concentration,  $F$  and  $f_p$  were carried out for more than a year in the three kind workplaces, outdoor air, office rooms in the concrete building and nuclear power stations. As a result, the ratios of radon concentration averaged during business hours to one-day mean concentration were about 80% for outdoor air, about 65% in the office room and about 95% in the nuclear power station. The dose due to inhalation of radon progeny during business hours in workplaces were approximately 80%, 55% and 80% of those obtained from one-day mean values for outdoor, office and nuclear power station workers, respectively. Annual dose for office workers was highest of three kinds of workers. Taking business hours into consideration, about 20% of the dose for office workers decreased and the dose level was almost the same as for outdoor workers. It should be noted that dose assessment for workplaces without considering the actual exposure time would lead it to overestimation.

#### I. はじめに

線量評価を目的に大気中のラドン娘核種に対する曝露量を知るためには、その人が滞在する場所のラドン濃度レベル、ラドン濃度と曝露量とを関係づける際に重要なパラメータとなる平衡ファクタ ( $F$ )、ポテンシャル  $\alpha$  エネルギー (PAE) に対する非付着成分割合 ( $f_p$ )、およびその場所の滞在時間の把握が重要となる。このうち、最も地域的な変化が激しく、既存の情報も少なかったラドン濃度については、小型かつ低コストで、数ヶ月間の平均的なラドン濃度が測定できるパッシブモニタを用い、膨大な数の測定地点を対象とした大規模な調査が世界各国で続けられてきた。

人が滞在する主な場所としては、住居のほかに屋外を含めた職業環境があるが、住居と違い、屋内の職業環境では、勤務時間帯に限定して換気条件を良好にする場合が多い。このような場合、勤務時間帯におけるラドン濃度レベルと、パッシブモニタで得られる平均的なラドン濃度レベルは異なる可能性が高い。また、換気条件の変化に基づき大気中のエアロゾル濃度が変化することにより、Fや $f_p$ についても、大きな変化が生じる可能性がある。

本報では、職業環境におけるラドン濃度、Fや $f_p$ の年間を代表できる日周変動の調査に主眼を置き、屋外就業者や農業従事者等の職業環境として屋外を、会社員等が勤務する一般的な職業環境としてコンクリートビル内のオフィスを、さらに特殊な職業環境としては原子力発電所を調査対象に、ラドン濃度、F、 $f_p$  およびエアロゾル濃度の同時測定をいずれも1年間以上にわたって実施した結果を取りまとめる。また、調査対象の3つの職業環境で働く人の行動をモデル化し、線量評価に1日の平均ラドン濃度を用いる場合と勤務時間帯の平均ラドン濃度を用いる場合の線量を試算し比較を行った結果について考察する。なお、本報の主な部分は、電中研総合報告T44「ラドンとその娘核種の測定装置の開発と職場環境における線量試算」(1996)に発表したものである。

## II. 測定方法

Table 1に示す場所および期間で、ラドン濃度、ラドン娘核種濃度および各娘核種の非付着成分割合ならびにエアロゾル濃度の同時測定を実施した。

Table 1 Outlines of subject of our investigation.

	Outdoor	Office room A	Office room B	Nuclear power plant A	Nuclear power plant B
Period of measurements	Dec. 1993 ~ Apr. 1995	Dec. 1993 ~ Jul. 1994	Jul. 1994 ~ Feb. 1995	Aug. 1991 ~ Nov. 1992	
Locations	Tokyo (Kornae-shi)	Tokyo (Kornae-shi)		Hokkaido	Shizuoka
ventilation rate	-	< 0.1h <sup>-1</sup> , 8:30-17:30 mixture of recirculated air and outdoor air 7-10h <sup>-1</sup> , 8:00-20:00 recirculated air		14h <sup>-1</sup>	1.3h <sup>-1</sup> all time

ラドン濃度については、飯田<sup>1)</sup>が報告した手法を用いた連続測定装置によって、1時間毎に測定した。この装置は、サンプリング空気をメンブランフィルタを通して約15 lの捕集容器に約0.5 l/minで流入させ、装置内部でラドンが崩壊して生成する娘核種を、ZnS(Ag)を塗布したAl蒸着マイラー膜を捕集面とする電極に負の電圧を印加して捕集し、 $\alpha$ 線を計数する。捕集効率が湿度の変動によって変化するため、サンプリング空気はメンブランフィルタの前段で相対湿度1%未満に除湿している。1時間毎に積算される $\alpha$ 線の計数から、5時間前までに蓄積した娘核種による $\alpha$ 線の計数の影響を差し引き、これがラドン濃度に換算される。したがって、この装置で観測されるのは、1時間の平均ラドン濃度である。また、計数に起因する統計誤差が50%となる時の濃度は約1 Bq/m<sup>3</sup>である。トロンの影響を取り除くため、サ



ンプリング流量を低く設定しているが、測定対象のラドン濃度が急激に変動しても、本装置で得られる結果は30分程度の遅れで追従している。サンプリング空気の流量が低下したり湿度が上昇すると警報信号により測定は自動的に停止する。

ラドン娘核種濃度および各娘核種の非付着成分割合については、連続測定装置<sup>2)</sup>を用いて、屋外およびオフィス内では4時間毎、原子力発電所内では2時間毎に測定した。この装置は、<sup>218</sup>Po、<sup>214</sup>Pbおよび<sup>214</sup>Biの3つのラドン娘核種濃度とそれらの非付着成分濃度、ならびに3つのラドン娘核種およびPAEに対する非付着成分割合( $f_p$ )の測定が可能である。サンプリング空気は、ロール式のメンブランフィルタおよびワイヤスクリーンに10分間集塵された後、半導体検出器を用いて $\alpha$ 線のエネルギースペクトルが10分間と38分間の2回続けて測定される。この組み合わせは、<sup>218</sup>Poが最も精度良く測定できるように設定されている。ラドン娘核種濃度は、1回目に測定されたエネルギースペクトルから得られる<sup>218</sup>Poおよび<sup>214</sup>Poの放出する6.0MeVおよび7.7MeVの $\alpha$ 線による計数値と2回目に測定されたエネルギースペクトルから得られる<sup>214</sup>Poおよび<sup>212</sup>Poの放出する7.7 MeVおよび8.8 MeVの $\alpha$ 線による計数値を、サンプリング流量、フィルタの捕集効率および発現効率、ならびに計数効率で補正して換算している。したがって、この装置で観測されるのは、4時間毎あるいは2時間毎の10分間の平均ラドン娘核種濃度である。また、計数に起因する統計誤差が50%となる時のラドン娘核種濃度は約1 Bq/m<sup>3</sup>以下である。集塵時に、サンプリング流量が低下したりフィルタ後段での圧力が上昇すると警報信号により測定は自動的に停止する。

平衡ファクタ(F)については、4時間あるいは2時間毎の<sup>218</sup>Po、<sup>214</sup>Pbおよび<sup>214</sup>Biの3つのラドン娘核種濃度から平衡等価ラドン濃度を求め、これを同時刻に得られたラドン濃度で除することにより評価した。また、エアロゾル濃度については、凝縮核測定器の一種であるポラックカウンタにより4時間毎に測定した。エアロゾル測定のための空気サンプリングは、ラドン娘核種濃度の測定のためのサンプリングと同時にを行った。

### Ⅲ. 測定結果

東京の郊外にあたる狛江市の屋外<sup>3)</sup>、狛江市内の2つのオフィス内<sup>4)</sup>、ならびに海に面する2つの原子力発電所の建屋内<sup>5,6)</sup>、におけるラドン濃度、平衡ファクタ(F)、ポテンシャル $\alpha$ エネルギー(PAE)に対する非付着成分割合( $f_p$ )の測定結果について、測定時刻別に平均して得られた日周変動をFig. 1に示す。オフィス内の結果については、平日と休日の間で大きな差異が認められたため、人が勤務する平日の結果を用いた。同図から、ラドン濃度の日周変動は屋外およびオフィス内で顕著で、原子力発電所の建屋内ではほとんど変化がないことがわかる。また、Fの日周変動については、屋外、オフィス内、原子力発電所の建屋内のすべての場合についてほとんど変化が認められないといえる。さらに $f_p$ については、エアロゾル濃度との関連が強いため、エアロゾル濃度の日周変動が顕著だったオフィス内では、夜間に高く早朝に最大値を示す傾向が認められた。しかし、エアロゾル濃度の日周変動が小さい屋外および原子力発電所の建屋内については、 $f_p$ の日周変動はほとんど認められないことがわかる。

Table 2には、屋外、オフィス内、原子力発電所の建屋内において得られたラドン濃度、F、 $f_p$ およびエアロゾル濃度の1日の平均値と、勤務時間帯に仮定した9時から17時までの平均値を取りまとめて示す。F、 $f_p$ およびエアロゾル濃度については、測定結果が2時間毎あるいは4時間毎しかない。このため、勤

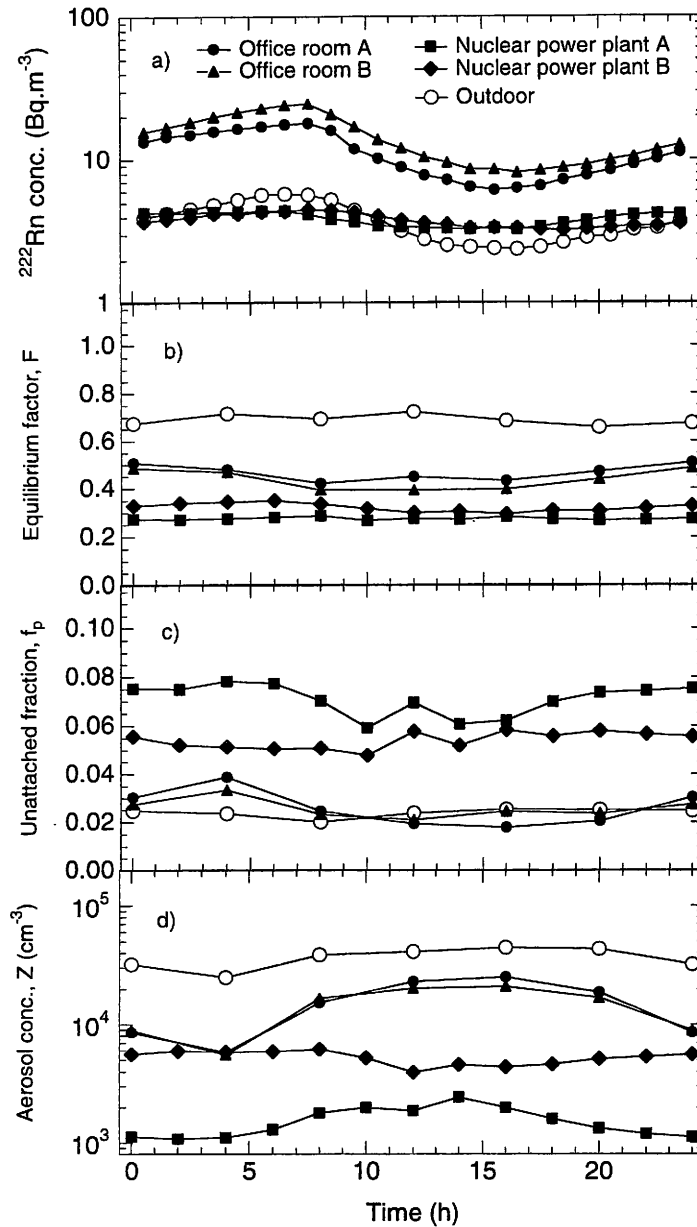


Fig. 1 Diurnal variations of a)  $^{222}\text{Rn}$  concentration, b) equilibrium factor, c) unattached fraction and d) aerosol concentration obtained in outdoor air, office rooms and nuclear power plants.

務時間帯の平均値は、2時間毎に測定を行った原子力発電所の建屋内の場合には、10時、12時、14時および16時のデータの平均を、4時間毎に測定を行った屋外およびオフィス内では12時および16時のデータの平均を求めて得た。同表から、勤務時間帯のラドン濃度は、1日平均のラドン濃度に対して、屋外では約80%、オフィス内では約65%、原子力発電所の建屋内では約95%であったことがわかる。Fについては、いずれの職場においても、勤務時間帯と1日の平均値は約10%以内で一致した。勤務時間帯の $f_p$ と1日平均の $f_p$ の値は、屋外および原子力発電所の建屋内では、約10%以内で一致したが、オフィス内では勤務時間帯の $f_p$ の方が10~30%程度低かった。

Table 2 Comparison between mean values during business hour and one-day mean values of  $^{222}\text{Rn}$  concentration, equilibrium factor, F, unattached fraction,  $f_p$ , and aerosol concentration obtained in outdoor air, office rooms and nuclear power plants.

		Outdoor	Office room A	Office room B	Nuclear power plant A	Nuclear power plant B
Mean during business hour (A)	Rn ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ )	3.0	8.1	11.0	3.4	3.7
	F	0.71	0.44	0.40	0.28	0.31
	$f_p$	0.025	0.019	0.023	0.063	0.054
	Aerosol ( $\text{cm}^{-3}$ )	$4.3 \times 10^4$	$2.4 \times 10^4$	$2.1 \times 10^4$	$2.0 \times 10^3$	$4.5 \times 10^3$
One-day mean (B)	Rn ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ )	3.8	12.8	16.2	3.9	3.8
	F	0.69	0.47	0.44	0.28	0.32
	$f_p$	0.024	0.026	0.026	0.071	0.054
	Aerosol ( $\text{cm}^{-3}$ )	$3.7 \times 10^4$	$1.5 \times 10^4$	$1.4 \times 10^4$	$1.6 \times 10^3$	$5.2 \times 10^3$
A/Bx100(%)	Rn	80	63	68	88	97
	F	102	95	90	100	95
	$f_p$	103	72	88	89	100
	Aerosol	117	161	147	132	87

#### IV. 考察

##### 1. 線量評価

上述の測定結果をもとに、線量評価に1日の平均ラドン濃度を用いる場合と勤務時間帯の平均ラドン濃度を用いる場合の線量を試算し比較を行った結果について考察する。職業環境で働く人がラドン娘核種によって受ける線量を試算するためには、人の行動形態、行動範囲、滞在場所とその時間比率を仮定する必要がある。本研究では、原子力安全研究協会に設けられた生活環境放射線調査専門委員会が1992年8月に取りまとめた「生活環境放射線(国民線量の算定)」にある東京の有業男性と全国農林漁業者の滞在場所と時間表を参考に、屋外就業者、オフィス就業者および原子力発電所就業者ともに、9時から17時の8時間を職場で過ごすとして仮定し、Table 3に示すような滞在場所とその滞在時間数を仮定した。

Table 4に、屋外就業者、オフィス就業者および原子力発電所就業者が、それぞれの職場で9時から17時の8時間にラドン娘核種を吸入することによって受ける線量を試算した結果を示す。線量は、Table 2.に示したラドン濃度、平衡ファクタ(F)、ポテンシャル $\alpha$ エネルギー(PAE)に対する非付着成分割合( $f_p$ )およびエアロゾル濃度の1日の平均値を用いて計算したケースと勤務時間帯に仮定した9時から17時ま

Table 3 Occupancy time of workers for dosimetry.

Place	Occupancy time ( $\text{h}\cdot\text{d}^{-1}$ )		
	Outdoor worker	Office worker	Nuclear power plant worker
Indoor			
Dwelling	16	14	14
Office	0	8	0
Nuclear power plant	0	0	8
Outdoor	8	2	2

Table 4 Effective dose equivalents of outdoor, office and nuclear power plant worker exposed during business hour.

Model	Effective dose equivalent [ $\mu\text{Sv}\cdot(8\text{h})^{-1}$ ]			
	Outdoor worker	Office worker	Nuclear power plant worker	
with mean values during business hour				
A	Jacobi-Eisfeld	0.19	0.30	0.10
	James-Birchall	0.20	0.30	0.16
with one-day mean values				
B	Jacobi-Eisfeld	0.23	0.53	0.12
	James-Birchall	0.25	0.59	0.19
A/B x 100 (%)				
	Jacobi-Eisfeld	82	57	84
	James-Birchall	83	52	80

での8時間の平均値を用いて計算したケースについて求めた。オフィス就業者および原子力発電所就業者に対する計算には、Table 2のオフィスのA室およびA発電所の結果をそれぞれ用いた。線量評価モデルには、ICRPのPublication 32で採用された作業者に対する代表的なモデルのJacobi-EisfeldモデルおよびJames-Birchallモデルを適用した。同表から、職場で勤務時間帯にラドン娘核種によって受ける線量は、屋外就業者では勤務時間を考慮にいれない線量評価結果の約80%、オフィス就業者では約55%、原子力発電所就業者では約80%であることが明らかとなる。

またTable 5には、屋外就業者、オフィス就業者および原子力発電所就業者が、Table 3に示すような行動形態をとった時、1年間にラドン娘核種を吸入することによって受ける年間線量を試算した結果を示

Table 5 Annual effective dose equivalents of outdoor, office and nuclear power plant worker.

Model	Effective dose equivalent ( $\text{mSv}\cdot\text{y}^{-1}$ )			
	Outdoor worker	Office worker	Nuclear power plant worker	
with mean values during business hour				
A	Jacobi-Eisfeld	0.32	0.35	0.28
	James-Birchall	0.35	0.37	0.32
with one-day mean values				
B	Jacobi-Eisfeld	0.34	0.44	0.29
	James-Birchall	0.37	0.48	0.34
A/B x 100 (%)				
	Jacobi-Eisfeld	96	80	96
	James-Birchall	96	78	95

す。住居内のラドン濃度は、1988年のUNSCEAR報告に採用された日本の住居に対する値を参考にして  $10\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 、平衡ファクタは0.4、 $f_p$ には0.025を仮定した。また、勤務時間帯以外の時間に屋外で受ける線量算定には、勤務時間帯の屋外ラドン濃度の値を適用した。同表から、原子力発電所従業員の年間線量は屋外従業員よりも低いことが明らかとなる。この原因は、原子力発電所の建屋内の平衡等価ラドン濃度が屋外よりも低かったためである。3種類の従業員のうちオフィス従業員の年間線量が最も高かったが、勤務時間帯を考慮にいれた線量評価を行うとオフィス従業員の年間線量は約20%減少し、屋外従業員とほぼ同程度となった。このように、換気条件が時間帯によって異なる職業環境のラドン娘核種による線量評価は、勤務時間帯を考慮にいれないと過大評価になることに注意が必要である。

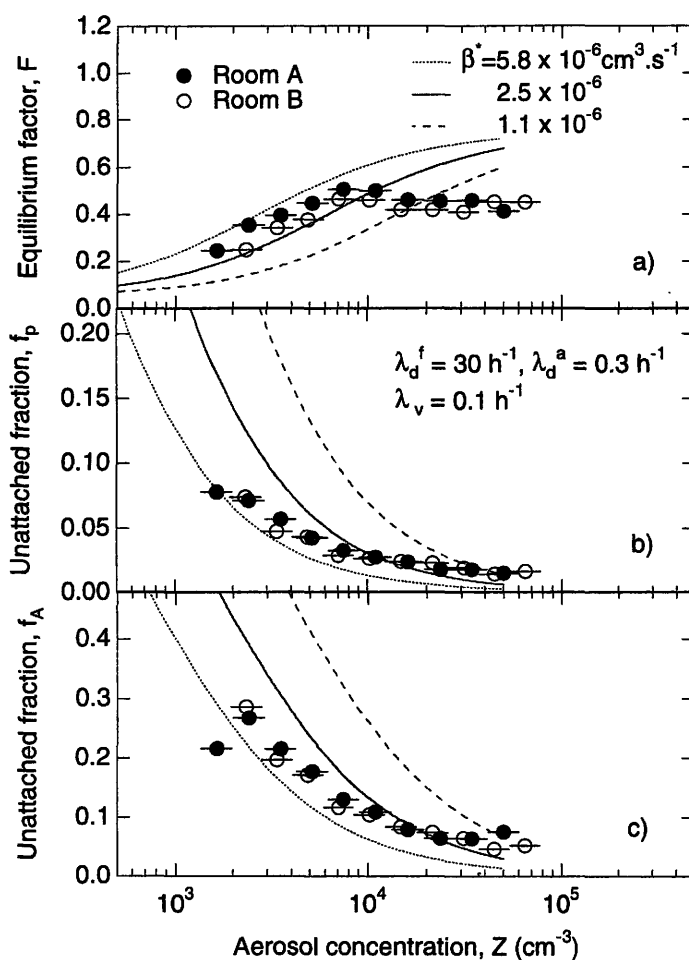


Fig. 2 a) Equilibrium factor, b) unattached fraction of potential alpha energy and, c) unattached fraction of  $^{218}\text{Po}$  as a function of aerosol concentration obtained in office rooms.

## 2. エアロゾル濃度に対する平衡ファクタと非付着成分割合の関係

Fig. 2には、オフィスで測定された全データについて、エアロゾル濃度に対する $F$ 、 $f_p$ および $^{218}\text{Po}$ の非付着成分割合( $f_A$ )を調べた結果を示す。同図には、屋内の空気中のラドン娘核種の生成と消滅をモデル化し、生成項として、親核種からの生成および付着娘核種が $\alpha$ 崩壊してその反跳によって非付着娘核種となる生成を考慮し、消滅項として、換気、非付着娘核種のエアロゾルへの付着、壁、床等への沈着および放射性崩壊を考慮して求めた理論曲線も示した。同図から、エアロゾル濃度が低い環境では、 $F$ は低い値になり、 $f_p$ はやや高い値になることがわかる。今回測定対象となったオフィス内の空調系は、エアロゾル濃度の高い東京郊外の外気を一部取り入れて運転されており、仮にこのオフィスが工業地帯から遠く離れた山間部にあった場合などには、線量評価に用いるべき正確な $F$ および $f_p$ の値は、今回の報告値とは異なるであろう。

## V. おわりに

本報では、職業環境において長期間の測定を行った結果から人がラドン娘核種を吸入することによって受ける線量の試算結果について取りまとめた。線量評価に重要なパラメータであるラドン濃度、 $F$ 、 $f_p$ の変動特性を、このように実際の職業環境において長期にわたって調べた結果は数少ないが、調査対象とした職業環境は3例と少なく、本報の試算結果が我が国の職業環境を代表しているとは言い難い。このため、人の数、勤務時間、換気条件、屋内外のエアロゾル濃度等を勘案した上で多くの代表的な職業環境を選定し、勤務時間帯を考慮に入れた大規模な調査の実施が待ち望まれる。

## 参考文献

- 1) 飯田孝夫：静電捕集型ラドン濃度連続測定装置，岡部 茂編，大気中のラドン族と環境放射能，日本原子力学会，65-73(1985)
- 2) T. Hattori and K. Ishida : A continuous monitor for radon progeny and its unattached fraction. *Radiat. Prot. Dosim.*, **55**, 113-122(1994)
- 3) T. Hattori, T. Ichiji and K. Ishida : Equilibrium factor and unattached fraction of radon progeny in outdoor air. *RADIOISOTOPES*, **44**, 710-714(1995)
- 4) T. Hattori, K. Ichiji and K. Ishida : Behaviour of radon and its progeny in a Japanese office. *Radiat. Prot. Dosim.*, **62**, 151-155(1995)
- 5) T. Hattori and K. Ishida : Equilibrium factor and unattached fraction of radon progeny in nuclear power plants. *Radiat. Prot. Dosim.*, **55**, 191-197(1994)
- 6) T. Hattori and K. Ishida : Dose due to inhalation of radon progeny in Japanese nuclear power plants. *Radiat. Prot. Dosim.*, **58**, 53-59(1995)

## 屋外のラドン濃度～人形峠を中心として

古田 定昭、伊藤 公雄、石森 有  
核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター

Outdoor Radon Concentration in Japan - Around Ningyo-toge

Sada-aki FURUTA, Kimio ITO and Yuu ISHIMORI  
Ningyo-toge Environmental Engineering Center  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
1550, Kamisaibara-mura, Tomata-gun, Okayama 708-0698, Japan

### Abstract

It would be known that radon in the human environment greatly affected the exposure from natural radiation. Many investigations of indoor radon concentration have been carried out according to the development of the passive radon monitors. However, the investigations of the outdoor radon concentration are not so many. Because outdoor radon concentration is generally lower than indoor one, passive monitors with high sensitivity are necessary and priority has been given to the residential environment from the viewpoint of the exposure to human body. In our country nationwide investigations of outdoor radon concentration were systematically carried out twice. One was by the National Institute of Radiological Science as part of the investigation of the national indoor radon concentration from 1986 to 1987, and the other was by the Japan Chemical Analysis Center at every prefecture in Japan from 1997 to 1998. The results were reported about 5 Bq/m<sup>3</sup> and 6.3 Bq/m<sup>3</sup> respectively as an annual average in Japan. In addition to these data, some of granite regions or hot spring areas, relatively high outdoor radon concentrations over than 50 Bq/m<sup>3</sup> are observed. Several high radon concentrations were also observed in the mountains on the closed uranium mine exploration areas around Ningyo-toge.

These outdoor radon concentrations are introduced here from published documents, and it is suggested that it is important to make clear investigated objective and place of the limited data from each document, when the outdoor radon is discussed. And further investigations would be necessary because these outdoor radon concentrations are not sufficiently.

### I. はじめに

生活環境のラドンが自然放射線による被ばくに大きく影響することが知られるようになり、同時にパッシブ型測定器の開発に伴い多くの屋内ラドン濃度の測定調査が実施されてきた。しかし、屋外ラドン

濃度を目的とした全国的な調査は少ない。我が国において組織的に実施された全国的な屋外ラドン濃度調査は、放医研により1986～1987年に全国屋内ラドン濃度の調査の一環として実施されたデータと、1997～1998年に分析センターにより実施されたデータがある。屋外ラドン濃度の調査が少ない理由としては、屋内と比較して一般的に濃度が低く、感度の高いパッシブ測定器が必要であることや、人体への被ばくという観点から居住環境が優先されてきたことが考えられる。本報告では我が国における屋外ラドン濃度の調査結果と、人形峠周辺で測定している屋外ラドン濃度について紹介する。

## II. 我が国における屋外ラドン濃度

我が国における全国的な屋外ラドン濃度の調査は、放医研による屋内ラドン調査の一環として測定された結果<sup>1)</sup>、分析センターによる全国屋外ラドン濃度調査<sup>2)</sup>がある。他に1986年～中国との比較測定で我が国の6都市での測定調査<sup>3)</sup>がある。また、各研究機関による国内の地域的な調査が実施されている。これらの測定結果をまとめてTable 1に示す。

### 1. 放医研による全国調査<sup>1)</sup>

放医研により1986～1987年に名古屋大学で開発された静電捕集型測定器(EIRM)約500台を使用し、北海道など13の道府県で屋内ラドンの測定調査と同時に屋外ラドンの測定が行われた。道府県あたり屋外には15～20台の測定器を使用して、2ヶ月間の積分測定を1年以上継続し年平均値を求めている。その結果、全国的な屋外ラドン濃度は、年平均で約5Bq/m<sup>3</sup>であり、屋内濃度の約半分程度であった。また、最大は広島県で平均12Bq/m<sup>3</sup>であり、2ヶ月間では20Bq/m<sup>3</sup>(いずれも文献の図より)を超える値を観測している。

### 2. 日本分析センターによる全国調査<sup>2)</sup>

分析センターによって放医研で開発されたパッシブ型ラドン・トロン弁別測定器を用い、全国47都道府県233地点における屋外ラドン濃度の調査が1997～1998年に実施された。これは前年度までの放医研と分析センターによる屋内ラドン濃度調査に引き続いて行われたもので、Fig.1に示すように全国の年間の算術平均は6.3Bq/m<sup>3</sup>、中央値は5.8Bq/m<sup>3</sup>、幾何平均値は5.9Bq/m<sup>3</sup>であった。また、四半期毎の測定結果は2.5～18.4Bq/m<sup>3</sup>の範囲であり、中国地方がやや高く、北海道、東北、関東地方や沖縄が低い傾向が見られている。これは自然放射線の分布とよく似た傾向であった。

### 3. その他の調査

名古屋大学により、静電捕集型モニタを用い、中国との比較測定の中で我が国の札幌、金沢、舞鶴、高知、草津の各都市で1986年12月～1988年11月までを主な測定期間として、2～3ヶ月周期で年平均2.4～9.7Bq/m<sup>3</sup>の結果が得られている<sup>3)</sup>。

### 4. 地域的な測定

名古屋大学によって愛知、岐阜、三重の東海三県の40地点で1985年から2年以上の測定で得られた結果では、年平均が3.5～11.7Bq/m<sup>3</sup>の範囲にあり、全体の平均は6.4Bq/m<sup>3</sup>で、岐阜県が高いなど内陸部では濃度が高くなる傾向を報告している<sup>4)</sup>。また、岐阜医療短期大学を加えたグループでは、岐阜市を中心とした20箇所<sup>5)</sup>で3.1～16.2Bq/m<sup>3</sup>という値を報告<sup>5)</sup>している。さらに、核融合研では岐阜県の土岐地区に着目して測定を行い、約3ヶ月平均で4～67Bq/m<sup>3</sup>のラドン濃度測定結果を得ており、高濃度の地点については地質的には花崗岩の上であることと、空間線量とのよい相関が見られたことを報告している<sup>6)</sup>。



Table 1 Outdoor radon concentration in Japan reported in documents.

	測定地点	平均値	最小	最大	期間	測定法	文献	備考 ポイント数
	北海道	5.1	3.7	6.4	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	北海道 札幌市	2.4			1986年12月 ~ 1988年11月	EIRM	3	1
	青森県 三八地区		2.8	3.9	1993年10月 ~ 1994年3月	Cup	14	5
	青森県 中南・西北地区		2.6	4.9	1994年10月 ~ 1995年3月	Cup	14	5
	青森県 東青・北五地区		1.1	2.2	1995年10月 ~ 1995年3月	Cup	12	5
	青森県 南部地区	2.5			1998年5月 ~ 1998年9月	Cup	13	49
	青森県 南部地区	3.2			1998年10月 ~ 1999年3月	Cup	13	49
	秋田県	3.3	2.1	4.8	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	宮城県	2.5	1.9	4.8	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	千葉県	4	2.8	4.6	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	東京都		3.1	10.2	1988年10月 ~ 1991年9月	Cup	15	11
	東京都 狛江市	3.8			1993年12月 ~ 1995年4月	EIRM	16	1
	山梨県 増富温泉地区		9.2	226.6	1991年 ~ 1993年	Cup	10	5
	愛知県 名古屋市		3.7	7.4	1984年2月 ~ 1986年1月	EIRM	4	1
	愛知県 佐久島		1.1	5.2	1984年2月 ~ 1986年1月	EIRM	4	1
	愛知県	5.2	3.2	8.4	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	愛知県 名古屋市	7.0	3.5	11.7	1986年4月 ~ 1987年3月	EIRM	4	20
	愛知県 名古屋市	6.6			1986年12月 ~ 1988年11月	EIRM	3	1
	愛知県 名古屋市	5.2			1991年8月 ~ 1992年6月	ERM連続	18	1
	岐阜県 中津川市		5.6	14.8	1984年2月 ~ 1986年1月	EIRM	4	1
	岐阜県 土岐地区		4	67	1996年12月 ~ 1998年8月	Cup	6	16
	岐阜県 岐阜市周辺		3.1	16.2	1994年12月 ~ 1996年4月	Cup	5	20
	東海3県		3.5	11.7	1986年4月 ~ 1987年3月	EIRM	4	20
	新潟県	4.3	2.1	8.3	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	石川県 金沢市	5.1			1986年12月 ~ 1988年11月	EIRM	3	1
	福井県		1.9	12.4	1992年10月 ~ 1993年12月	Cup	7	21
	福井県 立石地区	230				ZnS連続	8	1
	福井県 立石地区			10000		IC	8	1
	滋賀県 草津市	9.7			1988年8月 ~ 1989年7月	EIRM	3	1
	大阪府	4.5	2.7	7.3	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	大阪府 東大阪市		4.9	17	1995年 ~ 1997年	活性炭	9	1
	京都府 舞鶴	7.8			1986年12月 ~ 1988年11月	EIRM	3	1
	兵庫県 神戸市	6.3			1990年1月 ~ 1990年12月	IC連続	17	
	岡山県 人形峠周辺		5.6	59	1995年 ~ 1997年	活性炭	9	数地点
	鳥取県 三朝地区	25.9	7.4	62.9			11	
	鳥取県 三朝地区	11.1	3.7	22.2			11	
	鳥取県 三朝地区		6.7	50	1995年 ~ 1997年	活性炭	9	数地点
	人形峠周辺(対照地区)		9	77	1996年3月 ~ 1997年3月	EIRM	24	~40
	人形峠周辺(対照地区)		14.7	22.9	1989年4月 ~ 1996年3月	IC	25	数地点
	島根県	7.6	6.9	9	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	島根県 池田鉱泉地区		12	26	1995年 ~ 1997年	活性炭	9	1
	広島県	12	8	15.7	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	愛媛県	5	2.6	8.3	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	高知県 高知市	6.8			1986年12月 ~ 1988年11月	EIRM	3	1
	佐賀県	5.5	3.8	8.3	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	鹿児島県	4.8	2.7	6.2	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	沖縄県	2	1.1	3.8	1986年2月 ~ 1987年2月	EIRM	1	15-20
	全国	6.3	2.5	18.4	1997年4月 ~ 1998年3月	Cup	2	233
E	青森県 三八地区		2.33	3.17	1993年10月 ~ 1994年3月	SSD	14	5
E	福島県 杉妻町	3.3			1986年7月 ~ 1988年3月	GMサベーター	19, 20	1
C	愛知県 名古屋市	4.1			1991年8月 ~ 1992年6月	ZnS連続	18	1
R	東京都 狛江市	2.5			1993年12月 ~ 1995年4月		16	1
n	人形峠周辺(対照地区)		2.8	3.7	1989年4月 ~ 1996年3月	SSD	25	数地点
平	岡山県 岡山市		0.4	5.7	1985年 ~ 1986年	SSD	23	3昼夜
衡	岡山県 上斎原村		0.3	6.3	1985年 ~ 1986年	SSD	23	3昼夜
仮	日本海		3	5	1984年1月 ~ 1984年2月	ZnS連続	22	
定	日本海		1	3	1984年7月 ~ 1984年8月	ZnS連続	22	
濃	福井県 福井市		0.4	25	1982年2月 ~ 1984年1月	ZnS連続	21	1

\* 数値の読みとれないグラフのみのデータは除いた。

近畿大学、京都大学により、1地点あたり5台のカップ式モニタを利用し検出感度を上げ、若狭地区の21カ所において1.9~12.4Bq/m<sup>3</sup>(449日間)、1.2~18.4Bq/m<sup>3</sup>(3ヶ月間)の測定結果が得られている<sup>7)</sup>。その後、東京理科大学、福井大学も加わり、敦賀の立石地区において局所的に高濃度を示す地点で1993年8月の平均値として230Bq/m<sup>3</sup>、短時間では1×10<sup>4</sup>Bq/m<sup>3</sup>に達したと報告している。また、このときの平衡係数は0.01~0.03と非常に低く、発生源が測定場所近傍と推測し、かつ局地的であることを報告している<sup>8)</sup>。

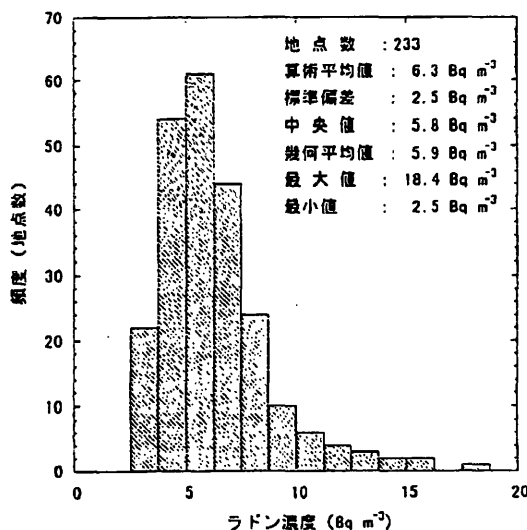


Fig. 1 Histogram of outdoor radon concentration measured by JAC<sup>2)</sup> (annual average of each point).

温泉地区や花崗岩地区に着目して活性炭を用いた24時間測定により、4.9～59までの値が観測されている<sup>9)</sup>。また、温泉地区では増富温泉でカップ式モニタにより年平均で9.2～226.6Bq/m<sup>3</sup>という値が観測され、距離的にきわめて近い場所で一桁以上の濃度差があったと報告されている<sup>10)</sup>。同様に、三朝温泉でも7.4～62.9Bq/m<sup>3</sup>という値が報告されている<sup>11)</sup>。

地域的な調査として環境技術研究所により青森県内の屋内と屋外のラドン濃度調査が詳細に行われており、全般的に低い濃度が得られている<sup>12, 13, 14)</sup>。また、大都市では、東京都<sup>15, 16)</sup>や神戸<sup>17)</sup>でもその地区の平均的な値が報告されている。

この他、屋外ラドン濃度の測定は、トンネルや地下鉄での測定などの報告があるが、通常の屋外環境とは異なるため本報告では除外した。

### 5. 娘核種濃度

屋外で娘核種濃度の調査が行われた例は非常に少なく、研究機関により特定の場所での測定例がほとんどである。名古屋で1年間近くの平均で4.1Bq/m<sup>3</sup>という値<sup>18)</sup>が測定された例や、東京都の粕江で1年間の平均で2.5Bq/m<sup>3</sup>という測定値<sup>19)</sup>、福島で2年間近くの平均で3.32Bq/m<sup>3</sup>という値<sup>20)</sup>などが観測されている。なお、これとは別に娘核種の平衡状態を仮定して測定した結果では、各地で0.3～25Bq/m<sup>3</sup>の値<sup>21, 22, 23)</sup>が測定されている。

## Ⅲ. 人形峠周辺におけるラドン濃度

核燃料サイクル開発機構人形峠環境技術センターでは、ウラン探鉱に関わる研究開発を1987年まで実施してきた。その後1989年から鉱山保安法関連の規則が改正され、これまで規制のなかった周辺監視区域がウラン鉱山に対しても適用されることとなり、旧ウラン鉱山跡やその周辺の環境中ラドン濃度の測定を実施している。センターでは名古屋大学で開発された静電捕集型モニタを用いて、人形峠付近を中心に鳥取、岡山で、一般環境および鉱山跡施設である捨石堆積場とその周辺において四半期ごとのラドン測定を実施するとともにサンプリングによる測定や一部の地域では連続測定も実施している。

## 1. 積分型測定<sup>24)</sup>

測定は、高さ1～1.5m程度の測定器収納箱を設置し、捨石堆積場とその周辺の居住地区にある公民館や、神社の庭を始め、影響が無いと考えられる地域(対照地区)での測定を実施している。これらの捨石堆積場の場所とラドン測定場所をFig.2に示す。また、これらの測定場所で測定された結果をFig.3に示す。居住地区での測定結果は、一部の地区を除いて～20Bq/m<sup>3</sup>程度であり、全国平均から見るとやや高いものの、花崗岩地域の文献値と比較してもほぼ同レベルであると考えられる。また、後述するが一部の地区については、地質的にラドン濃度が高い地区であると考えられる。一方、捨石堆積場では、居住地区と比較して高い濃度が観測され100Bq/m<sup>3</sup>を超える測定地点もある。そのため後述するサンプリング測定や詳細測定により別途測定を強化している。なお、捨石堆積場は柵や警標等により一般公衆の立入を制限している場所である。

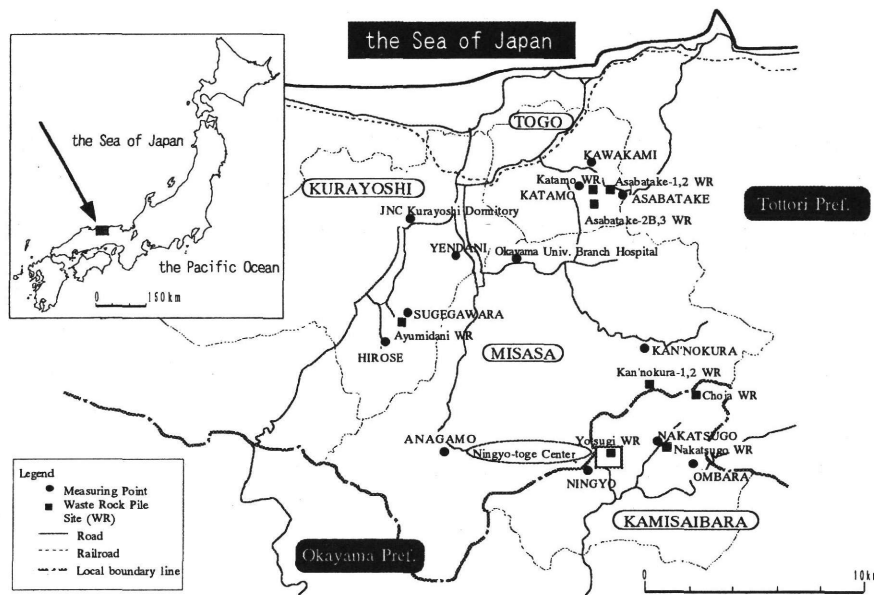


Fig. 2 Location of the measuring points on and around the waste rock pile sites.

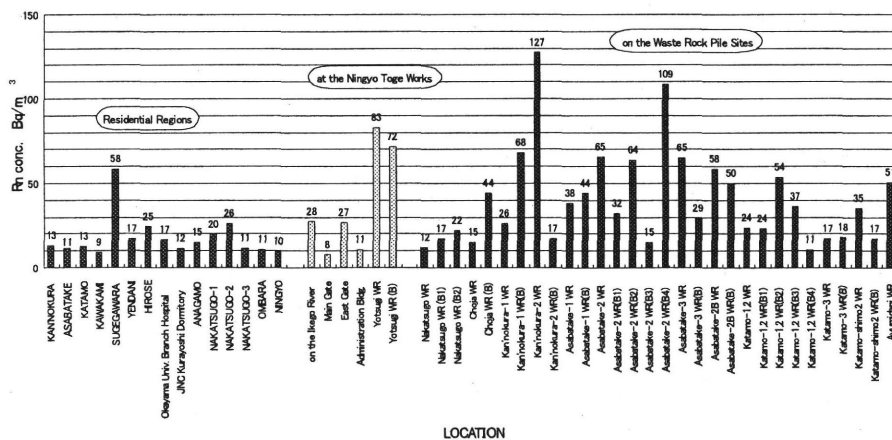


Fig. 3 Radon concentration on and around the waste rock pile sites in fiscal 1996.

## 2. サンプリング測定<sup>25)</sup>

主な積分測定場所でサンプリング測定によるラドン濃度と平衡等価濃度の測定を実施している。ラドン濃度は小型ポンプを用いて1時間程度、大気をテドラバッグに採取し、その後ガス封入型電離箱で測定している。また、平衡等価ラドン濃度は市販のワーキングレベルメータ(TracerLabo社製WLM200)を用いて測定している。測定頻度は比較的大きな捨石堆積場は毎月実施し、他の堆積場や居住地区は四半期に1回または年1回程度の測定を実施している。

それらの測定結果をまとめてTable 2に示す。ラドン濃度は高い傾向が見られるが、平衡等価濃度は低く、平衡係数は敦賀の立石地区と同じように、非常に小さな値が得られている。これよりラドン発生源近傍では娘核種が十分成長しておらず、かつ発生源が局所的に限定されていることが推定できる。得られた平衡係数と積分測定の結果から便宜的に長期的な平衡等価ラドン濃度を推定することができ、その値を表にEstimated EECRnとして記載した。これより長期的な平衡等価ラドン濃度も低いことと公衆の立入を制限していることから安全上の問題は無い考えることができる。

Table 2 The summary of radon and equilibrium equivalent radon concentration around Ningyo-toge.

Site	Radon [Bq/m <sup>3</sup> ]				EECRn [Bq/m <sup>3</sup> ]				F-value [-]				Estimated EECRn
	Ave.	Max.	Min.	N	Ave.	Max.	Min.	N	Ave.	Max.	Min.	N	
Asabatake-1WR	119	754	15	13	4.3	10.4	1.3	16	0.095	0.290	0.006	12	3.6
Asabatake-1WR(B)	96	184	18	10	3.7	11.9	0.9	10	0.051	0.110	0.008	10	2.2
Asabatake-2WR	85	330	8	37	8.1	12.6	3.9	45	0.085	0.650	0.012	37	5.5
Asabatake-2WR(B)	77	371	7	34	3.7	22.9	0.5	44	0.087	0.390	0.013	34	9.5
Asabatake-2BWR	65	155	13	8	3.6	10.4	1.0	9	0.093	0.230	0.013	8	5.4
Asabatake-3WR	146	280	68	9	3.3	8.0	0.7	12	0.032	0.088	0.016	9	2.1
Katamo-1.2WR(sl)	4787	66300	14	48	77.4	339.0	0.6	49	0.067	0.290	0.001	47	24.5
Katamo-1.2 WR	20	57	6	24	3.6	7.9	0.7	25	0.270	0.650	0.037	24	6.4
Katamo-1.2WR(R-5)	29	130	6	33	3.2	10.8	0.9	37	0.150	0.630	0.032	32	6.8
Katamo-1.2WR(B4)	21	56	9	8	2.9	6.5	1.1	9	0.170	0.330	0.039	8	1.9
Katamo-S2WR	55	176	9	7	3.7	9.7	0.9	8	0.085	0.170	0.038	7	3.0
Katamo-3WR	37	67	14	6	2.0	2.9	1.3	7	0.071	0.140	0.021	6	1.2
Ayumidani-1WR	23	48	6	11	3.4	5.9	2.0	12	0.180	0.350	0.071	11	9.1
Kan'nokura-1WR	44	107	6	9	2.2	4.6	0.6	9	0.092	0.350	0.022	9	2.4
Kan'nokura-1WR(B)	83	135	37	9	3.6	5.5	0.8	9	0.043	0.073	0.022	9	2.9
Kan'nokura-2WR	438	1210	15	9	7.7	26.1	0.9	9	0.047	0.247	0.008	9	6.0
Kan'nokura-2WR(B)	59	297	6	6	3.5	12.0	1.1	8	0.220	0.370	0.040	6	3.8
Nakatsugo- WR	12	21	5	10	2.4	5.8	0.2	32	0.290	0.670	0.049	14	4.1
Nakatsugo- WR(B)	11	20	5	9	2.9	5.4	1.5	12	0.350	0.780	0.150	10	5.0
Choja- WR	23	91	5	10	1.8	3.4	0.6	15	0.190	0.490	0.012	10	2.8
Choja- WR(B)	42	127	5	6	2.0	3.1	0.6	8	0.180	0.620	0.018	6	7.9
Sugegawara	15	42	5	37	3.7	12.0	0.4	47	0.270	0.670	0.031	37	15.8
Controls(others)	23	191	5	26	2.8	8.4	0.2	60	0.360	0.700	0.031	28	5.0

## 3. 捨石堆積場詳細測定<sup>24, 25)</sup>

居住地区でやや高い濃度が観測された菅原(Sugegawara)地区、および代表的な捨石堆積場として方面(Katamo)堆積場とその周辺の対照地区において静電型測定器による詳細な測定を実施している。方面堆積場は居住地区から約1.5km離れた山中にありその途中は梨の果樹園になっており、その測定場所をFig. 4に示す。捨石堆積場は敷地内に2カ所あり、その周囲および谷筋に沿って積分型測定器を配置するとともに、対照場所として、別の谷筋でも測定している。その測定結果をFig. 5に示す。R-5までは堆積場内の谷筋であり、高い濃度が観測されている。R-14~R-22は居住地区までの谷筋であり、R-16まではやや高い傾向が見られるが、他の居住地区と大きな差は見られない。また、R-7~R-13は堆積場の境界付近(堆積場内)で居住地区と同様なレベルから60Bq/m<sup>3</sup>までの範囲にある。ここで、R-23、R-24、R-43は対照地区として設置した別の谷筋での測定結果である。これより捨石堆積場と別の谷筋でも境界付近と同じレベルの濃度が観測されていることがわかる。これらの谷筋は上流側で狭くなるとともに、

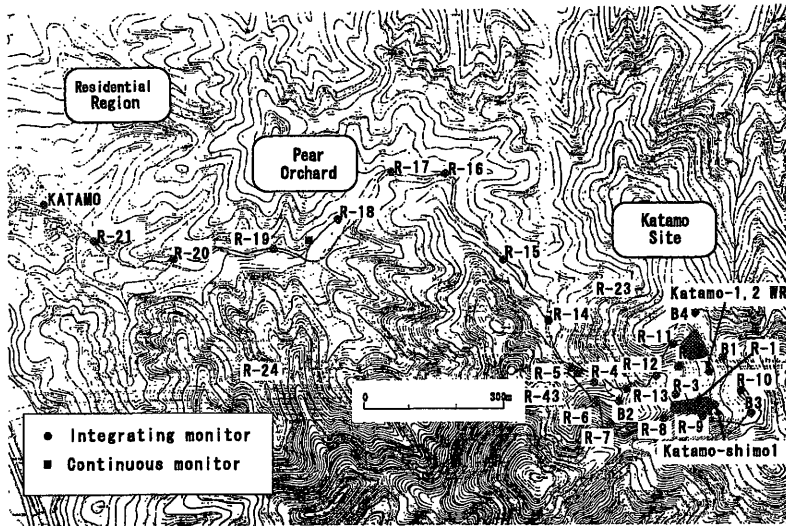


Fig. 4 Measuring points in the Katamo area.

("WR" and "B") means the measuring points on the waste rock pile site and on the site boundary, respectively.)

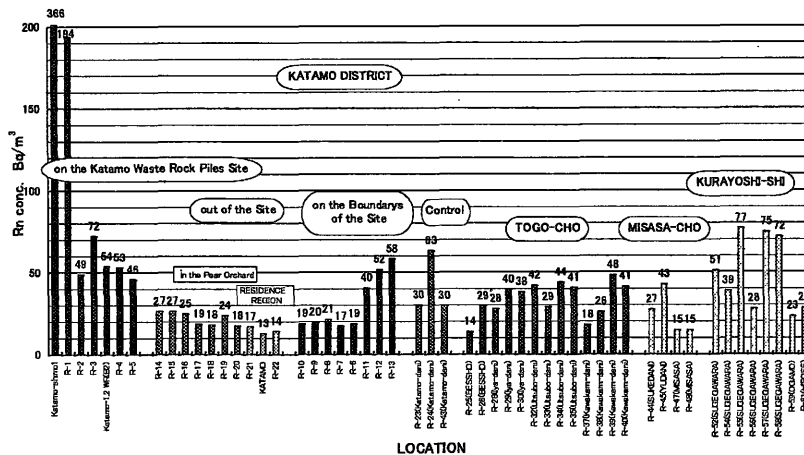


Fig. 5 Radon concentration on and around the Katamo waste rock piles site in fiscal 1996.

樹木が茂り風通しの悪い環境になり、その結果濃度が高くなると推定される。

同じ地区で娘核種濃度の連続測定を実施しており、敷地境界とそこから約 1 km 離れた果樹園での 2 カ所で試験測定を行っている。この 2 カ所における 1993 年 4 月からの平衡等価ラドン濃度同時測定結果を、Fig. 6, 7 に示す。この図より捨石堆積場に近い敷地入口の測定結果で高い傾向が見られ、また、季節変化として夏に高い傾向が見られている。一般に季節変動として太平洋側では冬に濃度が高く、逆に日本海側では夏に高いという報告があり、人形峠周辺では日本海側の季節変動パターンに近い結果が得られている。次に得られた平均値については、捨石堆積場入り口では  $8.0\text{Bq/m}^3$  梨畑では  $4.7\text{Bq/m}^3$  である。これより敷地境界での平衡等価濃度がやや高い傾向にあるが、文献値<sup>18)</sup>から少なくとも梨畑での結果は通常のレベルと考えられる。そのため、梨畑での値をこの地域のバックグラウンドと仮定すれば、その差  $3.3\text{Bq/m}^3$  が堆積場の影響と考えられる。年間の実効線量を求めるために、この平衡等価濃度の

3.3Bq/m<sup>3</sup>は、時間積算濃度として2.9×10<sup>4</sup>Bq·h/m<sup>3</sup>と換算することができる。この値はICRP Pub.65,家庭と職場におけるラドン-222に対する防護<sup>26)</sup>による変換係数6.3×10<sup>5</sup>(Bq·h/m<sup>3</sup>)/WLMと、公衆に対して1WLM=3.88mSvであることから、0.18mSvと変換でき、公衆の線量等量限度1mSvと比較して小さい値である。

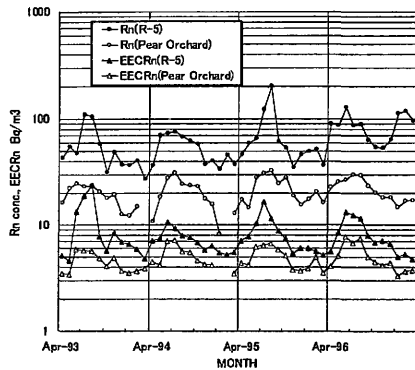


Fig. 6 The radon and its progeny concentration obtained by continuous monitors in the Katamo area.

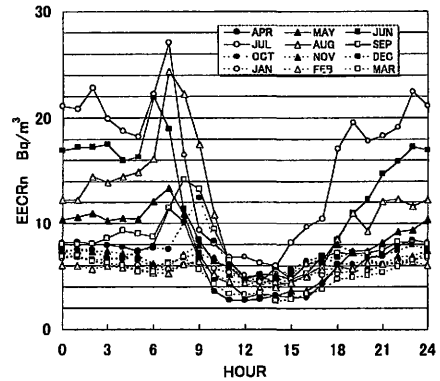


Fig. 7 The daily and seasonal variations of EECRn on the boundary of the Katamo-1,2 waste rock piles site.

#### IV. おわりに

屋外ラドン濃度については、文献などから以下のような知見が得られている。

- (1) 屋外ラドン濃度については、屋内と比較して低い傾向にある。
- (2) 内陸部では高い傾向にあり、太平洋側、日本海側で異なる季節変化を示す。
- (3) 大気安定性に起因する顕著な日変化を示す。
- (4) 地域的に花崗岩地帯や温泉地区などで地質の影響とみられる高い濃度が観測されている。
- (5) 地形や、植生などの屋外状況により大気の拡散が抑制され、濃度が高くなる場合が考えられる。
- (6) ラドン発生源近傍の屋外のラドン濃度が高い場所は局所的な場合が多く、このような場所は平衡等価ラドン濃度は低い傾向が観測されるため、線量評価上は、娘核種の測定が重要な要因となる。

以上に加えて、屋外ラドン濃度の調査についてはその調査目的に応じて、様々なアプローチがされており、これらをそのまま利用することには問題が多いと考えられる。今回は文献値を幅広く紹介したが、居住地区や屋外作業場での線量評価を目的とするのか、温泉地区や山岳地域を含めた自然界での分布を目的とするのかなど、目的対象を明確にした上での文献調査が必要である。そのためには、冒頭でも述べたように屋外ラドン濃度は屋内ラドンと比較してデータが少なく、今後、さらに多くの測定調査と、これらを整理した上での議論が望まれる。

#### 参考文献

- 1) 阿部道子, 阿部史郎: 屋内・外のラドン等の全国測定. 生活環境におけるラドン濃度とそのリスク, 小林定喜, 完倉孝子編, 79-88(1989)
- 2) 真田哲也, 菅野信行, 上杉正樹, 樋口英雄: 屋外ラドン濃度の全国調査. 第40回環境放射能調査研究成果論文集, 科学技術庁, 35-36(1998)

- 3) T. Iida, Y. Ikebe, Y. Yamanishi *et al.* : A Survey of Outdoor and Indoor  $^{222}\text{Rn}$  Concentrations by Passive Method in Japan and China. *Proceedings of International Conference on Radiation Effects and Protection*, Mito, Japan, 364-369 (1992)
- 4) 飯田孝夫, 池辺幸正, 山西弘城 : 東海地方におけるラドン濃度測定. 生活環境におけるラドン濃度とそのリスク, 小林定喜, 完倉孝子編, 43-54 (1989)
- 5) 下道国, 飯田孝夫, 奥平文雄 : 岐阜県南西部における屋外ラドン濃度レベル. 日本保健物理学会第32回研究発表会要旨集, 117 (1997)
- 6) 山西弘城, 棚橋秀伍, 佐久間洋一, 宇田達彦, 河野孝央, 篠塚一典, 三宅均, 大林治夫, 飯田孝夫 : 土岐地区における大気中ラドン濃度の多地点測定. 日本保健物理学会第34回研究発表会要旨集, 114 (1999)
- 7) 小川喜弘, 木村雄一郎, 山崎敬三, 辻本忠 : 若狭地区における屋外ラドン濃度. 保健物理, **30**, 303-308 (1995)
- 8) 山崎敬三, 岡本賢一, 辻本忠, 児島紘, 西川嗣雄 : 敦賀地区における屋外ラドン・トロン濃度Ⅱ - Active法による測定 - . 日本保健物理学会第29回研究発表会要旨集, 54 (1994)
- 9) 稲垣昌代, 古賀妙子, 森島彌重, 御船政明 : 高自然放射線地域のラドン濃度分布の特性. 日本保健物理学会第33回研究発表会要旨集, 24 (1998)
- 10) 小林定喜, 土居雅広, 石川徹夫, 吉永信治, 岡野真治 : 増富温(鉍)泉郷における屋内外ラドン・トロン濃度測定調査. 日本保健物理学会第30回研究発表会要旨集, 23 (1995)
- 11) 御船政明 : 三朝温泉地環境の自然放射能について生活環境におけるラドン濃度とそのリスク. 小林定喜, 完倉孝子編, 259-269 (1989)
- 12) 環境科学技術研究所, 青森県の生活環境におけるラドン濃度調査. 平成7年度環境科学技術研究所年報, 15-16 (1996)
- 13) 五代儀貴, 久松俊一, 桜井直行, 小山兼二 : 南部地区の屋外職場環境におけるラドン濃度. 平成10年度環境科学技術研究所年報 (1999)
- 14) 環境科学技術研究所, 青森県の生活環境におけるラドン濃度調査. 創立五周年調査研究成果の概要, 180-192 (1996)
- 15) 杉浦城春, 鈴木隆司, 猪越幸雄 : 東京都および隣接県における屋内・外ラドン濃度の測定および統計解析. 保健物理, **30**, 293-301 (1995)
- 16) 服部隆利, 伊知地猛, 石田健二 : 大気中のラドン娘核種の平衡ファクタと非付着成分割合 (英文). *Radioisotopes*, **44**, 710-714 (1995)
- 17) 安岡由美, 志野木正樹 : 神戸での大気中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度変動について. 第29回理工学における同位元素研究発表会要旨集, 130 (1992)
- 18) 山崎直, 飯田孝夫, 下道国, 池辺幸正 : 屋外ラドン及びラドン娘核種濃度の連続測定. 保健物理, **30**, 149-154 (1995)
- 19) 小林恒夫, 高久祐治 : 福島市の生活環境における大気中ラドン娘核種からの被曝線量評価. 保健物理, **24**, 129-132 (1989)
- 20) 小林恒夫, 高久祐治 : 空気中のラドン・トロン娘核種濃度の最低値. 第31回理工学における同位元素研究発表会要旨集, 75 (1994)

- 21) 西川嗣雄, 青木正義, 岡部茂: 大気中ラドン・トロン娘核種の濃度の日変化と季節変化. 大気中のラドン族と環境放射能, 岡部茂編, 107-114(1985)
- 22) 西川嗣雄, 岡部茂, 青木正義: 日本海海上でのラドン娘核種の濃度. 大気中のラドン族と環境放射能, 岡部茂編, 139-148(1985)
- 23) 片岡敏夫, 柚木英二, 道広憲秀, 杉山広和, 松永和義, 谷本浩一, 石田立夫, 森忠繁: 異なった海拔における屋外大気中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度と若干の気象要素. 大気中のラドン族と環境放射能Ⅱ, 岡部茂編, 143-149(1990)
- 24) Yuu ISHIMORI, Kimio ITO, Sada-aki FURUTA : Environmental Effects of Radon and its Progeny from Uranium Waste Rock Piles: Part 1 -Measurements by Passive and Continuous Monitors, Radon and Thoron in the Human Environment. Akira KATASE and Michikuni SHIMO, *Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium*, 282-287(1998)
- 25) Kimio ITO, Yuu ISHIMORI, Sada-aki FURUTA : Environmental Effects of Radon and its Progeny from Uranium Waste Rock Piles: Part 2 -Measurements by Grab Sampling Method, Radon and Thoron in the Human Environment. Akira KATASE and Michikuni SHIMO, *Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium*, 288-293(1998)
- 26) ICRP Pub.65, 家庭と職場におけるラドン-222に対する防護



## 地震とラドン

安岡 由美, 志野木正樹  
神戸薬科大学 アイソトープ管理室

### Radon Related to the Earthquake

Yumi YASUOKA and Masaki SHINOBI

Kobe Pharmaceutical University

4-19-1, Moyoyamakita-machi, Higashinada-ku, Kobe-shi 658-8558, Japan

#### Abstract

Several clear hydrological and geochemical anomalies were recorded before the 1995 Kobe earthquake (January 17, 1995). The radon concentration in groundwater increased from the initial level measured in October 1994. It reached the highest level on January 8, 1995, and then dropped suddenly to the previous background level before the earthquake. The remarkable increases in the atmospheric radon concentration were observed from November 1994 until the earthquake. The atmospheric radon data was collected from April 1984 to January 1996. The other anomalies include chemical-composition changes in groundwater, and an increase in groundwater discharge.

In the former cases, the monitoring stations were located within the aftershock region. These anomalies began several month before the earthquake. The starting points of the anomalies can be regarded as reflecting the initiation of the preparation stage of the earthquake rupture. Given these data are enough constraints for a specific mechanism to explain these anomalies.

#### I. はじめに

日本付近の地震は、どのようにして起こっているのだろうか。日本列島は、ユーラシアプレート(一部はオホーツク海プレート)上にあり、ユーラシアプレートの下へ太平洋プレートとフィリピン海プレートが沈み込んでいる。この沈み込みにより、プレート間又はプレート内に歪みが生じ、蓄積し、その解放のために地震が発生する。太平洋岸沖の巨大地震はほとんどプレート間地震であり、兵庫県南部地震のような内陸地震はプレート内地震である<sup>1)</sup>。地殻応力が小さいときは、地殻の岩石は弾性的に変形するが、その変形が限界歪みにまで達すると、岩石の破壊が起こり、歪みエネルギーが解放され、周囲に弾性波を放出する。これが地震である<sup>2)</sup>。そして地震は、活断層が地殻の弱線となり、同じ場所に繰り返し発生する。このような部分の強度は弱く、断層を通して地下と地表をつなぐ一種の通路が作られていると考えられている。このため、活動的な活断層は地殻の破碎度が高く、地下から放出する気体の通路となることが予想される。そのような地中ガスの一つがラドン(<sup>222</sup>Rn)である。ラドンは天然放射性壊

変系列中、唯一の希ガスであるため、系から逸脱しやすいこと、放射能をもつことからきわめて検出感度が高いこと、また半減期が3,825日のため異常変化の生じた時期が推定できることなどの特性をもっている。岩石内部で生成されるラドンは拡散定数と半減期から考えて、通常は岩石の表面まで到達することはできない。よって、地下水中のラドンは岩石表面近くに存在するラジウムから生成したラドンが溶け込んだものと考えられる。岩石中に微少な亀裂ができて、表面積が増えれば、それだけ地下水中のラドン濃度は増加する。また、ラドン濃度が異なる地下水の混入などが起これば、濃度も変化すると考えられる<sup>1)</sup>。

そして、地下水中のラドン濃度が、地震に関連して変動していると考えられるデータが、いくつか報告されている。1966年4月のタシケント地震前の数年間にわたり地下水中のラドン濃度は増加し、地震後急激に減少した<sup>3)</sup>。また、日本では、1978年1月14日の伊豆大島近海地震(M.7.0)前に、伊豆半島中伊豆の地下水中のラドン濃度の変動や、同じ中伊豆町にある井戸の水温・水位の変化が起こった。さらに、伊豆半島の石廊崎に設けられた埋め込み式体積歪計も変化した(Fig. 1)。そして、これらの変化を比較すると、変化した時期と変化のパターンがよく似ている<sup>3,4)</sup>。

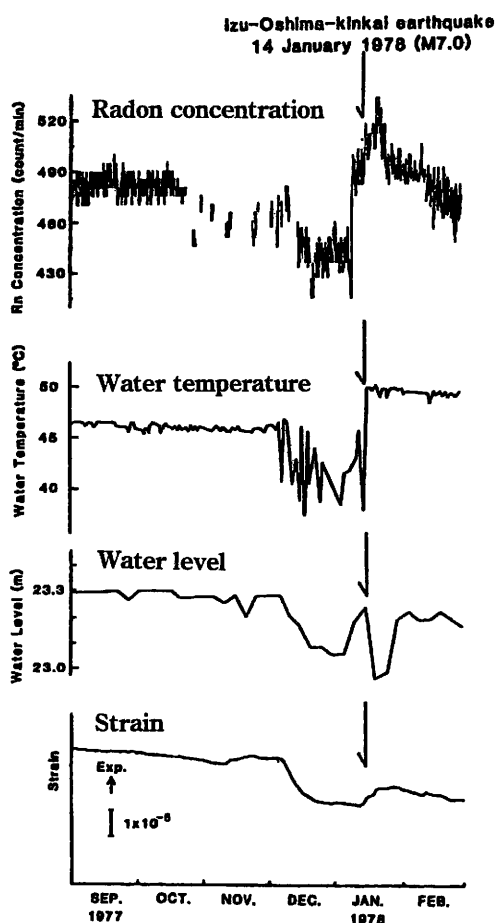


Fig. 1 Precursory changes of the Izu-Oshima-kinkai earthquake (M. 7.0) on January 14, 1978.

(脇田宏：保健物理, 31(2)：215-222, 1996.)

## II. 兵庫県南部地震に関連した地球化学的変動

### 1. 兵庫県南部地震

1995年1月17日に、淡路島北部近海、深さ14kmを震源とする兵庫県南部地震(M.7.2)が発生した。20世紀の日本の地震災害としては、福井地震(1948年)を上回り、関東大震災に次ぐ大きさであった。この地震の余震は、六甲山南麓から淡路島北西岸まで、北東-南西方向に約50km分布し、地震断層は、神戸側では六甲断層系、淡路島では野島断層等と考えられている(Fig. 2)<sup>5,6)</sup>。六甲断層系のある六甲山系の南部地域は、「灘五郷」と呼ばれ、酒造りに適した良質の地下水が豊富な地域であり、その地下水の源となる六甲山系の地層は、ラドンの親核種であるラジウムを多く含む花崗岩で構成されている。この六甲断層系の近傍で、兵庫県南部地震に関連して変動した可能性のあるデータが、いくつか報告されている。

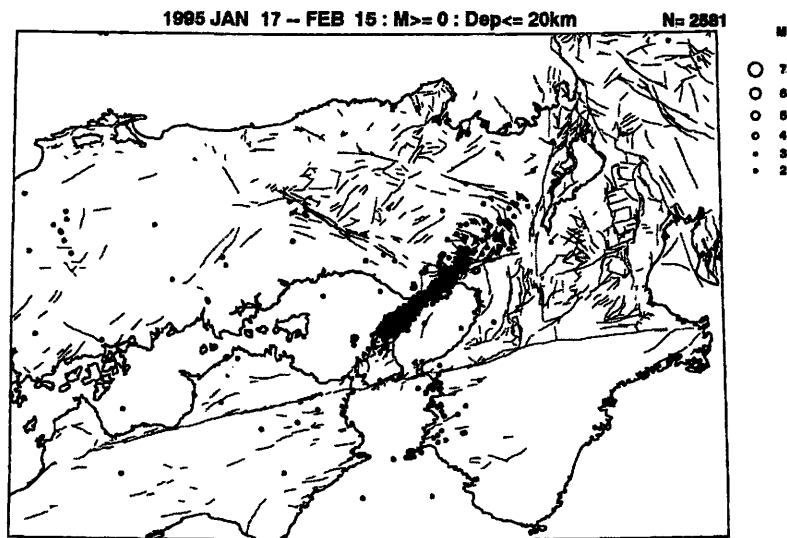


Fig. 2 The map showing the aftershocks of the Kobe earthquake.

(日本地質学会 環境地質研究委員会編：阪神淡路大震災，東海大学出版会，p 2 -16, 1996.)

### 2. 兵庫県南部地震に関連した変動

兵庫県南部地震に関連した変動が観測された場所をFig. 3に示した。

西宮市(Fig. 3の地点NMY)において、兵庫県南部地震前に地下水中のラドン濃度が変化したことが、五十嵐らによって報告された<sup>2,7)</sup>。この測定では、地下水中のラドン濃度連続測定が、深さ17mの伊丹礫層に掘られた井戸において、半導体検出器を用いて行われた。1993年末に濃度20Bq/Lの一定値を示していたラドン濃度は、1994年10月末の観測再開以来、増加し続けた。1995年1月8日には平常値の約10倍以上と最高値に達し、約3日間高いレベルを保った後、ラドン濃度は急速に低下した。1月16日にはほぼ平常値に戻り、再び増加し始めたところで兵庫県南部地震が発生した(Fig. 4)。1993年末のラドン濃度には、振幅約1Bq/Lの潮汐に応答する変動が見られており、潮汐によって地殻に生じる歪みは、体積変化にして $10^{-8}$ 程度であることがわかっている。兵庫県南部地震前のラドン濃度の増加は100Bq/L以上であった。 $10^{-8}$ の体積変化が1Bq/Lの振幅とすると、その約100倍の $10^{-6}$ 程度の地殻歪み変化が生じたのではないかと考察されている。

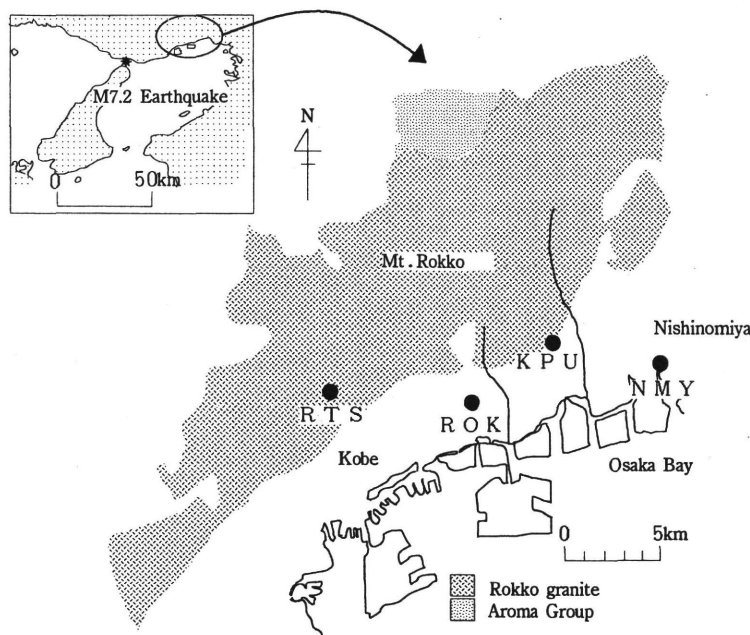


Fig. 3 Location of the monitoring stations.

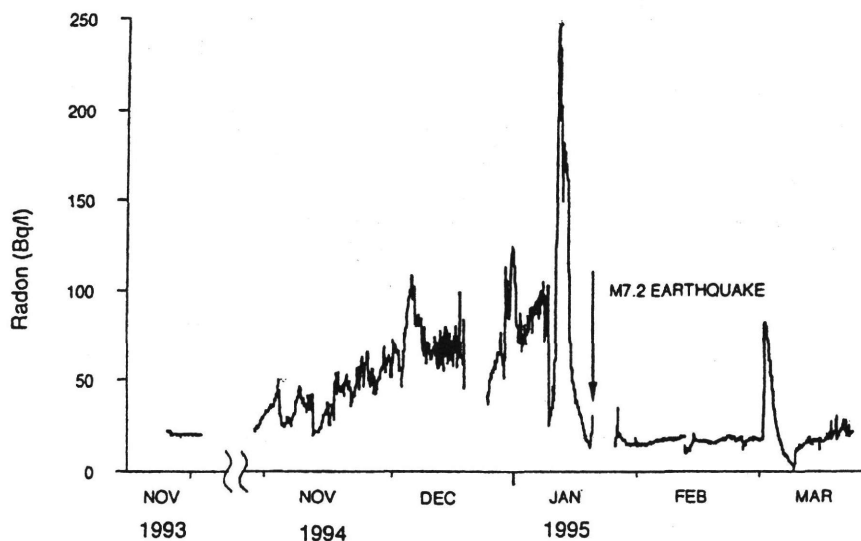


Fig. 4 Radon concentration changes in groundwater at the NMY site in Nishinomiya City.  
(G.Igarashi, et. : Science, 269 : 60-61, 1995.)

神戸市 (Fig. 3 の地点 ROK) において、兵庫県南部地震前に地下水中の塩化物イオン ( $\text{Cl}^-$ ) や硫酸イオン ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) の濃度が増加したことが、角皆らによって報告された<sup>8)</sup>。深さ 100m の井戸から汲み上げられた市販のミネラル・ウォーターの化学分析が行われた。その結果、地下水中の  $\text{Cl}^-$  や  $\text{SO}_4^{2-}$  の濃度が、1994 年 8 月頃から地震直前まで増加し、地震発生後はさらに高い濃度を示した。この地下水中の  $\text{Cl}^-$  や  $\text{SO}_4^{2-}$  の増加は、それらに富んだ地下水の混合比率が増加したことに起因するものと考えられている。

六甲高尾観測室 (Fig. 3 の地点 RTS) の坑道において、兵庫県南部地震前に湧水量が増加したことが、藤森らによって報告された<sup>9)</sup>。湧水量は、1994 年 11 月上旬から増加しはじめ、兵庫県南部地震までに約

7%増加し、地震と同時に約10倍に増加した。また、1994年10月に、この観測坑道で測定されていた歪みの傾向が変化していた。

神戸薬科大学(Fig. 3の地点KPU)において、兵庫県南部地震前に大気中のラドン濃度が増加した<sup>10)</sup>。神戸薬科大学は岡本断層上に位置する<sup>11)</sup>。大気中のラドン濃度の測定は、地上5mの高さの屋外空気を高性能フィルターでろ過した後、通気式電離箱により連続測定を行った。平均年変動及びその標準偏差を、1984年4月～1994年3月(1989年4月～1990年3月のデータ欠如)の9年間の大気中のラドン濃度の日平均値を用いて求めた。この平均年変動は、夏低く冬高いという季節変動を示し、その変動は太平洋側の名古屋の変動とほぼ同じ傾向を示した<sup>12)</sup>。1994年4月～1996年1月のラドン濃度の変動をFig. 5に示した。データは指数平滑化法により平滑化した。1994年11月下旬から地震前まで、ほぼ連日、平均年変動の標準偏差の2倍の範囲を超えた。一方、神戸薬科大学の地下水中のラドン濃度は地震発生の2～3ヶ月前から、低下傾向にあった<sup>13)</sup>。

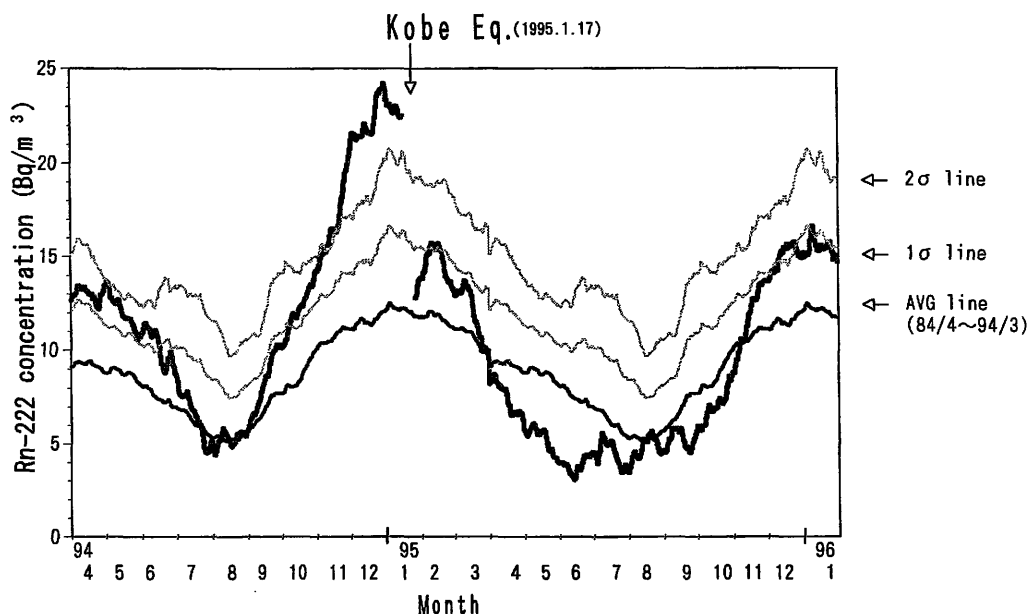


Fig. 5 The variation curve in atmospheric radon concentration at the KPU site.

### 3. ラドン濃度の変動について

兵庫県南部地震の前に地下水中のラドン濃度が増加した理由として、岩石中に歪みが蓄積し、新しい亀裂が発生するなど、地下水と岩石の接触面が増減することにより、ラドンの放出量が増減して、地下水中のラドン濃度が増減した<sup>1~3)</sup>。また、ラドン濃度の異なる地下水の混合比率が変わることによってもラドン濃度が増減することも考えられる。

地震前に大気中のラドン濃度が増加する理由として、地下で岩石が圧縮されると、岩石の空隙内にあるラドン濃度の高い水が断層へと押し出され、この水によって、地表面特に断層上のラドンの散逸率が増加した可能性があるとして、片瀬は考察している<sup>14)</sup>。

### Ⅲ. おわりに

兵庫県南部地震の破壊面の北東側の丹波山地の群発地震活動が、1994年11月頃から活発化し始め、前兆的地震活動の可能性があるとされている<sup>15)</sup>。また、同じく1994年11月頃から、上記のような地球化学的な異常や地殻変動が集中していることは、前兆現象の可能性があり注目されている<sup>16, 17)</sup>。地震前のラドン濃度等の特異な変動が、どのような地球物理的または地球化学的現象によって起こるのかが解明され、そして地震予知の手がかりの一助となることを願っている。

### 参考文献

- 1) 島崎邦彦, 松田時彦編: 地震と断層, 東京大学出版会, 1994.
- 2) 五十嵐丈二: 地震に関連した地下水の水位・ラドン濃度変化のいくつかの特徴と地震予知の可能性. 地球化学, **30**, 116(1996)
- 3) 脇田宏: ラドン観測と地震予知. 保健物理, **31**(2), 215-222(1996)
- 4) H. Wakita, Y. Nakamura, K. Notsu, M. Noguchi and T. Asada: Radon anomaly: A possible precursor of the 1978 Izu-Oshima-kinkai earthquake. *Science*, **207**(2), 882-883(1980)
- 5) 吉川澄夫, 伊藤秀美: 1995年兵庫県南部地震の概要. 月刊「地球」, 号外No.13, 30-38(1995)
- 6) 日本地質学会 環境地質研究委員会編: 阪神淡路大震災, 東海大学出版会, p2-16(1996)
- 7) G. Igarashi, S. Saeki, N. Takahata, K. Sumikawa, S. Tasaka, Y. Sasaki, M. Takahashi and Y. Sano: Ground-water radon anomaly before the Kobe earthquake in Japan. *Science*, **269**, 60-61(1995)
- 8) U. Tsunogai and H. Wakita: Precursory chemical changes in ground water: Kobe earthquake, Japan. *Science*, **269**, 61-63(1995)
- 9) 藤森邦夫, 山本剛靖, 石井紘: 1995年兵庫県南部地震に関連した地殻変動と湧水量変化. 月刊「地球」, 号外No.13, 148-153(1995)
- 10) Y. Yasuoka and M. Shinogi: Anomaly in atmospheric radon concentration: A possible precursor of the 1995 Kobe, Japan, earthquake. *Health Phys.*, **72**(5), 759-761(1997)
- 11) 渡辺満久, 鈴木康弘: 活断層地形判読, 古今書院, p164-165(1999)
- 12) Y. Yasuoka and M. Shinogi: The variation of atmospheric <sup>222</sup>Rn concentration in Kobe. *Radioisotopes*, **43**(11), 688-694(1994)
- 13) 安岡由美, 志野木正樹: 六甲山系における天然水中のラドン濃度について(その2). 日本保健物理学会第34回研究発表会講演要旨集, p106(1999)
- 14) A. Katase: Prediction of the earthquake from the change of radon concentration in air. *Mem. Coll. Univ. Tohwa*, **22**, 189-196(1996)
- 15) 安藤雅孝: 1995年兵庫県南部地震の前震・本震・余震・誘発地震. 月刊「地球」, 号外No.13, 18-29(1995)
- 16) C.-Y. King: Radon, Gas geochemistry, groundwater, and earthquakes. Radon and thoron in the human environment. *Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium*, 115-123(1997)
- 17) H. Wakita: Radon observation for earthquake prediction. Radon and thoron in the human environment. *Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium*, 124-130(1997)

## Correlation Analysis Applied to Atmospheric Radon and Typhoon

Helen CLIMENT, Katsuhiro MIYAMOTO, Shinji TOKONAMI and Yuji YAMADA

National Institute of Radiological Sciences

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

### Abstract

A drastic variation of the atmospheric radon concentration was observed when a typhoon went across our measurement site last September. The following climatic data were continuously acquired on the site : air pressure, temperature in the air and in the soil, humidity in the soil, wind speed, wind direction and rainfall. The data were analyzed using time-series analysis method, i.e. Correlation and Spectrum Analysis, to point out the possible relationship between radon and an environmental variable. Some correlations appeared between radon concentrations and typhoon effect data such as temperature, humidity, wind direction and air pressure.

### Keywords

Radon, Statistical Analysis, Typhoon, Climatic data, Correlation.

### Introduction

A study on the relationship between radon concentrations and environmental variables has been carried out using Correlation and Spectrum Analysis<sup>1)</sup>. Several typhoons occurred in 1998. When the fifth typhoon went across our measurement site in September, atmospheric radon concentrations varied drastically. The following meteorological data were simultaneously acquired during that period : air pressure, temperature, relative humidity, wind speed, wind direction and rainfall. The influence of those variables on radon concentrations variations has been pointed out several times<sup>3, 4, 5, 6, 7, 8)</sup>. Unfortunately the observation of the raw data does not answer the following questions : which climatic variable has an influence on radon concentrations, what is the type of influence and the time delay. To study quantitatively those effects we analyzed the data with Correlation and Spectrum Analysis. The cross correlogramme function between radon concentrations and an environmental variable time series shows the type of relation and gives the response time in the case of an input-output relation<sup>9)</sup>. Moreover the cross correlation function is the unit impulse response in the case of a random input function. The only hypothesis is that the environmental variable is the input function and radon concentration the output function of the system.

## Materials and Methods

### Correlation and spectrum analysis

The time series are analyzed on the basis of Fourier Transform. The time series are compared by the auto-correlation function. The cross correlogramme corresponds to the auto-correlation function between two defined time series  $x$  and  $y$  for increasing time steps  $k$  positive or negative. If the input is a random function, the cross correlogramme will be the transfer function. Otherwise, the response will be a reverse correlation. A causal relation can not show a symmetrical correlogramme. It would mean that the effect plays a part on the cause. A symmetrical relation means that the two functions are the effect of the same cause.

The cross correlogramme function is calculated as follow :

$$\begin{aligned} r_{+k} = r_{xy}(k) &= \frac{C_{xy}(k)}{S_x S_y} & \text{with} & \quad C_{xy}(k) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n-k} (x_i - \bar{x})(y_{i+k} - \bar{y}) \\ r_{-k} = r_{yx}(k) &= \frac{C_{yx}(k)}{S_x S_y} & \text{with} & \quad C_{yx}(k) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n-k} (y_i - \bar{y})(x_{i+k} - \bar{x}) \\ S_x^2 &= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 & \text{and} & \quad S_y^2 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2 \end{aligned}$$

In the calculation of the cross correlation function, the following is assumed : the variable is considered as the input function, or the cause, while radon is considered as the output function or the effect. The cross correlogramme shows how environmental variables affect radon concentrations. Figure 1 describes the different types for cross correlogramme. Figures 1(a) and (b) show a cause-to-effect relationship (where "t" is the response time) and the input determines the output. In Figure 1(c), the two functions have a common cause and the cross correlogramme is symmetrical. A "flat" correlogramme means that the two functions are independent variables.

### Radon measurements

The experimental site is located at the National Institute of Radiological Sciences, Japan. In this region, the bedrock is metamorphic type covered by 150 m of volcanic ash soil. Radon concentrations were continuously measured in a one floor concrete building. This building has been used as an electrical facility 20 years before and is now naturally ventilated. The ventilation rate measured by CO<sub>2</sub> method was 0.05h<sup>-1</sup>. Radon was measured with an Electrostatic Radon Monitor<sup>2)</sup>. The climatic data were continuously recorded by a weather station on the same site. All the data were acquired with a sampling frequency of 1 hour. The data from September 1998 to January 1999 were considered for the analysis.

## Results & Discussion

Figures 2 show the raw data. From all the climatic variables measured, three of them seem to be related to the change in radon concentrations. Those variables are pressure (figure 2.a), rainfall



(figure 2.b) and wind speeds (figure 2.c). When air pressure decreases, radon concentrations increase. This effect is known as the pumping effect, depleting the upper layers of the soil in radon<sup>3</sup>). The occurrence of rainfall leads to an increase of radon concentrations. Precipitation increases the humidity of the soil and thus the emanation power. When the soil is saturated with water, less radon reaches the surface because of the small radon diffusion factor in the water. When wind

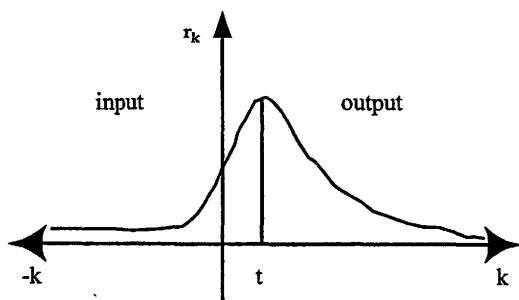


Fig. 1.a Example of cross correlogramme correlation.

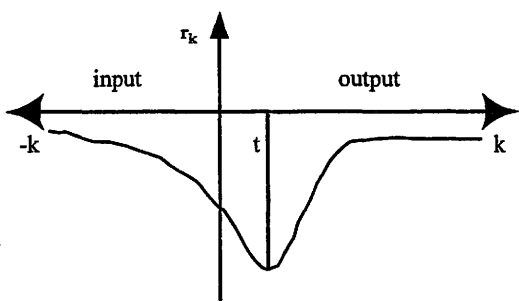


Fig. 1.b Example of cross correlogramme inverse correlation.

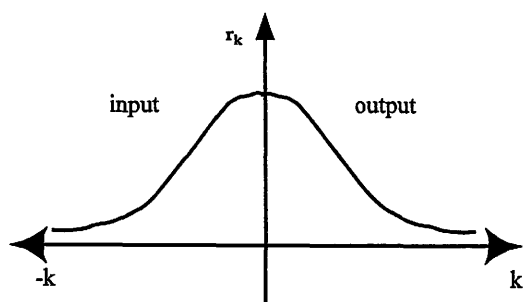


Fig. 1.c Example of cross correlogramme common cause.

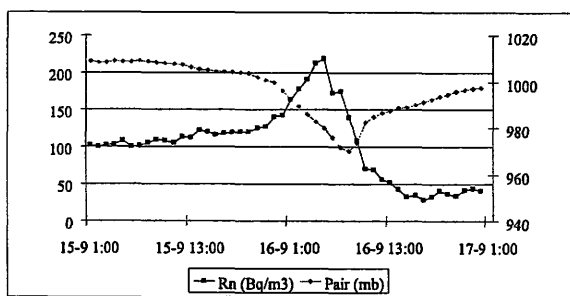


Fig. 2.a Raw data of radon and pressure.

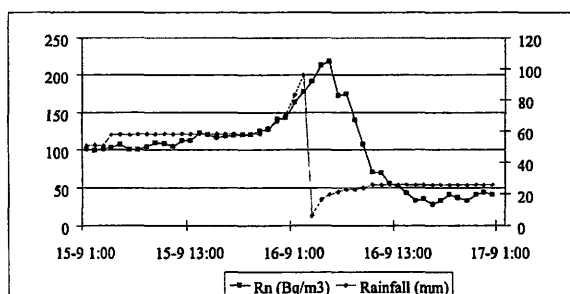


Fig. 2.b Raw data of radon and rainfall.

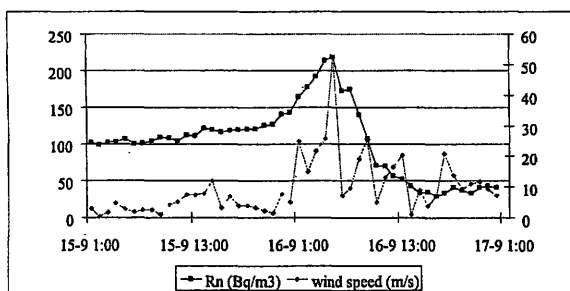


Fig. 2.c Raw data of radon and wind speed.

speed increases radon concentration are increasing. Wind sweeps the upper layers of the soil.

Figure 3 (a) shows the cross correlogramme functions between the time series of radon concentration and temperature in the air plus temperature in the soil. For the temperature in the air as well

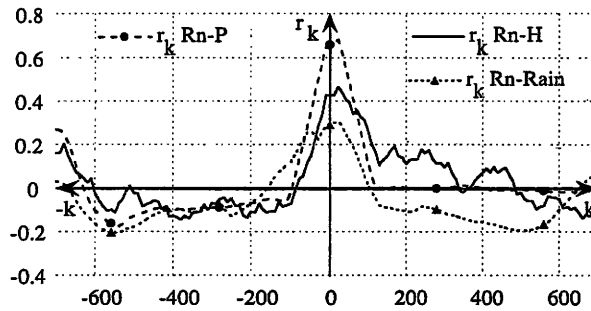


Fig. 3.a Cross correlogramme functions for radon (output) and temperature (input) time series ( $t_{air}$  is the temperature of the air,  $T_{so10}$  and  $T_{so30}$  is the temperature in the soil at respectively 10 and 30 cm depth).

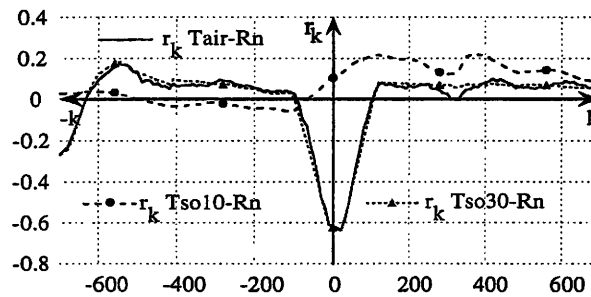


Fig. 3.b Cross correlogramme functions for radon (output) and pressure, humidity and rain (inputs) time series.

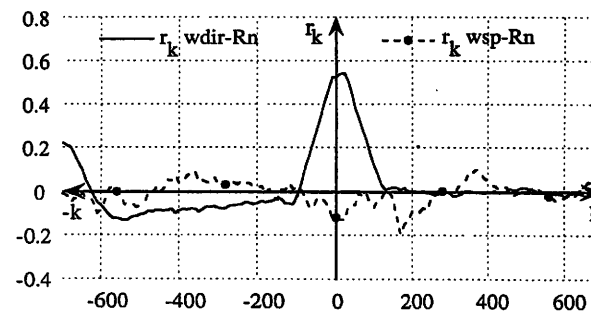


Fig. 3.c Cross correlogramme functions for radon (output) and wind speed and wind direction (input) time series.

as the temperature in the soil at 30cm depth, the response of radon concentrations is an inverse correlation without time delay. No relation is observed between radon concentration and the temperature in the soil at 10cm depth. The raw data did not show those relations. However when temperature changes, a temperature gradient appears between the bottom and the top of the hole where radon concentrations are measured. This results in a pressure gradient and the variation of radon concentrations<sup>4)</sup>.

Figure 3 (b) displays the cross correlogramme functions between radon concentrations and humidity in the air, air pressure and rain time series. In the case of humidity and rainfall, the response is a correlation without time delay. Rainfall, closely related to humidity in the soil,

increases the production rate of radon<sup>5, 6, 7)</sup>. The relation between rainfall and radon concentration time series was suggested by the raw data while no obvious relationship appeared with humidity. In the case of air pressure, the response is a symmetrical correlogramme, i.e. the time series of radon and air pressure are related to the variation of the same variable. The role of air pressure on radon transport is known as its pumping or piston effect<sup>3, 8)</sup>. The cross correlogramme confirms the relation between radon concentration and air pressure observed on the raw data.

Figure 3(c) shows the cross correlogramme function between the time series of radon concentration wind speed and wind direction. While radon concentration time series is correlated to the wind direction without response time, no relationship appears between radon concentration and wind speed time series. Buildings under three directions surround the site where radon concentrations are measured ; therefore, wind direction is an important variable. Wind sweeps the upper layers of the soil and radon concentrations are decreasing<sup>9)</sup>.

## Conclusion

Correlation and Spectrum Analysis were used to study the response of radon concentrations to the variation of some climatic variables. Correlation and Spectrum Analysis are a useful tool that connects observation of the raw data with modeling. The only assumption is to consider an environmental variable time series as the input function and radon concentration times series as the output function of the system. The cross spectrum function confirmed the relationship between radon concentration time series and the times series of air pressure, humidity, rainfall, wind direction, air temperature and temperature in the soil at 30cm depth. The impact of the typhoon was clearly displayed on the raw data and confirmed with the statistical analysis.

## References

- 1) Mangin, A. : Pour une meilleure connaissance des systemes hydrologiques a partir des analyses correlatoires et spectrales. *J. Hydrol.*, **67**, 25-43 (1984)
- 2) Iida, T., Ikebe, Y., Suzuki, K., Ueno, K, Komura, K. and Kato, I. : An electrostatic radon monitor for the continuous measurements of environmental radon. In "*Proceeding of the 1991 Radon Symposium*", 410-420 (1992)
- 3) Clement, W. E. and Wilkening, M.H. : Atmospheric pressure effects on <sup>222</sup>Rn transport across the earth-air interface. *J. Geophys. Res.*, **79**(33), 5025-5029 (1974)
- 4) Rudakov, V.P. : Nature of the seasonal variations in subsoil radon. *Geokhimiya*, **7**, 133-135 (1985)
- 5) Fleischer, R. L. : Moisture and <sup>222</sup>Rn emanation. *Health Physics*, **52**(6), 797-799 (1987)
- 6) Klusman, R. W. and Jaacks, J.A. : Environmental influences upon mercury, radon and helium concentrations in soil gases at a site near Denver, Colorado. *J. Geochem. Explor.*, **27**, 259-280 (1987)
- 7) Strandén, E. A., Kolstad, K. and Lind, B. : The influence of moisture and temperature on radon exhalation. *Radiat. Protect. Dosim.*, **12**(1), 33-38 (1984)
- 8) Singh, M. R., Ramola, R. C., Singh, N. P., Singh, S. and Virk, H.S. : The influence of meteorological parameters

on soil gas radon. *J. Assoc. Expl. Geophys.*, **9**, 85-90(1988)

- 9) Climent, H., Bakalowicz, M., Monnin, M. : Role of environmental variables on radon concentrations in the soil. In "*Radon and Thoron in the Human Environment*" (Katase, A. and Shimo, M. eds.), pp. 324-329, World Scientific, Singapore (1998)

## 水とラドン

田阪 茂樹、高橋 誠\*、鶴留 浩二\*\*

岐阜大学 教育学部

\*通産省工業技術院 地質調査所

\*\*核燃料サイクル機構 人形峠環境技術センター

### Radon Measurement in the Underground Water

Shigeki TASAKA, \*Makoto TAKAHASHI and \*\*Kouji TSURUTOME

Faculty of Education, Gifu University, Yanagido 1-1, Gifu 501-1193, Japan

\* Geological Survey of Japan, Higashi 1-1-3, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan

\*\*Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC), Ningyo-toge Environmental Engineering Center 1550, Kamisaibara, Tomata, Okayama 708-0698, Japan

#### Abstract

The in-suit radon measurement system was developed for the continuous monitoring in the groundwater radon concentration of the monitoring well. This system consists of an underwater radon detector and a small-sized radon data logger. We have measured the continuous radon concentration of the groundwater during the period 18-December 1996 to 2-February 1998, by using of the new measurement system in the monitoring well, No.18, at the NINGYO-TOGE WORKS, Japan Nuclear Cycle Development Institute. The groundwater radon concentration was seasonally changed by the rainfall, snowfall and snowmelt. The highest value of radon concentration was recorded to be 70Bq/l on 2-March 1997, just before the snowmelt. The lowest value was 0.21Bq/l on 3-September 1997, just before the falling of the water temperature. The monthly average of the groundwater radon concentration were obtained among a year. The highest value was 64Bq/l with the lowest water temperature 7°C in the monitoring well on February 1997. The lowest value was 0.82Bq/l with the highest water temperature 18°C on August 1997. The groundwater radon concentration in No.18 well was suddenly increasing by the rain fall, after that was decreasing in according to  $^{222}\text{Rn}$  decay curve during the period 20-May 1997 to 21-July 1997. Five clear samples of the increase of radon concentration were observed at 21-May, 27-May, 6-Jun, 28-Jun and 8-July 1997 with the rainfall. The increase rate of the radon concentration Bq/l with the rainfall mm was estimated to be about 0.019(Bq/l)/mm at 28-Jun 1997.

## I. はじめに

### 1. ラドン観測について

ラドンは20世紀初頭に発見されたウラン・ラジウム系列の放射性希ガスである。最近になって、様々な目的でラドン及びその娘核種の観測が実施されるようになってきた。ラドン<sup>222</sup>Rnは半減期3.8日で、水に比較的溶けやすく、かつ水中での拡散速度が低いので地下水とともに移動する。この性質を地震発生のダイラタンシーモデル等と関連させて地震予知に役立てようと、地下水中ラドンの恒常的観測による研究も進められている<sup>1)</sup>。阪神大震災で大きな被害の出た兵庫県西宮市の井戸で、地震前に地下水のラドン濃度が急激に上昇して、通常の十倍以上にも達していたことが、われわれの開発した水中ラドン検出器を用いて観測された<sup>2)</sup>。

また、宇宙線物理学の研究分野では、スーパーカミオカンデのような太陽ニュートリノの観測を目的とした大型水チェレンコフ検出器において、純水中に溶けているラドンによるバックグラウンドが大きな問題になっている。そこで水中ラドンを観測しその除去に役立てるために、ラドン濃度の検出限界値が0.01Bq/m<sup>3</sup>の超高感度の水中ラドン検出器の開発が行われ、現在スーパーカミオカンデ装置内に設置され、純水中のラドン濃度のリアルタイム連続観測を行っている<sup>3)</sup>。

気象学的には気団やエロゾルの動きを調べるため、ラドンをトレーサーとして利用しようという研究が行われており<sup>4)</sup>、新しく開発された超高感度ラドン検出器は、第37次南極地域観測において南極大陸の大気中の0.01Bq/m<sup>3</sup>程度の極低ラドン濃度の観測を行っている。保健物理の分野でも、住居環境において、エロゾルに付着しているラドン娘核種を吸い込んだ人体への影響調査などに関連してラドン濃度の測定が行われている<sup>5)</sup>。また、ラドンの特性を利用した水循環機構や地下水の流動解析にも応用されている<sup>6)</sup>。

このようにラドン観測の目的が多様化し、計測の機会が増え、私たちの身近な生活環境や屋外などいろいろな条件下でラドンを観測するためには、大型の設備を必要としない小型で安価なラドン計測システムが必要になっている。現在使用されている計測システムは消費電力が数ワット以上必要であり、蓄電池での長期のラドン観測には不向きである。そこで本研究では、持ち運びが容易で比較的手軽にラドンの観測ができる小型ラドンデータロガーの開発を行った。

### 2. 地下水中の原位置ラドン観測について

様々な場所においてラドン観測が進められている中で、核燃料サイクル開発機構人形峠環境技術センターでも、捨石堆積場からの周辺への影響についてウラン、ラジウム、ラドン等の挙動調査を実施してきている。

現在、人形峠環境技術センターでは、大気中のラドン観測、及び水中のラドン測定を行っている。この水中ラドン測定は年に数回、現地で水をサンプリングしてセンターに持ち帰り液体シンチレーション法で測定するものである<sup>7)</sup>。

本研究では原位置で1年以上の長期間の連続観測を目的をして、人形峠環境技術センター内の夜次露天採掘場跡地にある23ヵ所のモニタリング試錐孔のうちの3ヵ所を利用して、地下水中のラドン観測を行った。これらの試錐孔は口径が約65mmから100mmで深さが10mから30mであり、ここへ直接投入可能な直径60mm、長さ300mmの原位置水中ラドン検出器の開発を行った。本研究ではいままで別々に開発を行ってきた、小型ラドンデータロガーと水中ラドン検出器を組み合わせることにより、原位置水中

ラドン測定装置の製作が可能となった。

## Ⅱ. 原位置水中ラドン検出器

### 1. ラドン検出器について

平成4年に、PINフォトダイオード(PD)を用いた静電捕集型のラドン検出器が開発された<sup>8)</sup>。この検出器は、ラドン<sup>222</sup>Rnの娘核種<sup>218</sup>Po(RaA)、<sup>214</sup>Po(RaC')が崩壊するとき放出する $\alpha$ 線のエネルギーを、PDで捕えて、そのとき生成した電子を増幅器で電圧に変換して測定するというものである。

また、平成6年に水中ラドン検出器が開発された<sup>9)</sup>。この検出器は、上記のラドン検出器と、水を通さずラドンガスを透過することができる機能性ガス分離膜を組み合わせたものである。この検出器を水中に沈めることによって、水中のラドン濃度を測定することができる。本研究ではこのタイプの水中ラドン検出器の小型化の改良を行った。

### 2. PINフォトダイオードの $\alpha$ 線検出原理

自然放射性元素であるラドン<sup>222</sup>Rnは3.8日の半減期で放射線を出しながら娘核種へ壊変していく。静電捕集法を利用した上記のラドン検出器では、PD検出器の表面と容器の間に-120Vの電位差をかけて、正に帯電しているラドン娘核種をPDの表面に捕集する。そして、そこで放出される $\alpha$ 線をエネルギー分解能40keVの高精度で測定している。

PDとは、PN接合型半導体のp層とn層の間にi(intrinsic)層が存在するものである。PN接合型半導体において、p層とn層との接合部では、電子・正孔対が生成され、この接合部には、キャリア(電子または正孔)の欠乏した空乏層と呼ばれる層ができる。PDでは、p層とn層の間のi層で電子・正孔対が生成される。PN接合型半導体との違いはこの電子・正孔対の発生領域が低不純物としている点である。i層にはキャリアが存在しない、つまりi層が存在することにより、空乏層の領域は広がる。このPDに外部から、p側に負の、n側に正の逆バイアス電圧をかけることにより、キャリアはさらに移動し空乏層はさらに大きくなる。この空乏層はキャリアがほとんど存在しないため高い低抗の領域となり、電圧はほぼこの部分にかかることになる。

PDの表面に捕集されたラドン娘核種が放出した $\alpha$ 粒子が、この空乏層に入射した場合、飛跡の近くでは $\alpha$ 粒子の持つエネルギーによって空乏層中の原子間の結合の電子は電離され、電子の跡に正孔が生ずる。つまり、キャリアが生成され、 $\alpha$ 粒子の持つエネルギーはこれに使われる。1個のキャリアを生成するために必要なエネルギーは半導体の種類によって決まっている。(ここで使用されるシリコン半導体はその値が3.6eVである。)これは、 $\alpha$ 粒子のエネルギーに比例した個数の電子・正孔が得られるということである。そして逆バイアス電圧による電界により、電子と正孔それぞれが逆方向に引き寄せられる。電子は前置増幅回路に入力されてその数に比例した電圧値の信号パルスに変換された後、測定される。

### 3. 原位置水中ラドン検出器

今回製作したのは、従来のラドン検出器に機能性ガス分離膜を取り付け、水中に沈めた状態で水中ラドン濃度を測定することができるような水没型の小型水中ラドン検出器である。また、人形峠環境技術センターにおいて地下水のラドン観測をするにあたって次のような条件を満たした検出器でなければならない。

- (1) AC電源等の設備の整っていない屋外で測定ができる。
- (2) 1ヵ月以上の長期間にわたって自動車用鉛蓄電池を使って連続測定ができる。
- (3) 持ち運びが容易にでき、口径65mmの井戸に投入可能である。

検出器は、ステンレス容器、PD、アンプモジュール、焼結金属フィルタ、防水コネクタ、機能性ガス分離膜、ケーブルリールより成る。また、PDは浜松フォトニクス(株)製の、パシベーション付ベアチップタイプの型番「S3590-06」である。検出面積は $9 \times 9$  mm、厚さ $500 \mu\text{m}$ のものを使用した。容器の検出部の容積は116ml、容器の開口部の面積は $2.7\text{cm}^2$ 、静電捕集電圧は $-120\text{V}$ である。ケーブルリールは深井戸に沈めるため160mの長さがある。Fig. 1に小型水中ラドン検出器の概略図を示す。

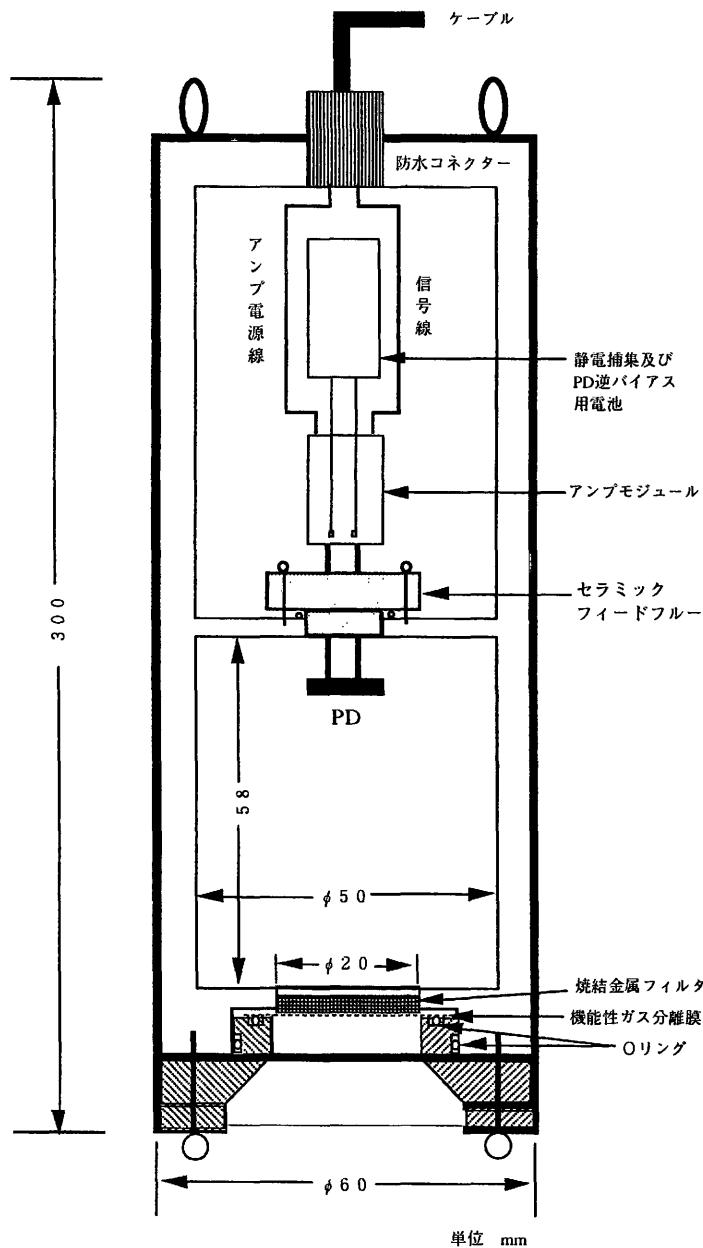


Fig. 1 小型水中ラドン検出器の概略図



この水中ラドン検出器は深井戸内の地下水に沈めるため、水圧がかかることになる。さらに長期にわたって水没させるため、長期間機能膜に負担をかけ続けることになり、膜が損傷する恐れがある。これらによる機能性分離膜の損傷、および水漏れを防ぐために、焼結金属フィルタのサポート板を用いて補強した。焼結金属というのは、金属粉末を圧縮成形し、溶融点以下の温度で焼固めたものである。網の目のようになっており、ラドンガスが通過する。今回使用した材質はステンレスである。

開口部には、水は通さずガスは通すという特性から、機能性ガス分離膜として、ヘキスト・インターナショナル東京(株)の「セルガード」というポリプロピレン製のフィルムを用いた。この「セルガード」には様々なグレードがあるが、ここではNo. 2400というものを使用した。Fig.2は「セルガード」の電子顕微鏡写真である。



Fig.2 「セルガード」の電子顕微鏡写真

「セルガード」はガスの透過に対しては極めて敏感で、非常に小さい圧力下でも透過できることがわかっている。また、「セルガード」の臨界面張力は35dyne/cmで、水の表面張力72.8dyne/cmの方が大きい。このためこの膜は水を通さない。検出器を水中に沈めていくと水圧が高くなり、膜を隔てて容器内の気体圧と水圧との間に圧力差が生じる。この膜を水は透過できないので、水との圧力差に伴い検出器内の気体との間で蒸気圧に不平衡が生ずることになる。この結果、水中に溶解している気体分子(ラドンガス)は膜を透過して検出器に入り込み、平衡を保つために必要なある時間の後、膜を隔てた両者の圧力が等しくなる。つまり、水中において気体平衡の状態が成立すると考えられる。一定の圧力において水中に溶解している $^{222}\text{Rn}$ と、気体として存在する $^{222}\text{Rn}$ の比は一定であるから、この方法で水中のラドン濃度の変化に応じた測定ができるといえる。

この深井戸用水中ラドン検出器は長時間地下水中に沈めて連続測定する。その際、開口部のあたりから水漏れがおこると、徐々に入ってきた水が機能膜を覆ってしまうため、水中のラドン濃度を正確に測

定することができない。また、コネクタ部分からの水漏れがおこるとアンプなどの電気部分の故障の原因になる。従って、検出器の防水は測定に関して非常に重要である。開口部の防水については、機能膜に「セルガード」を使用し、焼結金属のサポート板とOリングの間に機能膜をはさみ、蓋で押さえこんで固定した。コネクタ部分については水中コネクタを使用し完全に防水できている。

### Ⅲ. 小型ラドンデータロガーの製作

#### 1. 小型ラドンデータロガーの概要

従来のラドン計測システムでは、商用電源などの設備の整った場所でしか測定できない。平成8年に小型ラドンデータロガーが開発され、設備の整っていない屋外などいろいろな場所でのラドン観測が可能になった<sup>10)</sup>。このシステムは従来のシステムを簡略化し、低消費電力で動かせる。よって、電源を自動車用鉛蓄電池(12V)より供給することができる。今回はこの小型ラドンデータロガーを、イビデン産業(株)で製品化し使用した。その規格表をTable1に示す。また、小型ラドンデータロガーのブロックダイアグラムをFig.3に示す。

この小型ラドンデータロガーは、ラドン検出器によって変換された電圧パルスをラドン測定用8ビットAD変換モジュールが受け、ピークホルダー回路、コンパレータ回路を通し、遅延一発パルス発生回路を使ってAD変換する。ラドン信号の測定、データ処理、記憶を行い、測定終了時にデータをパソコンに送るというシステムになっている。

小型ラドンデータロガーの外形サイズは、55(H)×200(W)×160(D)mmであり、内部のマザーボードには、テレフォンカードの大きさのマイコンモジュール、ラドン測定用AD変換モジュールと2個のDC-DCコンバーターが装備されている。また、液晶表示、ディップスイッチ、ロータリースイッチ、押ボタンスイッチ、通信用コネクタ、ラドン検出器用の電源コネクタと信号入力コネクタが装備されている。

Table 1 小型ラドンデータロガーの規格表

Analog Input	1channel, 50Ω impedance acceptable input voltage: 0~ +1.24V peak voltage detect input signal risetime: 150 ns~5μs
ADC resolution	8bits
Frequency	maximum 10kHz
ADC trigger	internal trigger mode threshold setting: 10mV~600mV
Interrupt signal	INT signal output
Sampling interval	adjustable interval: 1/16s~150min
Recording memory	28.8kB RAM for maximum 1,440 sampling with a push switch to dump the data for PC
Display	LCD(20 char.×2 lines)
Display switch	rotary switch: check the past data of 1,440 sampling display mode: <sup>218</sup> Po and <sup>214</sup> Po count mode or concentration mode
Supply voltage	+12V with the car battery
DC-DC converter	+12V→+5V, +12V→±12V, efficiency 60%
Power consumption	+5V · 26mA +12V · 13mA, -12V · 10mA(amplifier for radon detector)
Size	55(H)×220(W)×160(D)mm
Weight	800g

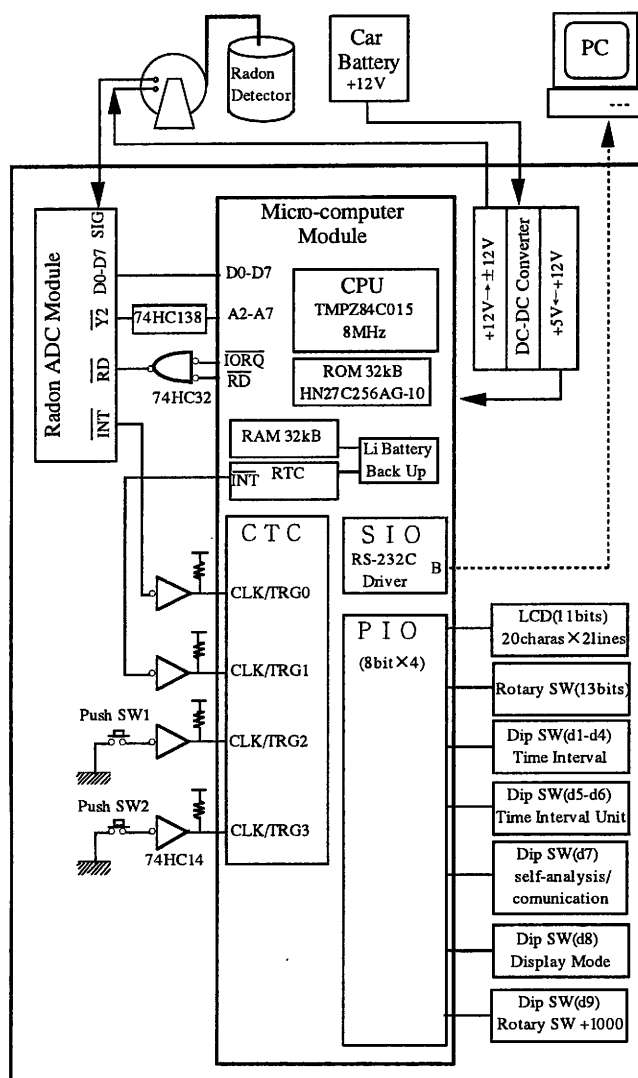


Fig. 3 小型ラドンデータロガーのブロックダイアグラム

## 2. 小型ラドンデータロガーの操作方法

ロガーのリアパネルには、「d1からd9」の9個のディップスイッチがある。これらのスイッチについて説明する。

### (1) 測定時間インターバルの設定

ディップスイッチ「d1からd6」を用いる。最初に「d5とd6」でインターバル基本単位を決める。例えば、10分単位だと2進数表記法で11Bとなる。ここで「1」=OFF、「0」=ONである。次に、「d1からd4」でインターバル定数を決める。この定数にインターバル基本単位を掛けた値が、実際の測定時間インターバルとなる。例えば、30分の測定時間インターバルだと、110011B(2進数)となる。最長の測定時間インターバルは150分で111111Bである。また、最小の測定時間インターバルは0.5秒で100000Bとなる。

## (2) 「自己解析」モードと「通信」モードの設定

両者の切り替えをディップスイッチ「d7」でおこなう。OFFにすると「自己解析」モード、ONにすると「通信」モードになる。「自己解析」モードにおけるデータ取得は、測定継続中にパソコンを接続し、パソコン上でデータ受信プログラム「ASCII1. E」を動作させておく。そして、レアーパネルの黄色の押しボタンスイッチ(Push SW1)を押すと、RAMに記憶されていた1440回分のデータがパソコンに転送される。[通信]モードのときは、常にロガーとパソコンは接続しておき、パソコン上で動作している「UME0. EXE」がロガーへコマンドを発信して、データを受信する。今回の研究では「自己解析」モードでロガーを使用した。

## (3) 表示切り替え設定

ディップスイッチ「d8」で表示切り替えを行う。ONにするとカウント表示、OFFにすると濃度表示になる。

## (4) 過去のデータ表示

PIOに接続されたフロントパネルのロータリースイッチと緑色の押しボタンスイッチ(Push SW2)によって、メモリに記憶されている過去のデータを液晶表示に呼び出して見ることができる。3桁のロータリースイッチで呼び出したいデータが現在から何回前のものであるかをセットし、押しボタンスイッチを押すと過去のデータを見ることができる。過去のデータは液晶表示に日付の前に「P」をつけて表示される。ロータリースイッチは3桁までしかないが、記憶されるデータは1440回分あるので、ロータリースイッチだけでは1000回以前のデータを見ることができない。そこで、ディップスイッチ「d9」を使って千の位を表わすことにした。OFFにするとセットしたロータリースイッチの値に「1000」を加算することになる。

小型ラドンデータロガーが動作中でも、表示切り替え設定ディップスイッチ「d8」とロータリースイッチの加算値設定ディップスイッチ「d9」は、自由に変更することができる。

## 3. 小型ラドンデータロガーの消費電力

CPU「TMPZ84C015」にはRUN・IDLE 1・IDLE 2・STOPの4種類のホールドモードがあり、ホールドモード設定レジスタによってこれらの内いずれかの動作モードを選択することができる。今回使用したIDLE 2では、ホールド中は内臓CTCのみ動作してクロックは外部に供給される。IDLE 2モードを設定することにより消費電流をRUNモードの半分以下に低減することができた。シリアルポートチャンネルBには、シャットダウンモードを備えたRS-232Cドライバが接続されており、このICをシャットダウンモードに設定することにより、消費電流をおよそ4 mA減らすことができた。

自動車用バッテリーを使っでの観測で問題になるのは、どの程度の期間まで連続して計測できるかということである。今回は12V×38Ahの容量のものを使用した。この小型ラドンデータロガー(「自己解析」モード)の消費電力を測定すると832mWとなった。自動車用バッテリーの電力量は456Whなので、観測継続期間は約23日である。今回の実験では、バッテリーを4個並列につなぐことにより観測継続期間を約2ヵ月まで延長させた。

## IV. 地下水中の原位置ラドン濃度測定

### 1. 実験目的

人形峠環境技術センターでは、平成6年度から7年度にかけて方面地区の土壌、地下水採取を行うとともに、放射能濃度の測定を行い、捨石からの放射性核種の影響範囲を推定するとともに研究課題の抽出を行った。その結果、平成8年度は土壌・岩石中および地下水中の放射性核種(特にラドン)を解析する装置・解析手法の研究を実施することになった。そのうち岐阜大学では、地下水中のラドンを測定する装置の開発を行うこととなった。年間数回の地下水サンプリングによる液体シンチレーション法による測定を行うとともに、モニタリング試錐孔での原位置ラドン測定手法を用いた連続観測を行うことを目的とする。

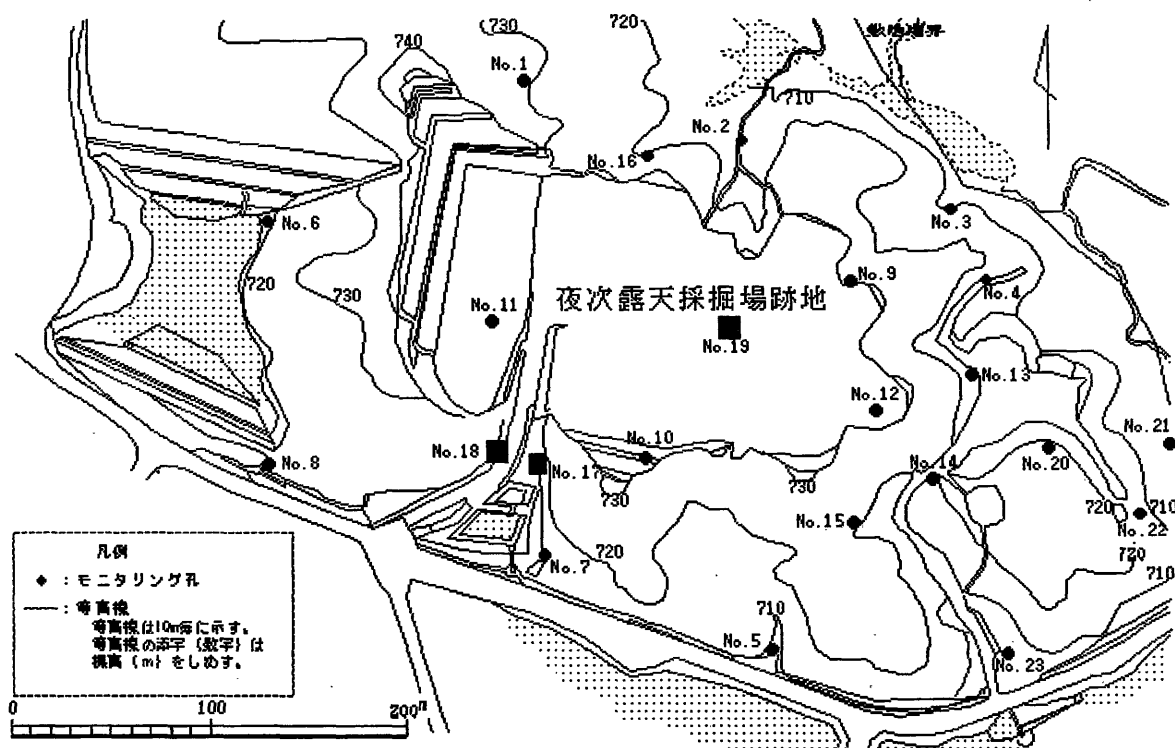


Fig. 4 人形峠環境技術センター内の夜次露天採掘場跡地試錐孔配置図

### 2. 実験方法

#### (1) 実験場所の決定

人形峠環境技術センター内には夜次露天採掘場跡地があり、この跡地の周辺には23本のモニタリング試錐孔がある。Fig. 4は夜次露天採掘場跡地のモニタリング試錐孔の配置図である。図にはNo. 1からNo. 23までのモニタリング試錐孔の場所が記入してあり、このうちNo. 17とNo. 18を今回の実験の実施地点に決定した。その理由は道路に近く積雪時のアクセスが容易なこと、すぐ近くに揚水ポンプの小屋があり、もしAC電源が必要なときは利用できることである。またNo. 10のみ原位置水位測定を実施している。Table 2には夜次露天採掘場跡地周辺のNo. 10、No. 17、No. 18、No. 19のモニタリング試錐孔の概要を示す。この表の水位データは平成8年5月14日の測定値である。

Table 2 夜次露天採掘場跡地周辺のNo.10, No.17, No.18, No.19モニタリング試錐孔概要

試錐孔	観測項目	標高 (m)	掘進長 (m)	孔径 (mm)	水位(m)(測定年月日)
No.10	水位	725.077	30	30	5.56(平成8年5月14日)
No.17	水位水温	719.976	25	75	2.06(平成8年5月14日)
No.18	ラドン観測	720.502	10	75	1.80(平成8年5月14日)
No.19	ラドン観測	724.76	30	100	7.30(平成11年11月9日)

## (2)水中ラドン検出器の設置

岐阜大学で試験した2台の小型水中ラドン検出器を夜次露天採掘場跡地周辺の2カ所のNo.17とNo.18のモニタリング試錐孔の水深約1mに沈めて水中ラドン濃度についての観測を行った。2台の小型水中ラドン検出器は小型ラドンデータロガーに接続され、ラドンの娘核種が放出する $\alpha$ 線のカウント数を測定した。

「検出器1」は掘進長10mのNo.18のモニタリング試錐孔に設置した。その実験装置設置の概略図をFig.5に示す。電源は自動車用バッテリー4個を並列接続して使用した。「検出器1」は平成8年12月17日から観測を開始して、現在も連続観測を継続中である。ここで水位は試錐孔から突き出ている塩ビ管のてっぺんから水面までの距離である。また、水深は試錐孔の水面から沈めた検出器の開口部までの距離である。

「検出器2」は掘進長25mのNo.17のモニタリング試錐孔に設置した。この検出器は平成8年12月25日から平成9年1月29日までの36日間で観測を終了した。電源はAC電源を利用し、ACアダプターで直流電源12Vを小型ラドンデータロガーに供給した。

両方とも小型ラドンデータロガーのディップスイッチは011011000Bと設定した。これは測定時間インターバルは60分、自己解析モード、カウント数表示、ロータリースイッチの加算値「0」を意味する。

## (3)実験データの取得

ラドン娘核種RaAとRaC'のカウント数データは、60日間は書きなして、ラドンデータロガーのメモリーに記憶されている。2ヶ月に1回、電源の自動車用バッテリー4個を交換し、約60日間の測定データをパソコンに転送した。

通常は1週間に1度、ロータリースイッチ、押しボタンスイッチ、液晶表示によって、午前8時、9時、10時のカウント数データを読み取った。これらのデータから水中ラドン検出器の動作を確認した。

## 3. 測定結果

### (1)ラドン娘核種RaC'のカウント数

ラドン娘核種RaC'のカウント数の変動をFig.6に示す。縦軸は1時間当たりのRaC'カウント数である。No.18モニタリング試錐孔水中ラドン検出器での平成8年12月18日から平成9年2月2日までの結果を示す。

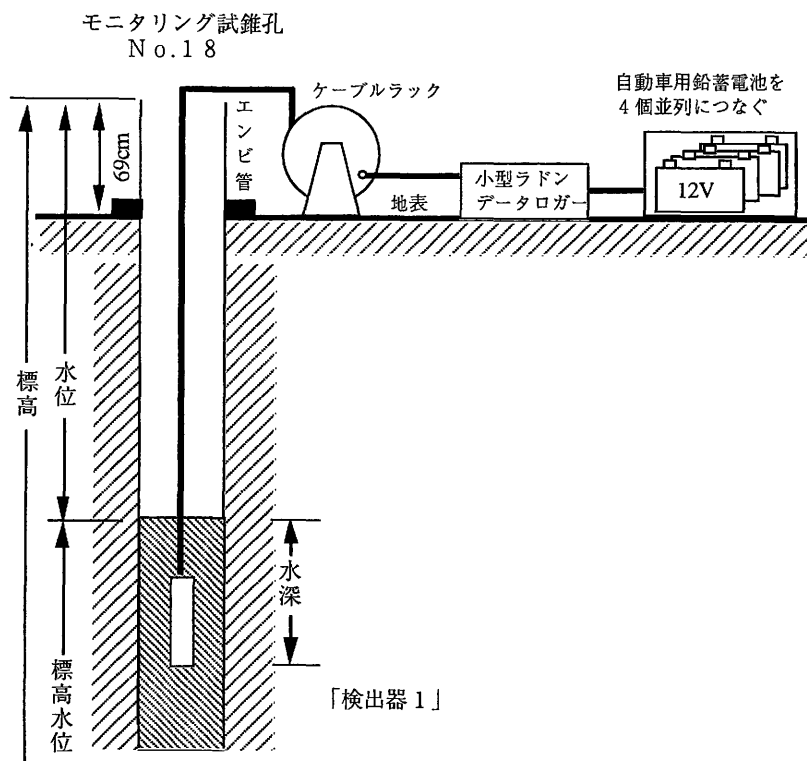


Fig. 5 夜次露天採掘場跡地周辺のNo. 18モニタリング試錐孔に沈めた「検出器1」実験装置の設置概略

No. 18モニタリング試錐孔では平成9年度と10年度で7回、No. 17モニタリング試錐孔では平成9年度で2回、水をサンプリングして持ち帰り、人形峠環境技術センター安全管理課に測定を依頼して、液体シンチレーション法で水中ラドン濃度を測定した。測定値をFig. 6にラドン娘核種RaC'のカウント数といっしょに図示した。

### (2) 試錐孔水位・水温

No. 18モニタリング試錐孔では平成8年12月17日、平成9年1月17日、1月30日、3月25日、4月21日、4月22日、4月23日、6月6日の合計8回、No. 17モニタリング試錐孔では平成8年12月17日、平成9年1月17日、1月30日の3回、水位を測定し、水をサンプリングして水温を計った。水位は塩ビ管の上の端から水面までの距離である。No. 10試錐孔では原位置水位連続測定している。平成8年12月1日から7月24日までの水位データを、No. 18の9回の水位データといっしょにFig. 7に示した。

### (3) 気象データ

Fig. 8は積雪と日雨量の気象データである。積雪は12月始めに若干あり、平成9年1月4日頃から積もり初めて、2月24日以降雪解けが始まり、3月26日に無くなっている。この間、日平均気温は1月2日から2月23日までほとんど0℃以下であった。また、日雨量は6月28日に142mm、7月7日から7月13日の1週間に合計316mmを記録した。

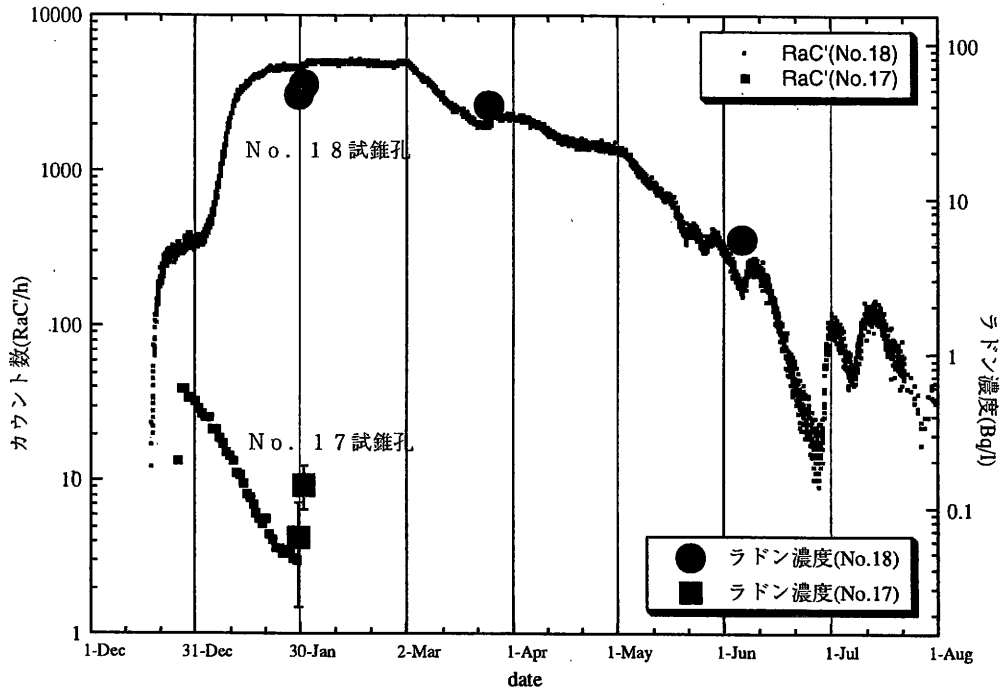


Fig. 6 ラドン娘核種RaC'のカウント数の変動. No.18試錐孔では平成8年12月18日から218日間. No.17試錐孔では平成8年12月25日から36日間. 大きな円は液体シンチレーション法の測定結果を示す.

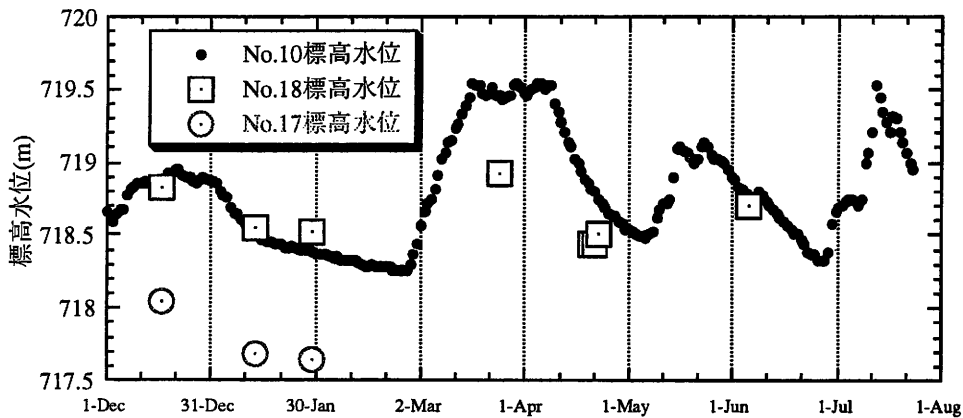


Fig. 7 夜次露天採掘場跡地内のNo.10, No.18, No.17試錐孔標高水位測定結果

## V. 地下水中の原位置ラドン濃度の解析と観測結果

### 1. 地下水中のラドン濃度

Fig. 9は平成9年2月1日から平成10年1月31日の1年間のNo. 18モニタリング試錐孔におけるラドン濃度Bq/lの日平均の観測結果である。水中ラドン検出器の校正実験はこの観測期間で合計7回、試錐孔から水を直接汲み取り、人形峠環境技術センター安全管理課に依頼して、液体シンチレーション法を用いて実施した。Fig. 9にはその測定結果を水中ラドン検出器の結果と一っしょに示す。両者の測定結果は1年間にわたり良く一致した。Table 3はNo. 18モニタリング試錐孔における平成9年2月から平成10年1月までの月間平均の水中ラドン濃度Bq/lをまとめたものである。



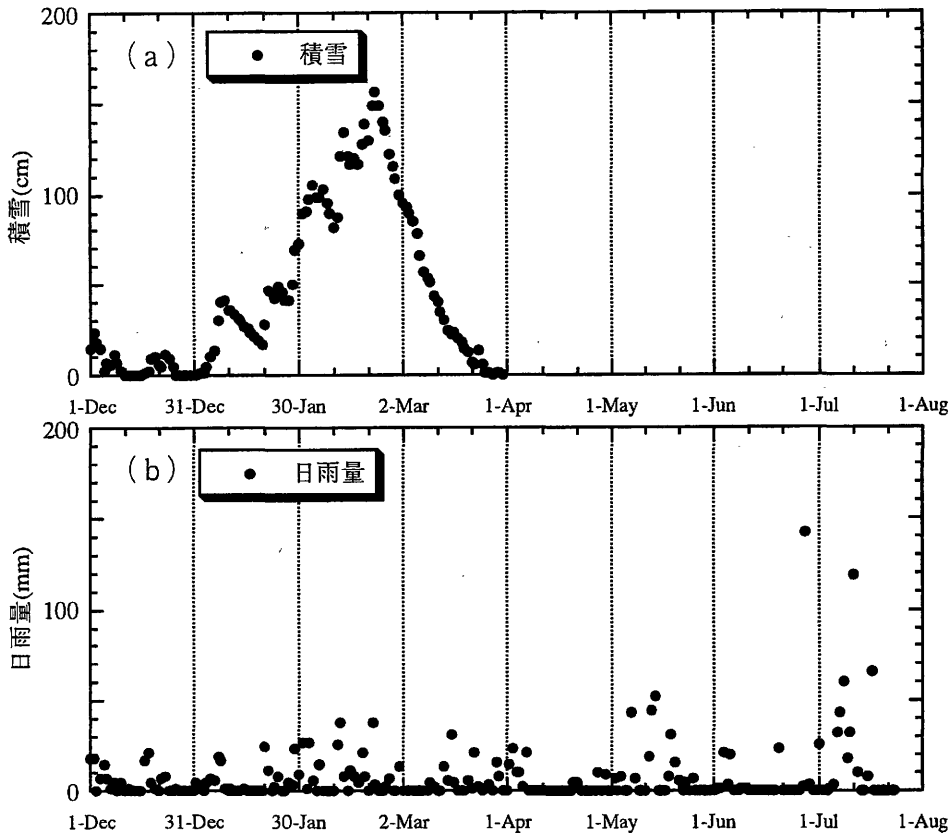


Fig. 8 人形峠環境技術センターにおける (a) 積雪、(b) 日雨量の気象データ

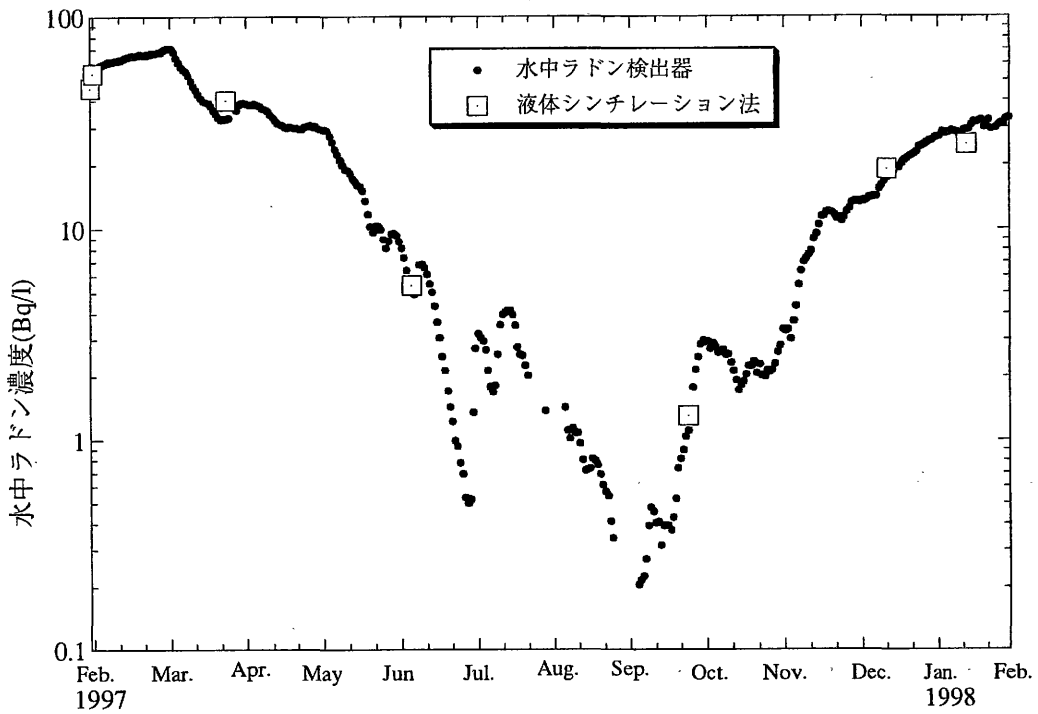


Fig. 9 夜次露天採掘場跡地内No.18モニタリング試錐孔における平成9年2月1日から平成10年1月31日までの日平均の水中ラドン濃度 (Bq/l) の変動。●印は原位置水中ラドン検出器による、□印は液体シンチレーション法による測定結果

Table 3 夜次露天採掘場跡地内No.18モニタリング試錐孔における平成9年2月から平成10年1月までの月間平均の水中ラドン濃度 (Bq/l) の測定値

年 月	1997年 2月	1997年 3月	1997年 4月	1997年 5月	1997年 6月	1997年 7月
平均ラドン濃度 (Bq/l)	63.7±0.6	46.6±2.3	32.9±0.6	16.9±1.3	3.9±0.5	2.8±0.2
年 月	1997年 8月	1997年 9月	1997年10月	1997年11月	1997年12月	1998年1月
平均ラドン濃度 (Bq/l)	0.82±0.06	0.89±0.16	2.4±0.1	9.6±0.6	19.8±0.8	30.1±0.4

## 2. 冠雪・融雪・標高水位と水中ラドン濃度の関係

平成8年12月17日から平成9年3月31日の観測期間において、No. 18試錐孔のラドン娘核種RaC'のカウンタ数と冠雪・融雪の関係を調べることにする。実験期間内では平成9年1月4日に初冠雪があり、2月22日まで積雪がどんどん増加して最大157cmとなり、それ以降融雪が始まり、3月28日頃には完全に雪が溶けて無くなっている。No. 18試錐孔の標高水位はこの期間で4回測定され、またNo. 10試錐孔では原位置連続測定が行われた。前述したFig. 4から、No. 18とNo. 10試錐孔は標高差4.58mで、約78m離れている。No. 18とNo. 17は標高差0.53mで、約20m離れている。No. 10、No. 18、No. 17試錐孔の掘進長はそれぞれ30、10、25mである。

Fig. 10(a)はRaC'のカウンタ数と積雪の相関図であり、Fig. 10(b)はRaC'のカウンタ数とNo. 10、No. 18試錐孔標高水位の相関図である。(a)図からわかるように1月4日の初冠雪とともにカウンタ数は急激に増加を初めて約12倍になって、1月21日から3月2日の約6週間にわたってカウンタ数はほぼ4500から5000(RaC'/h)で安定している。2月23日の融雪開始後は、3月3日頃から急激にカウンタ数は減少している。

(b)図でNo. 18試錐孔標高水位については、残念ながら1月30日から3月25日の期間内の水位データが無いので、観測期間内の4点の測定点を直線で結んだ。この図でNo. 18とNo. 10の両試錐孔の標高水位データを比較すると、非常に興味あることは、平成9年1月14日頃から3月2日の約7週間にわたって、No. 18試錐孔標高水位がNo. 10試錐孔標高水位を最大0.5mくらい上回っていると推定されることである。前述のFig. 7から見ても、平成8年12月から平成9年8月の全観測期間内でも、この7週間のみこのような逆転現象が生じていると思われる。この期間はRaC'のカウンタ数が4500から5000(RaC'/h)で安定して、ラドン濃度が約50Bq/lの高い濃度レベルの時期にも重なっている。3月2日以降融雪と水位上昇にともなって、RaC'のカウンタ数は減少を始めている。

平成8年度夜次露天採掘場跡地の真ん中に地質調査のために掘進長30mのNo. 18モニタリング試錐孔を新たにボーリングした。この試錐孔の柱状図を見ると、深度-30mから-7.7mまでは基盤となる花崗岩であり、-7.7mから-2.9mまでに黄色状の捨石鉱石があり、特に花崗岩との境界面の深度-7.7mから-7.8mに花崗岩層の約2.5倍の表面線量率0.26  $\mu$  Gy/hの粘土状沈殿層があることがわかっている。

以上のことからNo. 18試錐孔では、積雪によって、平成9年1月14日頃から3月2日の約7週間にわたり、動水勾配および地下水流動の様子が大きく変化して、深度-5mから-8m近傍のラドン源が水中ラドン濃度の増加に影響した可能性があるであろう。

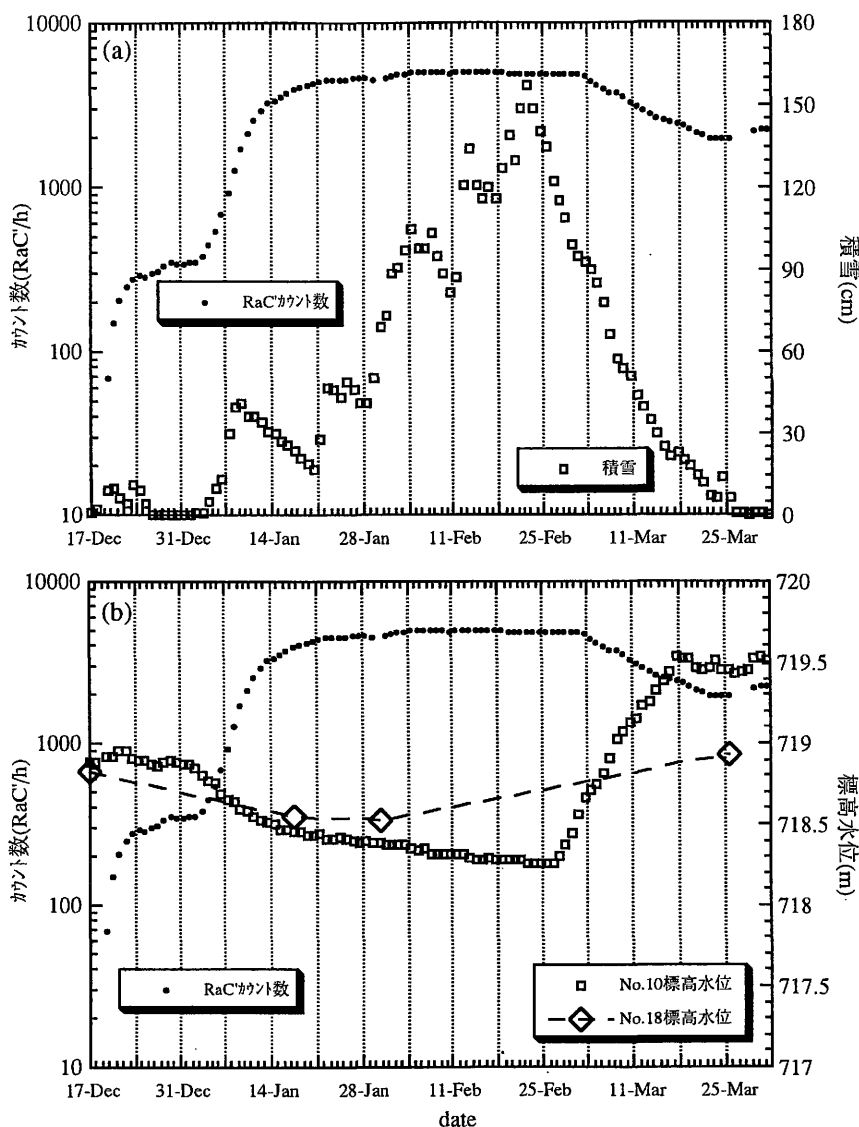


Fig. 10 平成8年12月17日から平成9年3月31日の観測期間における、No.18試錐孔のラドン娘核種RaC'カウント数と (a) 積雪、(b) 標高水位の相関図

### 3. 日雨量・標高水位と水中ラドン濃度の関係

平成9年4月1日から平成9年7月21日の観測期間の特徴は、連続したRaC'のカウント数の減衰と、降雨による一時的なカウント数の増加である。Fig. 11(a)はRaC'のカウント数と日雨量の相関図であり、Fig. 11(b)はRaC'のカウント数とNo. 10、No. 18試錐孔標高水位の相関図である。

これらの図でカウント数データに沿って書き入れた6本の直線は、半減期3.8日のラドンの崩壊曲線である。特に平成9年6月12日から6月28日の期間はほとんど雨量もなく、RaC'のカウント数の減衰は $^{222}\text{Rn}$ の崩壊曲線に非常に良く一致した。この事実は水中ラドン検出器が確実にラドンを捉えていることを証明

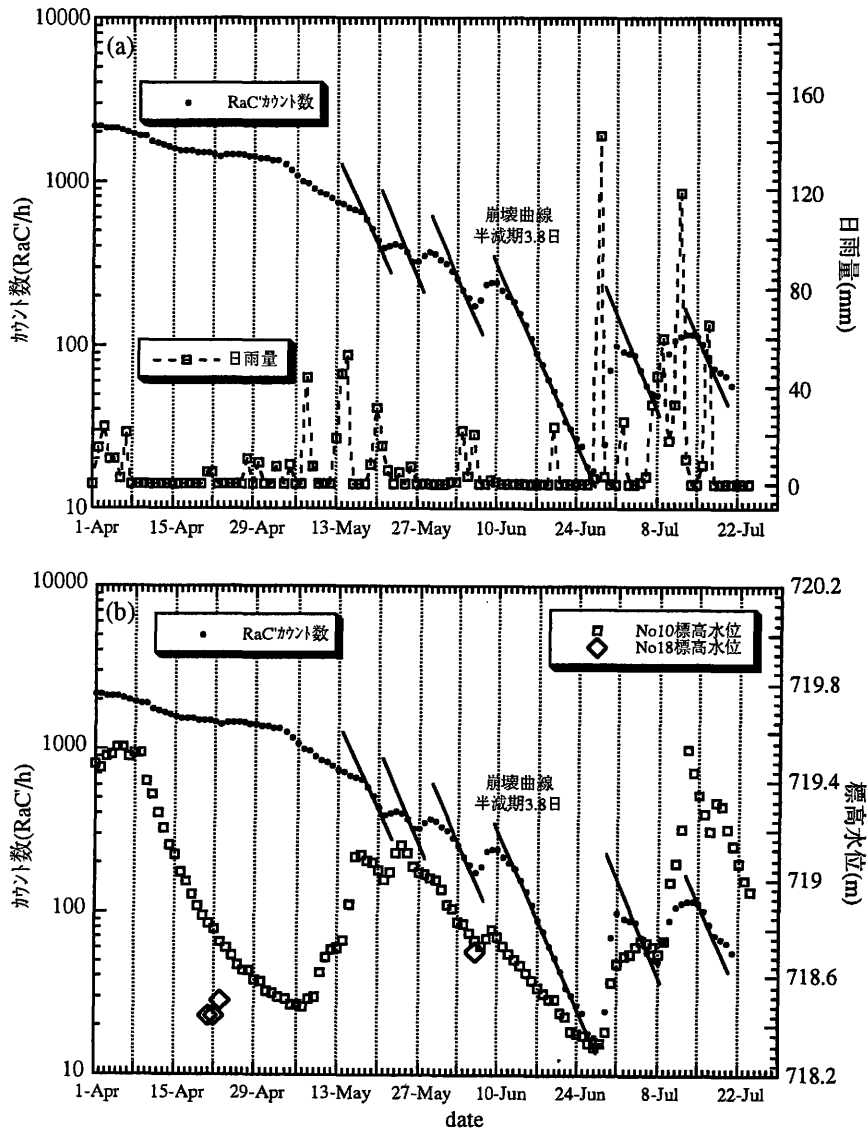


Fig. 11 平成9年4月1日から平成9年7月21日の観測期間におけるNo.18試錐孔のラドン娘核種RaC'カウント数と (a) 日雨量、(b) 標高水位の相関図

するものである。またこの時期は雨量が無い限り、新たにラドンを供給する要因が無いことを意味する。

(a) 図で平成9年5月21日、5月27日、6月6日、6月28日、7月8日の5点のカウント数の増加が観測されている。必ずこれらの日付の当日か前日に降雨が記録されている。これら5点以外の5月8日、5月14日、7月17日の3点の降雨時については明確なカウント数の増加は見られないが、カウント数の減衰率の低下があり、今後詳しい解析とより多くのデータを集める必要があるであろう。

(b) 図では、2点のNo. 18試錐孔標高水位はNo. 10より低い。また(a)図の降雨にともなってNo. 10試錐孔標高水位が高くなっていることがわかる。5月21日、5月27日、6月6日、6月28日、7月8日

の5点のカウント数の増加時期にともなって、No. 10 試錐孔標高水位が高くなっていることもわかる。

代表点として6月28日について降雨量によるラドン濃度増加率を求める。6月28日のカウント数は極小値15.5(RaC/h)を示し、降雨量は前後3日間で147.5mmを記録した。カウント数は急に増加して7月1日に極大値99.1(RaC/h)を示した。これらの値から降雨量によるラドン濃度増加率は約16(Bq/m<sup>3</sup>)/mmとなる。この計算では第9表のラドン濃度校正係数35 [(RaC/h)/(Bq/l)]を用いた。7月8日についても同様な方法で計算してみると、降雨量によるラドン濃度増加率は約14(Bq/m<sup>3</sup>)/mmとなった。

## VI. まとめ

地下水中のラドンの挙動解析をするために、地下水中の原位置ラドン測定装置の開発とその実用試験を行った。本測定装置は水中ラドン検出部とデータロガー部から構成されている。検出部は直径60mm、長さ300mmで、深さ数10mの試錐孔に直接投入することができ、ラドンガスは開口部に装着されている機能性ガス分離膜を通過して検出部に導入され、PINフォトダイオードを用いてラドン娘核種を静電捕集法で検出する。またラドンデータロガー部は商用交流電源のない屋外でも、自動車用鉛蓄電池4個で約60日間の連続観測ができ、観測終了後は押しボタンスイッチでパソコンにラドンデータを転送することができる。

本装置の実用試験が、平成8年12月18日から人形峠環境技術センター内の夜次露天採掘場跡地のNo. 17とNo. 18 試錐孔を用いて実施された。No. 17は平成9年1月31日で終了して、No. 18は現在も観測が継続されている。

また同時にNo. 18モニタリング試錐孔では7回、No. 17モニタリング試錐孔では2回、水をサンプリングして、人形峠環境技術センター安全管理課に測定を依頼して、液体シンチレーション法で水中ラドン濃度を測定した。また、No. 18モニタリング試錐孔では合計8回、No. 17モニタリング試錐孔では3回、水位を測定し、水をサンプリングして水温を計った。No. 10 試錐孔では以前から原位置水位連続測定を実施しているので、そのデータを使用した。

新しく開発した地下水中の原位置ラドン測定装置を用いて、平成8年12月18日から平成10年2月2日の約1年1ヶ月間にわたり人形峠環境技術センター夜次露天掘場跡地内のモニタリング試錐孔No. 18で水中ラドン濃度の連続観測を行った。これらの観測データから次のような観測事実が判明した。

- (1) 冠雪、雪解け、降雨による、水中ラドン濃度の季節変動が観測された。水中ラドン濃度の最高値は雪解けが始まってすぐの3月2日で70Bq/lであった。最低値は水温の低下が始まった、9月3日で0.21Bq/lであった。
- (2) 1年間にわたる、月間平均の水中ラドン濃度は2月で年間最高値64Bq/l、8月で年間最低値0.82Bq/lを記録した。これらの値は2月の年間最低水温約7℃、8月の最高水温約18℃と逆相関関係にある。
- (3) 平成9年5月20日から年7月21日の観測期間では、水中ラドン濃度は降雨によって急激に増加する時期と、<sup>222</sup>Rnの半減期3.8日に従って減衰する時期が繰り返し観測された。降雨による水中ラドン濃度のはっきりした増加が5例観測された。そのうち、平成9年6月28日の降雨において、日雨量によるラドン濃度増加率を求めてみると、約0.019(Bq/l)/mmと測定された。

以上のように、地下水中原位置ラドン測定装置は約1年間の実用試験で、地下水中のラドンの挙動解析に対する十分な成果を提供することが実証された。今後は夜次露天掘場跡地内の中央にあるNo. 19試錐孔と、No. 18試錐孔での同時ラドン連続観測を実施することを計画している。また現在、観測用パソコンをデジタル電話回線に接続してデータを取得して、インターネットでリアルタイムデータを閲覧・解析する「地下水中ラドン濃度観測ネットワークシステム」の開発を行っている。

試錐孔の水中ラドン濃度については、人形峠環境技術センター安全管理課の石森有氏に液体シンチレーション法による測定を依頼しました。夜次露天掘場跡地内でのラドン観測にあたっては、人形峠環境技術センター環境保全技術開発部の山本正博氏、藤木伸一氏、長柄収一氏に多大な協力を得た。ここに記して深く感謝いたします。

### 参考文献

- 1) Wakita, H., Nakamura, Y., Notsu, K., Noguchi, M. and Asada, T. : Radon anomaly: A possible precursor of the 1978 Izu-Oshima-kinkai earthquake. *Science*, **207**, 882-883 (1980)
- 2) Igarashi, G., Saeki, S., Takahata, N., Sumikawa, K., Tasaka, S., Sasakai, Y., Takahashi, M. and Sano, Y. : Ground water radon anomaly before the Kobe Earthquake in Japan. *Science*, **269**, 60-61 (1995)
- 3) 根本真智子, 田阪茂樹, 堀秀充, 奥村公宏, 梶田隆章, 竹内康雄 : 静電捕集型超高感度空気用ラドン検出器の開発. *Radioisotopes*, **46**, 710-719 (1997)
- 4) Pereira, B. *et al.* :  $^{222}\text{Rn}$  in the Antarctic Peninsula during 1986. *Rad. Prot. Dosimetry*, **24**, 85-88 (1988)
- 5) 黒澤龍平 : 住居環境中のラドン濃度の測定. *Radioisotopes*, **40**, 373-382 (1991)
- 6) 小前隆美 : ラドンの水循環解析への応用. *Radioisotopes*, **44**, 715-724 (1995)
- 7) 古田定昭 : 人形峠周辺における水中ラドン濃度. 「天然水中ラドン」専門研究会報告書(1996年12月12日-13日), 編集: 福井正美, 堀内公子, 京都大学原子炉実験所 KUR REPORT (KURRI-KR-6), 37-42 (1997)
- 8) 田阪茂樹, 佐々木嘉三 : 岐阜県神岡鉱山における地下水中のラドン濃度の観測(1). *地震*, 第2輯, **45**, 1-9 (1992)
- 9) 田阪茂樹, 佐々木嘉三, 岡澤裕子, 中川雅人 : 水中のラドン検出器の開発. *Radioisotopes*, **43**, 125-133 (1994)
- 10) 田阪茂樹, 佐々木嘉三 : 小型ラドンデータロガーの開発. *Radioisotopes*, **45**, 741-752 (1996)

## 送電線とラドン

三枝 純\*、小田 啓二\*\*、山本 幸佳\*\*\*

\*大阪大学ラジオアイソトープ総合センター、現在 日本原子力研究所 保健物理部

\*\*神戸商船大学 原子力システム工学講座

\*\*\*大阪大学 ラジオアイソトープ総合センター

### Power Cable and Radon

\*Jun SAEGUSA, \*\*Keiji ODA and \*\*\*Takayoshi YAMAMOTO

\* Radioisotope Research Center, Osaka University (Present address; Japan Atomic Energy Research Institute, 2-4, Shirakata-Shirane, Tokai-mura, Naka-gun 319-1195, Japan),

\*\*Kobe University of Mercantile Marine, 5-1-1, Fukae-Minami-machi, Higashinada-ku, Kobe 658-0022, Japan,

\*\*\*Radioisotope Research Center, Osaka University, 2-4, Yamada-oka, Suita 565-0871, Japan.

### Abstract

Henshaw *et al.* reported the attraction of radon progeny to the vicinity of power frequency electromagnetic (EM) fields. They observed  $^{218}\text{Po}$  and  $^{214}\text{Po}$  deposition distribution on the track detectors set around various configurations of EM-fields source, and concluded that it should be examined this leads to increased exposure to human body from radon progeny. On the other hand, Miles *et al.* recently showed results of measurements of them in high and low environmental EM-fields to indicate there are no correlation. To interpret these two different conclusions, we investigated the behavior of charged  $^{222}\text{Rn}$  progeny by measuring the pattern and magnitude of the deposition rate of decay products on both CR-39 track detectors and imaging plates under various conditions including the cases Henshaw pointed out. It was concluded that the attachment to wire cables should be increased mainly by electric component of low frequency EM-fields and possibly by electric field induced by changing magnetic component. It may be deduced that deposition rate of  $^{218}\text{Po}$  and  $^{214}\text{Po}$  on the surroundings will be enhanced, and as a consequence, atmospheric concentration of them will not be changed or theoretically reduced.

### I. はじめに

1979年、コロラド州のWertheimerとLeeperは高圧送電線近傍に居住する小児が、他の地域に住む者に比べて小児癌を起こす割合が2～3倍高いことを報告した<sup>1)</sup>。その後各国から同様の疫学報告がなされた。これに対し、WHOは1996年に、「EM(Electro-magnetic)-Fieldが生体に悪影響を及ぼす」ことを仮定

し、物理学的見知に基づいたメカニズムの解明を目指したプロジェクトをスタートさせるなど、多くの調査研究がなされたが、現在までに、電磁波の曝露量と生物影響との間に決定的な関係が出たという結論はみられない。1997年には米国国立ガン研究所が「居住環境における磁界が、小児急性白血病のリスクを増加させる証拠は見つからなかった」との調査結果を報告している。こうしたなかイギリスのHenshawら(1996年)は、日常生活中で、電磁界が大気中に存在するラドン娘核種及び各種のエアロゾル等微小粒子の挙動に影響を与えていると考え、これが結果的に、発がん等の悪影響に結びついていると推定し、議論を呼んだ<sup>2,3)</sup>。我々が日常遭遇する電磁界のレベルはせいぜい数百 $\mu$  T程度であり、さらに距離の2乗に反比例して急激に減衰することを考えると、生体分子を直接電離或いは励起するだけのエネルギーを有していない。しかし、そのような微弱な強度の電磁界であっても、生体に悪影響を与えうるようなマイクロな粒子(ラドン・トロン娘核種に限らず、化学的トレースガス、粉塵等エアロゾルを含む)の挙動に影響を与えている可能性がある、とHenshawらは指摘している。この結果に対しNRPBのMilesら(1997)は実際の高圧送電線付近でラドン娘核種濃度(平衡等価ラドン濃度)を連続測定し、「EM-Fieldの強度と大気中ラドン濃度の間に相関は見られなかった」と報告している<sup>4)</sup>。これらの異なる結果について考察するため、ここでは電磁界近傍におけるラドン娘核種の振る舞い(電磁界近傍におけるラドン娘核種の固体飛跡検出器への集積状況)についてHenshawらが行った模擬実験の追試を含めて行いながら調べた。

## II. 方法と結果

### 1. 固体飛跡検出器による試験

日常よく使用されるPVC平型二芯コード(Onamba 7781)近傍におけるラドン娘核種の集積状況について、娘核種からの $\alpha$ 線を固体飛跡検出器CR-39(フクビ化学社製Baryotrack)によって測定することにより調べた。ラドン娘核種は密閉性の良いコンクリート空間において、奈良県室生町の風化花崗岩を充分放置させることにより発生させた。Fig. 1 -aに模擬実験の一例を示す。平型二芯コードの一端は切断し、無負荷であり、他端は60Hz単相100V商用コンセントに接続し、変圧器を通して一芯が240V(最大値、Live)、もう一芯が0V(neutral)となっている。導芯間の静電容量は220(pF m<sup>-1</sup>)で、電流は最大0.05( $\mu$  A m<sup>-1</sup>)程度となるため、実質的に電界のみの影響を見ていることになる。コードの直上に0.9mm厚のCR-39プレートを配置した。CR-39にはあらかじめ静電気防止剤を塗布した。曝露後のCR-39プレートは6N、70℃のKOH溶液でエッチングをした後、光学顕微鏡(50-400倍)、テレビカメラ、X-Yスキャンニングステージ、パソコンにより構成されるシステムでピット数の計数を行った<sup>5)</sup>。<sup>222</sup>Rn濃度は1.5L通気式電離箱により連続測定し、780 $\pm$ 20 Bqm<sup>-3</sup>であった。Fig. 1 -bはこの条件で120時間曝露した場合のエッチピット分布で、両芯付近に娘核種が集積していることを示している。Fig. 1 に示したエッチピット分布を詳細に見てみると、ピット密度は2芯コードの真上ではなく、左右にそれぞれ1 mm程度ずれた位置にピークが出来ており(Fig. 1 -c)、ピークの部分で9000pits cm<sup>-2</sup>であり、そのバックグラウンドの3倍程度であった。また変圧器を取り外し、電圧を100Vとした場合、ピット密度は7000pits cm<sup>-2</sup>となった。電圧をかけない場合ピークは見られなかった。バックグラウンドのピット密度は26 $\pm$ 5pits cm<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>であった。Fig. 2、Fig. 3はそれぞれ同様な実験を導芯の被覆を剥いだ単芯のものと金属板に置き換えたものにより行った場合を示す。いずれも電界の大きい場所にエッチピットが多く形成された。これらの結果から静電界



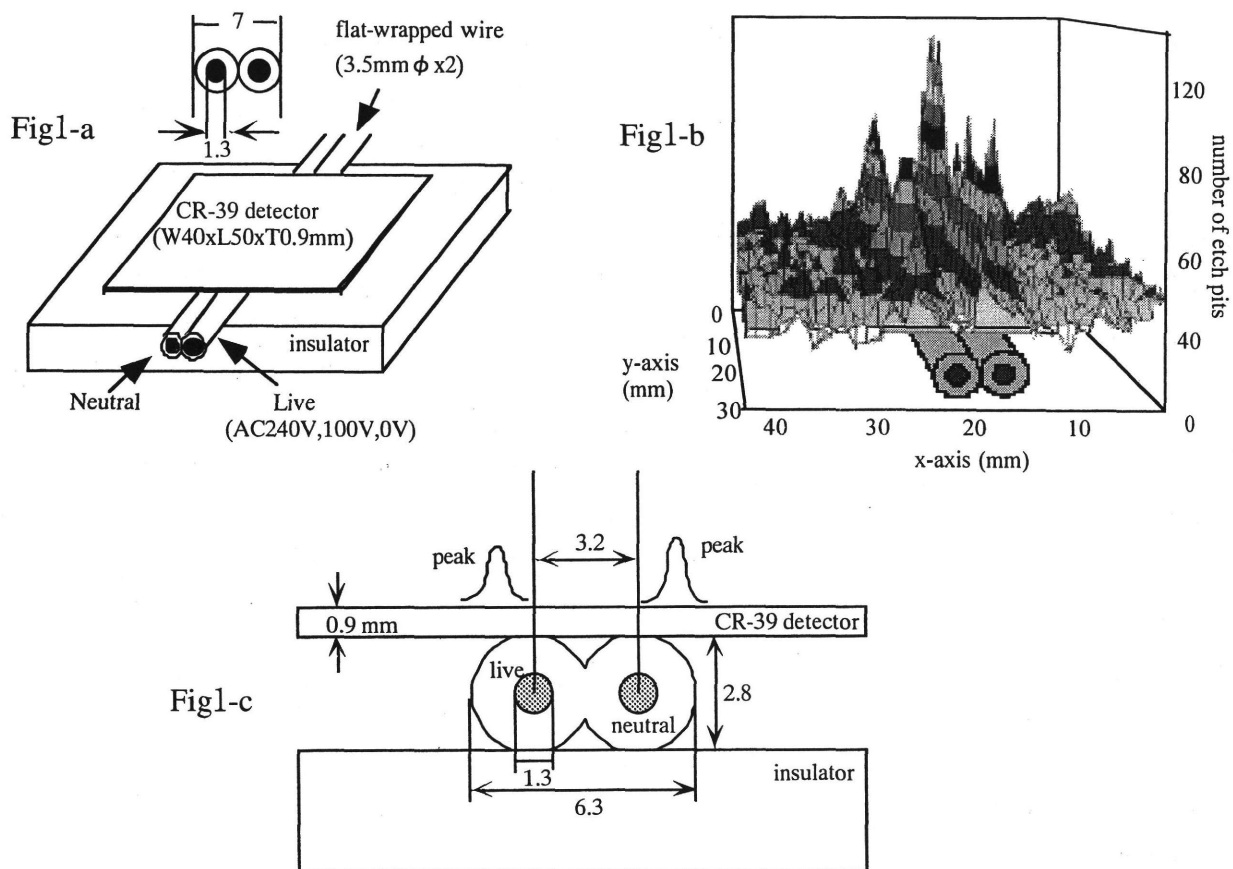


Fig. 1 Distribution of etch pits on CR-39 detector placed upon the flat wrapped 240 V AC live and neutral wire. a: the arrangement of the apparatus. b, c : results (The vertical axis means etch pits density per 1.44mm<sup>2</sup> (also applied in Fig. 2 -b and Fig. 3 -b).

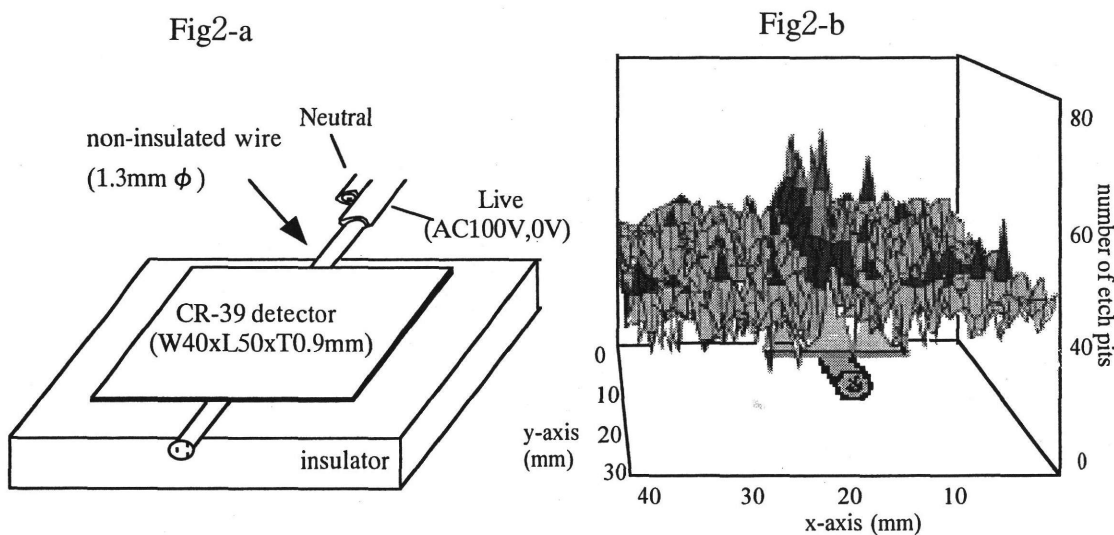


Fig. 2 Distribution of etch pits on CR-39 detector placed upon the stripped 100 V AC live wire. a: the arrangement of the apparatus. b : results.

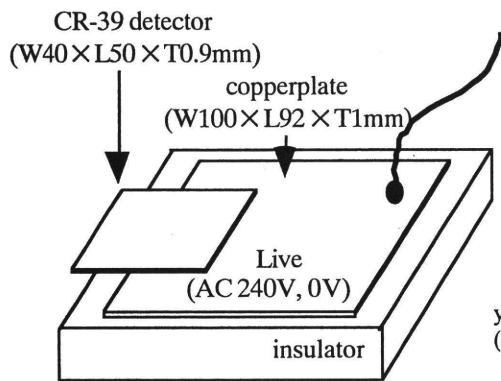


Fig3-a

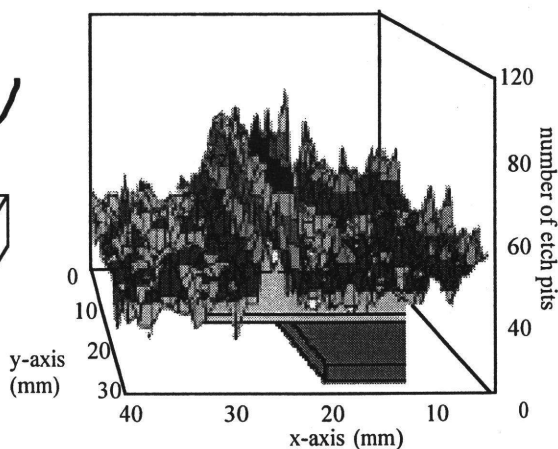


Fig3-b

Fig. 3 Distribution of etch pits on CR-39 detector placed upon a copper plate with 240 V AC applied.  
a : the arrangement of the apparatus. b : results.

の場合に限らず、EM-Fieldでも電界成分の寄与によりラドン娘核種が沈着されることが確認できた。

## 2. IPによる試験

イメージングプレート(IP)は有機フィルム上にBaFBr:Eu粉末を塗布し、その輝尽発光(PSL)現象を利用した2次元放射線画像センサーとして利用されている。 $\alpha$ 線に対しても感度があり、繰り返し使用できるなどの点から、近年ラドンの測定も試みられてきている<sup>6)</sup>。ここでは20×40cmのIP(富士写真フィルムBAS-III、BAS-TR2040)をラップでくるみ、使用した。IP上にAC240V及び100Vを印加した平型二芯コードを設置し $^{222}\text{Rn}$ 濃度 $600\text{Bqm}^{-3}$ の下で24時間曝露を行った際のPSL分布をFig. 4に示す。AC240V及び100Vコード上でPSLはそれぞれ $52.3\text{cpm mm}^{-2}$ 、 $48.8\text{cpm mm}^{-2}$ であった。バックグラウンドは $13\sim 14\text{cpm mm}^{-2}$ であり、両コードから1～3mm左右に離れた地点でも $13\sim 14\text{cpm mm}^{-2}$ 程度であった。このことから娘核種は導線やその被覆の近傍に集積するのではなく、導線や被覆そのものに対し沈着する傾向があるといえる。

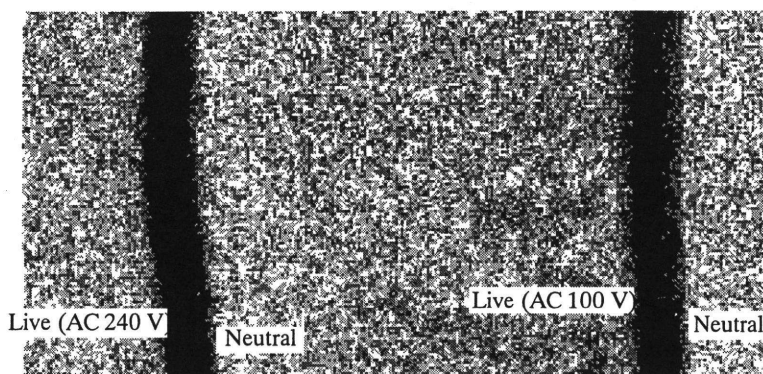


Fig. 4 PSL distribution on IP surface. AC 240(left) and 100 V(right) applied live and neutral wires were placed.

### 3. 磁界成分の影響

以上のことからラドン娘核種の振る舞いはEM-Fieldのうち電界成分により影響を受けることがわかったが、磁界成分に対しての影響をみるために、強磁界中でCR-39検出器に対しラドン娘核種の曝露を行った。Fig. 5-aに示すようにヘルムホルツコイル中心の電磁石間にCR-39検出器を配置した<sup>7)</sup>。<sup>222</sup>Rn濃度は $100 \sim 150 \text{Bqm}^{-3}$ の下で12日間曝露を行ったところbに示すように電磁石の外側でピット密度が高くなった。このときの磁束密度は500mTであった。

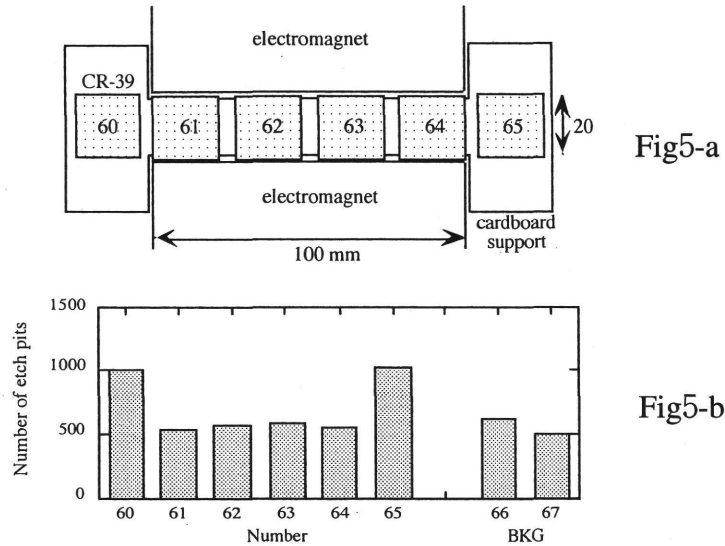


Fig. 5 Distribution of etch pits on CR-39 detectors placed in the alternative magnetic field.  
a: arrangement of CR-39 detectors. b: results (number 66 was set on the wall of enclosure 23 cm apart from the center of electromagnets, 67 was directly on the electromagnet).

### III. 考察

I、IIの実験によりHenshawらが指摘するように、静電界中に限らず、EM-Fieldの電界成分がラドン娘核種、エアロゾルなど電荷を有する微小粒子の挙動に影響をもたらすことが確認された。また、沈着量は印加電圧に依存することもわかった。I-1の実験でピットが平型2芯コードの直上でなく、両コードの外側の位置にみられたため、計算によりこの付近の電位分布を求めたところ、Fig. 6に示すようにこの場所は電位の窪みとCR-39プレートの交点に対応した。この点付近及びその1mm上方での電界強度はそれぞれ $35000 \text{Vm}^{-1}$ 、 $15000 \text{Vm}^{-1}$ となった。仮にラドン娘核種等の電気移動度が $1 \times 10^{-4} \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1} \sim 1 \times 10^{-4} \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ とすると<sup>8)</sup>電界強度 $15000 \text{Vm}^{-1}$ での移動距離は1/120秒(交流半周期)で $0.5 \mu\text{m} \sim 5 \text{mm}$ と見積もられる。一方、実際の送電線について電界強度との関係でみると地上1mでの電界強度は $37 \text{Vm}^{-1}$ 程度(誘導電界を含まず、77000V送電線の場合)であり、本実験や地表付近の静電界 $100 \sim 300 \text{Vm}^{-1}$ に比べて小さい。

I-3の電磁石を用いた実験で、電磁石の外側でピット密度が高くなったのは強磁界そのものによる直接的な影響ではなく、誘導電界の影響によるものと思われる。電磁石中心からの距離 $r$ における円周 $l=2\pi r$ での誘導電界強度 $E(r)$ は

$$-\oint_l E(r)dl = \frac{\partial f}{\partial t}$$

で表され、磁束の最大値を  $B_0$  と周波数  $f$  とすると電磁石の半径  $R$  における電界強度は

$$E(r) = \begin{cases} \pi B_0 f r \sin 2\pi f t & (|r| \leq R) \\ \frac{\pi B_0 f R^2}{r} \sin 2\pi f t & (|r| > R) \end{cases}$$

となる。Fig. 7 に示すようにこの場合の電磁石の端における誘導電界は  $5\text{V m}^{-1}$  程度となる。

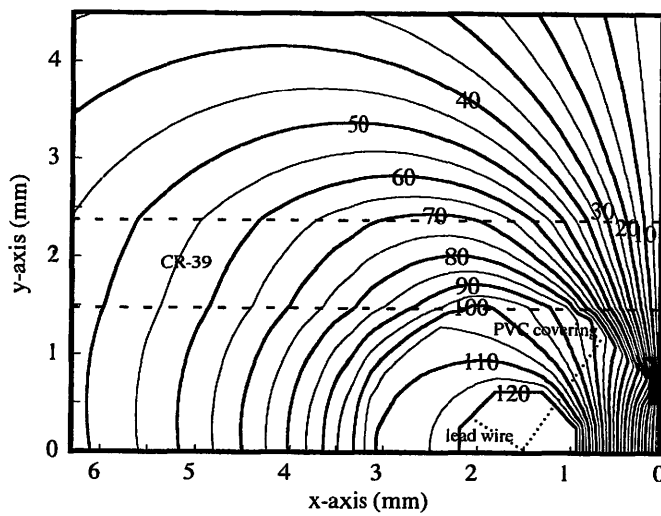


Fig. 6 Electrical potential distribution around the live and neutral.

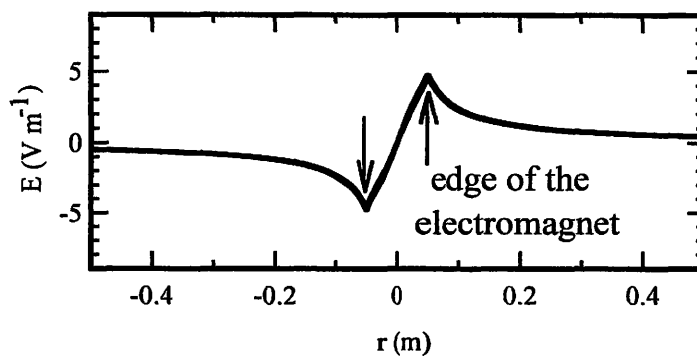


Fig. 7 Induced electric field around the pair of electromagnet. The horizontal axis  $r$  is the distance from the center of electromagnets. The direction of electric field is tangential.

#### IV. まとめ

EM-Fieldにおけるラドン娘核種の挙動を調べるため、CR-39検出器、IP、交流電磁石を用いた実験を行った。その結果(1)EM-Fieldのうち電界成分が電荷を持ったラドン娘核種の挙動に影響をもたらし、

磁界成分がラドン娘核種の挙動に与える影響は小さい、(2)導線など自体に対する沈着量が増しても導線周囲にラドン娘核種が集積するわけではないこと、(3)強いEM-Fieldの場合は誘導電界が影響をもたらすこともある、等がわかった。(1)はHenshawらのおこなった模擬実験を追認する結果である。一方Milesらの行った屋外実験ではポンプを用いて娘核種のサンプリングを行い、送電線直下と対照地点で大気中濃度に有為な差がなかったことを報告しているが、大気中で集積量が増しているわけではないので妥当だと思われる。電界により周辺の物質に対する娘核種等の沈着率が増加するため、周囲の空气中ラドン娘核種濃度は変化せず、むしろその流れのため理論的に低くなると思われ、送電線の直近で大気中のラドン娘核種濃度が高くなることは考えにくい。

### 参考文献

- 1) N. Werthimer and E. Leeper : Electrical wiring configurations and childhood cancer. *Am. J. Epidemiol.*, **79**, 273-284 (1979)
- 2) D. L. Henshaw, A. N. Ross, A. P. Fews and A. W. Preece : Enhanced deposition of radon daughter nuclei in the vicinity of power frequency electromagnetic fields. *Int. J. Radiat. Biol.*, **69**, 25-38 (1996)
- 3) D. L. Henshaw, A. N. Ross, A. P. Fews and A. W. Preece : Author's reply to the editor. *Int. J. Radiat. Biol.*, **69**, 653-657 (1996)
- 4) J. C. H. Miles and R. A. Alger : Measurements of radon decay product concentrations under power lines. *Radat. Prot. Dosim.*, **74**, 193-194 (1997)
- 5) K. Oda, M. Ito, H. Miyake, M. Michijima and J. Yamamoto : Track registration characteristics of CR-39 in D-T neutron field. *Hoshasen (Ionizing Radiation)* **15**, 74-84, (in Japanese) (1988)
- 6) K. Ishii, N. Tsuchiya and M. Takebe : Detection of Rn  $\alpha$ -ray using the imaging plate and its application. *Radioisotopes*, **48**, 441-449, (in Japanese) (1999)
- 7) K. Shimizu, K. Tottori, B. Kyoh and T. Yamamoto : Biological effect of extremely low frequency magnetic fields on microorganisms. *Proc. IRPA Regional Symp., Prague*, 642-643 (1997)
- 8) S. C. Yoon, W. H. Marlow and P. K. Hopke : *Health. Phy.*, **62**(1), 51-57 (1992)

## 環境中のトロン濃度と性状・挙動

山崎 直

中部電力株式会社 電力技術研究所 原子力チーム

## Characterization of Environmental Thoron and its Progeny

Tadashi YAMASAKI

Chubu Electric Power Company, Inc.

20-1, Kitasekiyama, Ohdaka-cho, Midori-ku, Nagoya, 459-8522, Japan

**Abstract**

Thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) has such a short half-life ( $T_{1/2}=56\text{s}$ ) that indoor thoron concentration is strongly affected by the structure of building materials, because thoron would not have enough time to migrate from inside the building material to indoor air space without significant decay. The typical Japanese dwellings have the interior wall made of soil, therefore indoor thoron and thoron progeny concentrations are relative high. In such a case, thoron progeny may make a significant contribution to the public dose equivalent of the Japanese. In order to assess the risk of thoron or thoron progeny, the characterizations are presented. For thoron concentration measurements, a passive cup monitor is used. For thoron progeny concentration measurements, an active potential alpha-energy monitor is used. As results of measurements and calculations, thoron concentration is decreasing exponentially with the distance from wall. On the other hand, the concentrations of  $^{212}\text{Pb}$  and  $^{212}\text{Bi}$  are spatially homogeneous in the ordinary living environment.

**I. 背景**

Rnの中で質量数が220の核種はトロンと呼ばれ、 $^{222}\text{Rn}$ と区別されている。ラドン( $^{222}\text{Rn}$ )はウラン系列に、トロン( $^{220}\text{Rn}$ )はトリウム系列に属している天然の放射性核種である。トロンもラドンと同じように娘核種の崩壊系列が存在するが、ラドンに比べてトロンの半減期が短く、トロン娘核種の半減期は長いために、その性状および挙動はラドン・ラドン娘核種と大きく異なっている。Fig. 1にラドン・トロン以降の崩壊系列を示す。

かつて、トロンはその半減期が短いために、土壌や家壁から空気中まで拡散する間に崩壊してしまうと考えられていた。しかし、日本で屋内のラドン濃度調査が行われた際、その測定結果のばらつきにトロンが影響している、即ち屋内空気中にトロンが存在している、ことがわかってから、屋内のトロンの挙動が着目され始め、トロンやトロン娘核種の濃度測定や被ばく評価等の研究が盛んとなってきた。

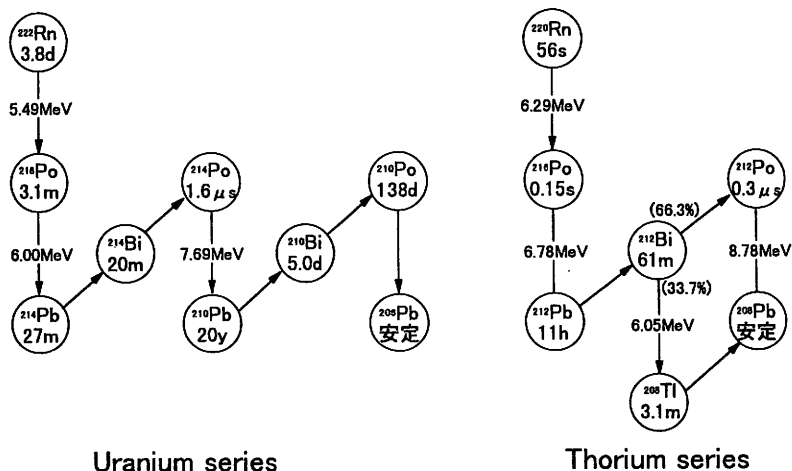


Fig. 1 Decay products of Uranium series and Thorium series.

## II. トロンおよびトロン娘核種の濃度測定方法

### 1. トロン

屋内トロン濃度を、ラドンから弁別して測定するには、電離箱法・活性炭法・シンチレーションセル法・静電捕集法・フィルター法・カップ法といったよく知られているラドン濃度の測定方法に、半減期の差を利用したり、娘核種の放出するα線エネルギーの差を利用したりする工夫を加えれば測定が可能である。

ここでは、トロン濃度の測定のために、固体飛跡検出器を用いたカップ式積分型ラドン・トロンモニターを用いた。Fig. 2にカップの概略を示す。ラドン用のカップは、トロンの影響を受けないように換気率を低くして、ラドンのみを測定し、トロン用のカップは、逆に換気率を大きくして、ラドン+トロン

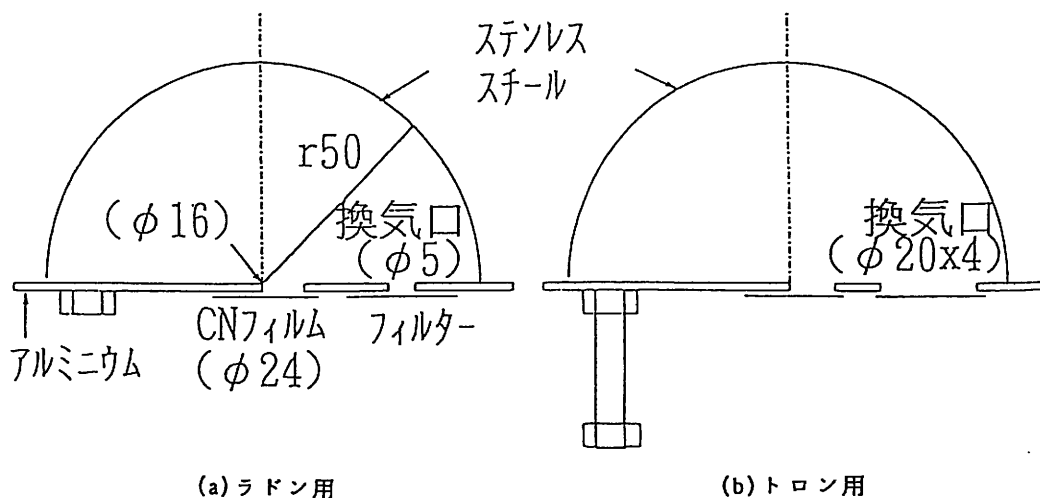


Fig. 2 Passive cup monitor for radon and thoron.

を測定する。そして、両カップの差と設置期間から、平均のトロン濃度を評価する。屋内の標準測定として、測定期間は3ヶ月間、壁から20cmの位置に設置することとした。

## 2. トロン娘核種

屋内トロン娘核種濃度は、フィルターに捕集した娘核種の $\alpha$ 線エネルギーを弁別すれば直接測定することができる。ここでは、Fig. 3に示すような積分型ラドン・トロン娘核種モニターを用いた。このモニターは、ラドン娘用測定窓とトロン娘用測定窓を2個ずつ持っており、ラドン娘核種とトロン娘核種の濃度を同時に測定できる。小型ポンプで集められたラドンおよびトロンの娘核種は、フィルター上で崩壊して $\alpha$ 線を放出する。その $\alpha$ 線を減速させ、固体飛跡検出器であるCNフィルムの有感領域(0.75~4 MeV)に入るように調整することにより、ラドン娘核種またはトロン娘核種を評価している。屋内の標準測定として、測定期間は5日間(うちポンプ起動は45~80時間)、カップモニターと同様に壁から20cmの位置に設置することとした。

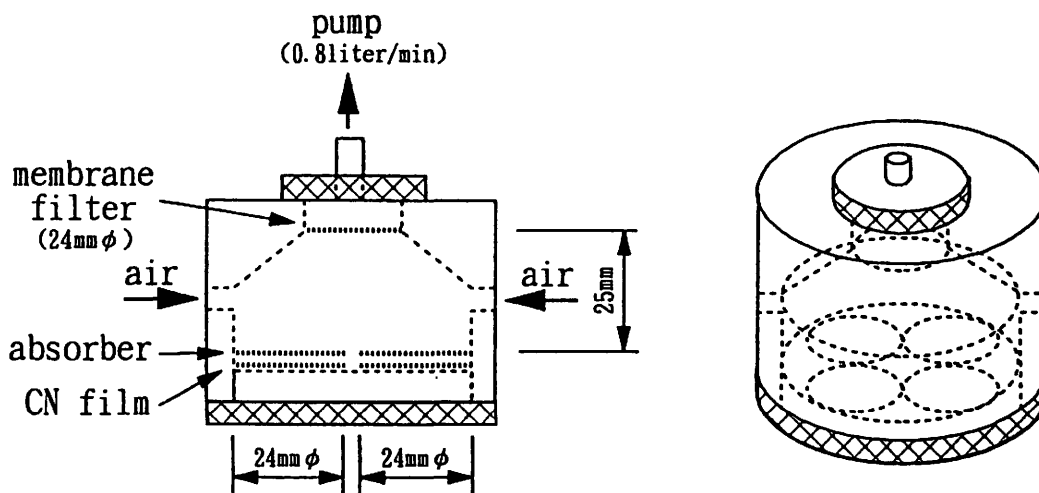


Fig. 3 Integrating potential alpha-energy monitor for thoron progeny.

## 3. 平衡等価濃度

ラドンやトロンの娘核種濃度の単位は、一般に平衡等価濃度として表される。平衡等価濃度とは、親核種(ラドンやトロン)と娘核種が放射平衡状態であると仮定したときに計算されるポテンシャル・アルファ・エネルギー濃度(PAEC)と測定したPAECとが一致するときの親核種の仮想濃度である。従って単位は $Bq \cdot m^{-3}$ で表すことができる。ポテンシャル・アルファ・エネルギーとは、全ての娘核種が安定核種になるまで崩壊したときに放出する $\alpha$ 線のエネルギーの総和で表され、単位はMeVとなる。その関係は以下の式で表される。

$$\text{平衡等価ラドン濃度 (EER)} = 2.85 \times 10^{-5} \times \text{PAEC} \dots (1)$$

$$\text{平衡等価トロン濃度 (EET)} = 2.12 \times 10^{-6} \times \text{PAEC} \dots (2)$$



### Ⅲ. 測定結果

#### 1. 屋内トロン濃度測定結果例

Fig. 4 は、壁材を木造土壁(3~12点)・コンクリート(2~7点)・新建材(2~7点)の3種類に分けて、ラドンおよびトロン濃度の季節変化を示した図である。最も特徴的なことは、ラドンには見られないが、木造土壁の家屋ではトロン濃度が高くなっていることである。これは、土壁は内部に空隙が多く、トロンの見かけ上の拡散係数が大きくなるために、壁内部から屋内空气中へトロンを散逸させやすいためであると考えられている。即ち、屋内トロンの発生源は、日本独特の建築様式の土壁であるといえる。

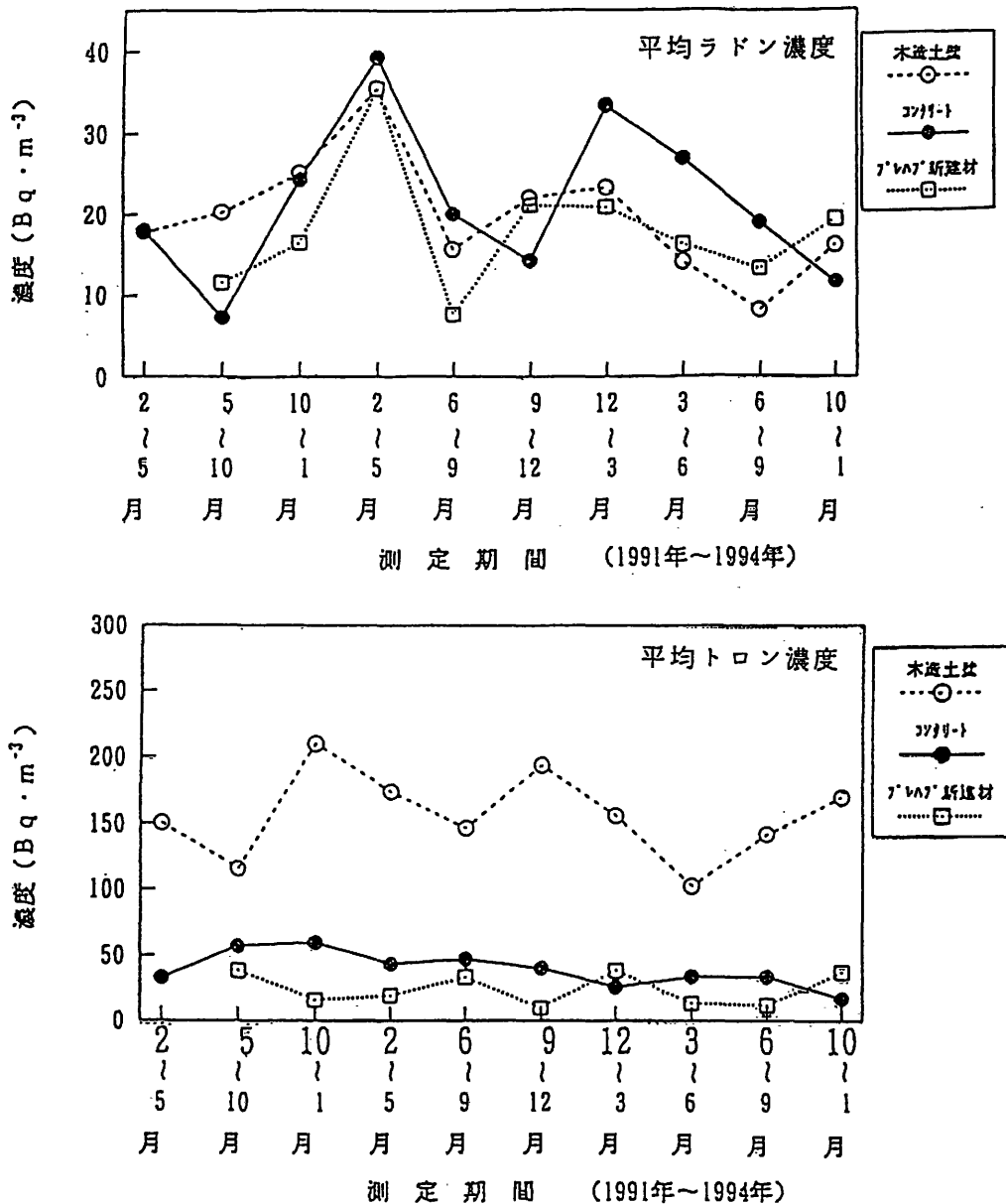


Fig. 4 Results of indoor radon and thoron concentrations as an example.

## 2. 屋内トロン娘核種濃度測定結果例

Fig. 5は、壁材を木造土壁(7点)・コンクリート(4点)・新建材(6点)の3種類に分けて、平衡等価トロン濃度の季節変化を、屋外濃度とともに示した図である。トロン濃度と同様に、平衡等価トロン濃度でも木造土壁の家屋が高くなっている。

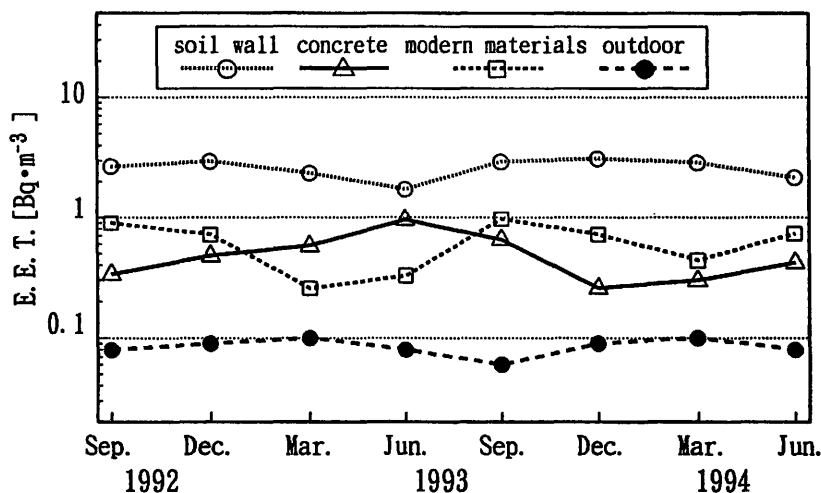


Fig. 5 Results of indoor thoron progeny concentrations as an example.

Fig. 6は、トロン濃度と平衡等価トロン濃度を測定したデータの中から同一家屋で同一時期の測定値を選び、両者の相関を示した図である。相関係数は0.79とかなり高く、その関係は次式で表された。

$$\text{トロン濃度} = 0.013 \times \text{平衡等価トロン濃度} \cdots \cdots (3)$$

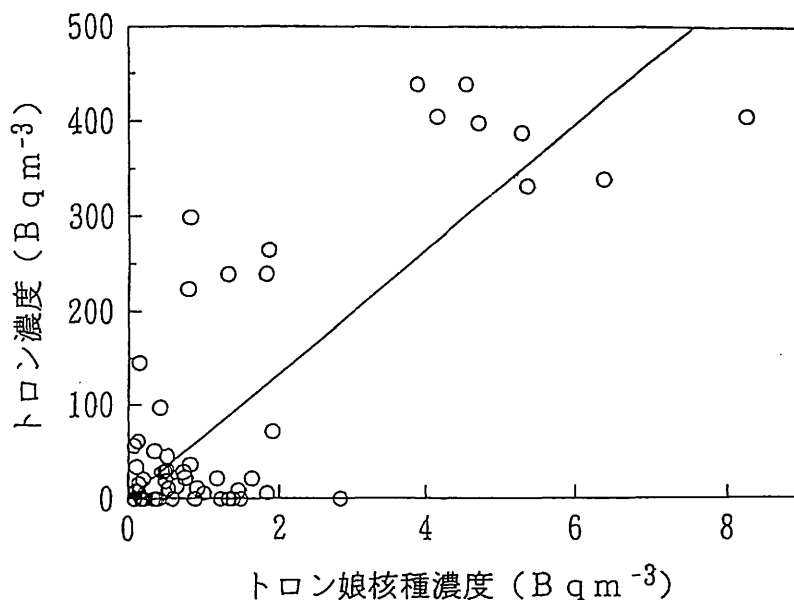


Fig. 6 Relationship between indoor thoron and thoron progeny concentrations.

### 3. ラドンとの比較

トロン濃度は、発生源から濃度分布を持つために、直接ラドン濃度と比較することは困難である。そこで、国別に娘核種どおしを比較した結果を Table 1 に示す。この表中で、RT-ratioとは、次式で定義されるラドン娘核種とトロン娘核種の存在割合を意味している。

$$\text{RT-ratio} = (\text{平衡等価トロン濃度}) / (\text{平衡等価ラドン濃度}) \cdots \cdots (4)$$

この表からも、日本ではトロン娘核種の存在割合が大きい一般住居が存在していることが示唆される。

Table 1 EET and RT-ratio in various countries.

国	EET[Bq·m <sup>-3</sup> ]	RT-ratio
ドイツ	0.1~0.6	
フランス	0.8	0.03
イギリス	0.6	
カナダ	1.5	0.02
アメリカ	0.3	0.05
ノルウェイ	0.1~1.1(住居)	0.04
	1.5~5.0(地下室)	0.09
香港	0.4~2.5	0.04
スウェーデン	0.1~0.6(住居)	0.01
	0.3~3.0(地下室)	0.04
日本	0.04~8.22	0.10

## IV. 屋内濃度分布

### 1. 概要と測定結果

ラドンとトロンの最大の違いはその半減期であり、屋内において崩壊する前に拡散する時間が十分にあるラドンは、その発生源の位置に関係なく均一濃度になっているが、拡散する前に崩壊してしまうトロンは発生源から濃度分布を持った状態になると考えられる。Fig. 7 に、発生源と考えられる床からの距離とカップモニターを用いて測定したラドンおよびトロン濃度の関係を示す。屋内ラドン濃度は場所に関係なく一定であるが、屋内トロン濃度は発生源である床から指数関数的に減少していることがわかる。

### 2. 計算による結果

屋内のトロンの発生・崩壊、トロン娘核種の発生・崩壊、換気による外気との交換、トロン娘核種の壁への沈着を考慮し、トロン・トロン娘核種濃度分布を、定常状態の仮定で計算した。その結果、一般的な拡散係数をもつ屋内では、Fig. 8 に示すように、トロンは発生源から濃度分布を持つが、<sup>212</sup>Pb以降のトロン娘核種は屋内で均一濃度になっていると計算された。即ち、人への被ばくに最も寄与する<sup>212</sup>Biと<sup>212</sup>Poは、一般的な屋内で濃度分布を持たないために、トロンの発生源位置やトロン娘核種の濃度測定場所などを考慮する必要がなく、トロン娘核種の濃度測定結果が、直接、居住者の被ばく量評価に関係づけられる。

## V. まとめ

日本のような土壁などを用いた建築様式では、半減期が56秒と非常に短寿命のトロンでも屋内空気中に存在しており、人の自然放射線からの被曝を考える場合には、トロンおよびトロン娘核種に起因する

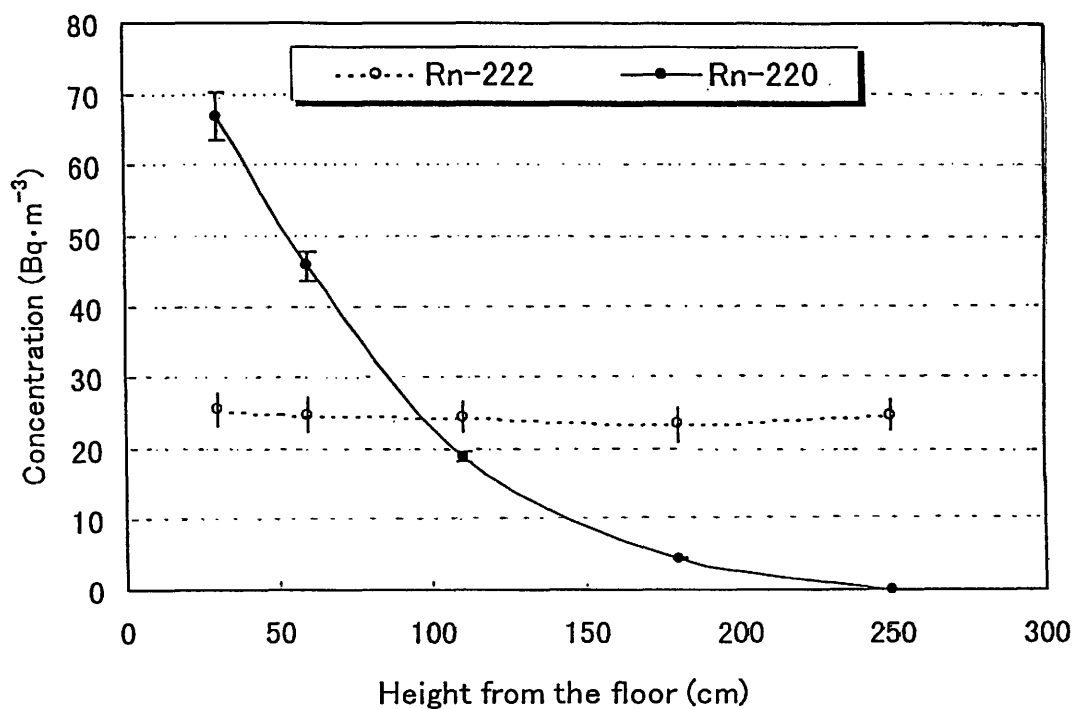


Fig. 7 Distributions of indoor radon and thoron concentrations by measurements.

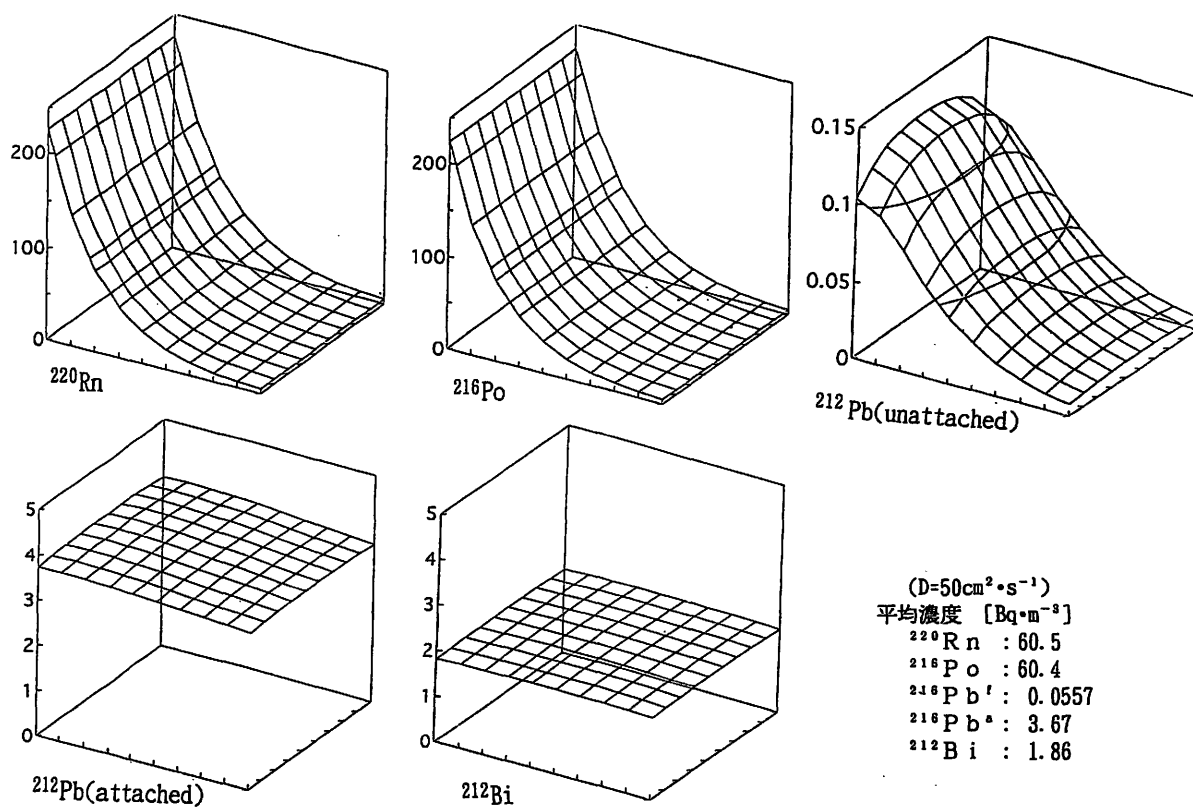


Fig. 8 Distributions of indoor thoron and thoron progeny concentrations by calculations.

被ばくも考慮していく必要が示唆される。なおその際には、屋内トロン濃度は壁や床などのトロン発生源から濃度分布を持っているが、屋内トロン娘核種濃度は屋内で一定とできることに注意すべきである。

#### 参考文献

- 1) T. Yamasaki and T. Iida : Measurements of thoron Progeny concentration using potential alpha-energy monitor in Japan. *Health Phys.*, **68**, 840-844 (1995)
- 2) T. Yamasaki, Q. Guo and T. Iida : Distributions of thoron progeny concentration in dwelling. *Radiat. Prot. Dosim.*, **59**, 135-140 (1995)
- 3) Q. Guo, T. Iida, K. Okamoto and T. Yamasaki : Measurements of thoron concentrations by passive cup method and its application to dose assessment. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 794-803 (1995)
- 4) Q. Guo, T. Iida and Y. Ikebe : Some problems on the measurements of thoron concentrations by passive cup method. *Health Phys.*, **69**, 508-512 (1995)
- 5) 卓 維海 : 名古屋大学大学院工学研究科修士論文 (1999)

## トロンによる線量寄与

米原 英典

放射線医学総合研究所 人間環境研究部

Dose Contribution of Inhalation of Thoron and its Progeny to the Effective Dose to the Public

Hidenori YONEHARA

National Institute of Radiological Sciences

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

### Abstract

Studies on the evaluation of dose from indoor thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) and its progeny were reviewed. Although sufficient information connected to indoor radon concentrations is available to estimate the effective dose to the public, there is not enough information for indoor thoron levels. From the results of survey carried out so far in European countries, US, and Japan, the indoor thoron concentrations range from nearly 0 to  $400 \text{ Bq m}^{-3}$  and the average value is about  $3 \text{ Bq m}^{-3}$ . The equivalent equilibrium concentrations of the progeny range from  $0.1 \text{ Bq m}^{-3}$  to  $4 \text{ Bq m}^{-3}$  and the average concentration in the world was estimated to be  $0.3 \text{ Bq m}^{-3}$ . Calculated from these values, the average annual effective dose equivalent due to inhalation of indoor thoron and its progeny were estimated to be about 70 mSv in UNSCEAR 1993 Report. The factors influencing the concentrations of indoor thoron and its progeny and the approach to precise estimates of the effective dose was also discussed.

### I. はじめに

パッシブ法モニタによるラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) 濃度測定妨害としてトロン ( $^{220}\text{Rn}$ ) の存在が問題視されるようになり<sup>1)</sup>、我が国の屋内環境において特に壁近傍におけるトロンが高濃度である場所が存在することが判明した。諸外国においても、米国、欧州の一般家屋での測定調査により濃度レベルが明らかになるとともに、中国などの高自然放射線地域でも屋内トロン濃度が高いことが報告されている<sup>2)</sup>。しかし一般家屋における調査研究で測定された家屋数は少なく、線量評価のための平均濃度や分布に関する情報は十分ではない。1996年にSteinhäuslerはトロンに関する研究の現状をまとめた<sup>3)</sup>が、その中で、トロンの濃度と線量に関する情報は、ちょうど15年前のラドンの状況であると表現している。このようにトロンやその娘核種の屋内濃度の代表値を得るための調査研究が少ない理由として、屋内トロンガスの室内での空間分布が大きいことや校正が困難であること、またその簡易的な測定法が確立していないことなどが挙げられる。屋内ラドンの被ばく線量の平均値を得るためには、大規模サーベイによるラドン濃度の平均値に平衡ファクタを乗じて、娘核種の濃度を算出する方法を用いられるが、トロンの線量評価

については、トロン濃度が線源からの距離により大きく変動することや、平衡ファクターの変動幅が大きいと考えられることから、ラドンと同様の方法を採ればかなりの誤差が生じる。

本報告では、トロンおよびその娘核種の濃度レベルとその線量評価に関する研究の現状をレビューする。

## II. 生活環境におけるトロン濃度の特性と決定因子

トロンの半減期は55秒で非常に短いことから、ラドンのように床下の土壌から室内に侵入することは少なく、屋内トロンの線源は土壁、煉瓦、コンクリート等の室内の建材表面に限定される。壁からの散逸のみを考えた場合のトロンの室内での空間分布は、壁からの距離とともに指数関数的に減少し、部屋の中央では、検出が困難になるくらいの濃度になることが理論的に推測され、壁際でのトロンガス濃度は非常に高く、有意な被曝の可能性があることが、片瀬らによって指摘された<sup>4)</sup>。実環境において主にパッシブ法でこのような壁際での大きな濃度勾配が観測されている<sup>5)</sup>。その測定例をFig. 1に示す<sup>6)</sup>。

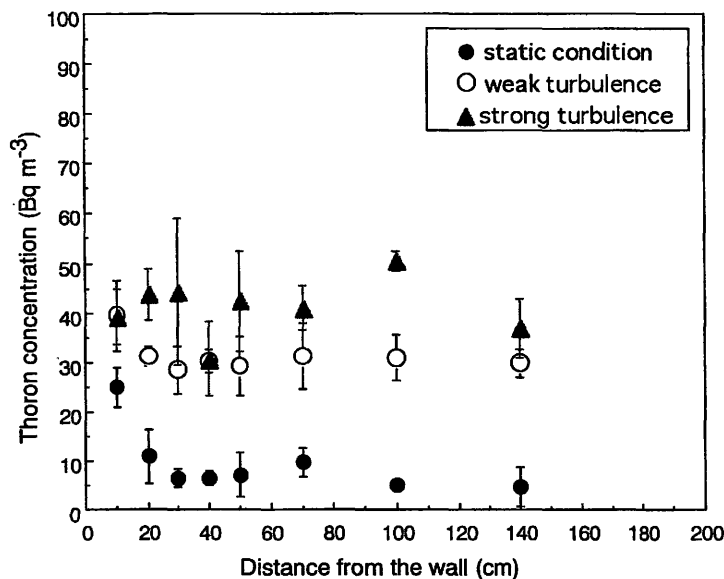


Fig. 1 Result of measurements of thoron concentration at the different distance from the wall under different conditions of turbulence.

屋内トロンおよびその娘核種濃度の決定因子としては、発生源での<sup>232</sup>Th濃度、トロンの散逸率、娘核種の壁面やエアロゾルへの沈着の条件や拡散や希釈の条件などが挙げられる。

まず線源における<sup>232</sup>Th濃度については、室内の壁、床、天井など建材が重要となる。建材中の<sup>232</sup>Th含有量については、UNSCEAR1982年報告書<sup>7)</sup>にまとめられた各国の種々の建材中濃度と伊藤ら<sup>8)</sup>によって調べられた日本の建材中濃度をグラフ化したものをFig. 2に示す。この図で示すように、<sup>232</sup>Th濃度は北欧、西ドイツのレンガやコンクリートが非常に高く、壁土については、日本が北欧よりも高い。日本の壁土の<sup>232</sup>Th濃度は、レンガとともに最も高く、北欧のレンガやコンクリートよりは低い。またトロン濃度が高い木造日本家屋に使用されている土壁用表面仕上げ材の<sup>232</sup>Th濃度を現在解析中であるが、スウェーデンの煉瓦の平均値に匹敵する100 Bq/kg程度であることが見出されている。

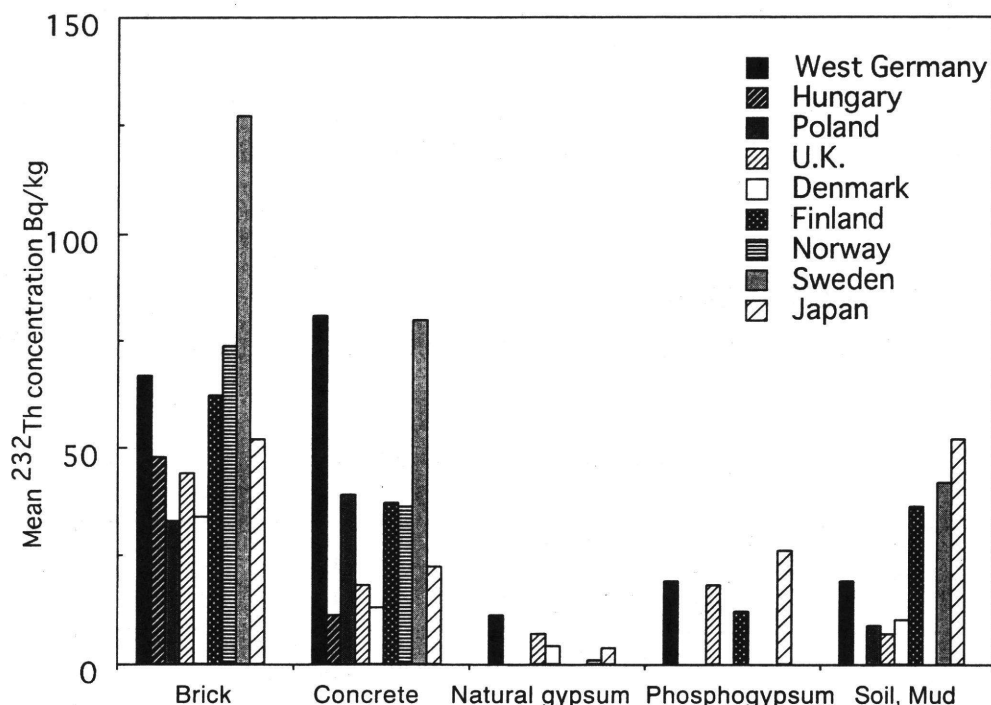


Fig. 2 <sup>232</sup>Th concentration in different building materials.

出典：UNSCEAR1982（欧州）  
伊藤、浅野、昭和63年度国立機関原子力試験研究成果報告書（日本）

室内のトロン濃度に直接関連するのは、トロンの散逸率であり、それは同じ<sup>232</sup>Th濃度であっても、建築材料の多孔性や粒度に大きく依存する。壁土は粒度が荒いので、コンクリートや煉瓦と比較して、トロンの散逸率は高いと考えられる。また同じ建材でも、含水率や気圧によっても変化する。Quoら<sup>9)</sup>は、トロン濃度は夏季が低く、冬季に高いという季節変化があることを報告しているが、この原因は、土壁の含水率の変化による散逸率の変化が原因と考えられる。

壁から散逸したトロンは、室内へ拡散するが、見かけの拡散係数に及ぼす因子として空気の対流、ファンなどによる攪乱が、重要であると考えられる。Maらは、その影響について調べるため木造家屋の部屋でファンによる空気の攪乱の影響について調べた<sup>6)</sup>。その結果によると、Fig. 1に示すように、攪乱がない場合は、木造家屋の土壁からの距離とトロン濃度の関係は、大きな濃度勾配がみられるのに対し、ファンによる攪乱があると壁から1 m以上の場所でも、濃度が高くなり、空気の攪拌の程度が強くなるほど、壁からの距離による変化が小さくなり、部屋全体のトロン濃度が高くなる傾向がみられた。

屋内トロン娘核種濃度の決定要因としては、まずトロンガスの空間分布やエアロゾル濃度が考えられる。壁面や床面の表面付近で生成された場合は、部屋の中央付近で生成されるのとは比べ、娘核種が壁や床面に沈着する確率が高くなることにより、室内の娘核種濃度が低くなる。またエアロゾル濃度が高いほど、壁や床面への沈着の確率を低くし、その結果、室内濃度を高める。室内の娘核種の濃度は、換気による希釈の影響もある。ただし室内にトロンの発生源がない場合は、屋外の娘核種濃度の方が屋内より高くなる場合が多く、その場合は、逆に換気により屋内濃度が高くなる。Biguら<sup>10)</sup>によると、空気の



攪拌により、トロン娘核種は、壁、床、天井面に対する沈着が大きくなるために、その濃度が大きく減少することが報告されている。ただしトロン娘核種の主たる発生源が、同じ室内にある場合は、複雑であり、攪拌により娘核種濃度は大きな変化がないことがことも報告されている<sup>6)</sup>。この原因について空気の攪拌によってトロンガス濃度が部屋の中央まで高くなったことや部屋へのトロンの散逸量が高くなったことにより娘核種の生成量が高くなったことが、沈着による娘核種濃度の減少を相殺していると考えられている。このような現象についての考察は、線量低減策の検討に役立つものと考えられる。

### Ⅲ. 屋内におけるトロンおよびその娘核種の濃度レベル

これまでに行われた屋内トロン濃度の調査研究の結果を Table 1 に示す。一般居住環境での屋内トロン

Table 1 Results of surveys of thoron concentration.

Country, (Method) Number of sample,	Thoron Concentration (Bq/m <sup>3</sup> ) A. Mean±SD, (Range)	Tn/Rn	Reference
Austria 9 houses	19 (3.3 - 74)		Steinhäusler et al. Health Phys.1975
U.S. (Two filter method) 25 houses,	(0 - 30)	0.23±0.37	Schery, Health Phys. 1985
W.Germany, (Electroprecipitation with SSB) Under ground 5 Car garage 1 Lecture room 1	7.6 0.7 (3.9 -19.1)		Reineking, Radiat. Prot. Dosim., 1992
Japan, (Passive Cup at 20cm from wall) Wooden Ferro-concrete Prefabricated	160 42 23		Quo et al., J. Nucl. Sci. Technol.1995
Japan, Hiroshima (Cup at 20cm from wall) 21houses	84.7±15.6	3.3	Doi & Kobayashi, Health Phys., 1994
Japan, (cup) 217 houses (11 prefectures)	18.5 (0 -384)		National Survey by the Science and Technology Agency
Korea Pusan 1 house Daegu 1 house	17.9 82.9		Chung, WH, Tokonami, S., Furukawa, M. Radiat. Prot. Dosim., 1998
China Dwellings in high background area	168		Wei et al., Proc. Int. Conf. On High Levels of Natural Radioactivity., 1990.
World Average	3 (2 - 20)		UNSCEAR 1993 ICRP Publ.50 (1986)

濃度の測定研究は、1985年 Schery によるもの<sup>11)</sup>が最初で、日本でも、Guo ら<sup>9)</sup>や土居 ら<sup>12)</sup>により調査研究が行われた。科学技術庁のラドン濃度全国調査においても、ラドン・トロン弁別モニターを用いて、ラドン濃度とともに参考データとしてトロン濃度が測定され、その平均値は、約  $18.5\text{Bq/m}^3$  である<sup>13)</sup>。この値は、UNSCEAR1993年報告書<sup>14)</sup>における世界の平均値である  $3\text{Bq/m}^3$  の数倍の値である。このように日本の測定結果は世界の平均値と比べて高濃度であるが、この調査では、測定器の位置が壁から 20cm 程度の位置に設置される場合が多く、人が呼吸をする部屋の中央付近での値では、これらの平均値よりかなり低いと考えられる。

トロン娘核種の測定は、ラドン娘核種と同様にこれまでに簡便な測定法が開発されていないので、ほとんどの場合フィルタ捕集によるアクティブ法が用いられるため、多サンプルの長期積分測定は不可能である。Table 2 にこれまで行われた屋内トロン娘核種の測定結果を示したが、これらの値は、測定サンプルが少なく、短い時間の微分測定の結果であり、線量評価を行うための各国における代表値と見なすことはできない。これらの結果をまとめると、世界の家屋における平衡等価トロン濃度(EET)は  $0.1\sim 4\text{Bq/m}^3$  の範囲となるが、UNSCEAR1993年報告書<sup>14)</sup>ではEETの平均値を、 $0.3\text{Bq/m}^3$  としている。戸外の平均値は  $0.1\text{Bq/m}^3$  としているので、屋内濃度は戸外の3倍である。日本ではGuo ら<sup>15)</sup>の測定研究で23カ所の屋内の平均値が  $1.7\text{Bq/m}^3$  であり、世界の平均値よりも高い値になっており、特に土壁の家屋では、上限値の数  $\text{Bq/m}^3$  程度の家屋がある。ラドンの場合と同様にトロンガスよりもトロン娘核種の方が線量への寄与が大きいので、線量評価のためには、娘核種の平均濃度を求める重要性が高い。しかし、トロン娘核種の測定は、長期間の平均値や多サンプルの測定は不可能であるため、パッシブ法でのトロンガスの測定結果から娘核種濃度を平衡ファクタを乗じて推定しようという試みもある。Guo ら<sup>9)</sup>は、壁から 20cm の位置で測定したトロンガスの濃度  $Q$  ( $0.2$ ) とトロン娘核種濃度  $CTP$  とすると理論的に次式で推定できると報告している。

$$CTP = 0.013 Q (0.2)$$

実際の測定値でも、平均値ではこの関係式にほぼ一致しているが、個々の値の相関はそれほど良いわけではない。また、トロン濃度は大きく変化する空間分布を示すので、トロン娘核種濃度も多くの因子で変化することから、ラドンのようにガスの濃度から娘核種濃度を推定するには大きな誤差が生じる危険性がある。

UNSCEAR 報告書では、トロンに関するデータが乏しいので、ラドン娘核種に対するトロン娘核種の濃度比の平均値を求めて、ラドン娘核種の平均値に濃度比を乗じて世界の平均値を推定するという方法を用いている。平衡等価濃度でのラドン・トロン比の測定結果のレンジは、 $0.007\sim 0.01$  であり、UNSCEAR1982年報告書<sup>7)</sup>では、世界の平均値を  $0.05$  としている。この値は、平衡等価濃度の比であり、ポテンシャルアルファエネルギーでの比で表すと、約  $0.7$  となる。UNSCEAR1988年報告書<sup>16)</sup>では、各国のラドン・トロン娘核種の同時測定の結果からポテンシャルアルファエネルギーの比をまとめているが、この結果から、ポテンシャルアルファエネルギーの比の値の平均値は、 $0.5$  としている。最近 Schery<sup>17)</sup> がラドン娘核種とトロン娘核種のポテンシャルアルファエネルギーの比についてまとめた結果を Table 3 に示す。これらの平均値は UNSCEAR 報告書の値と大差はない。この比の平均的な値を  $0.5$  とすると線量換算係数を乗じて、屋内での実効線量当量での比率に換算すると、約  $0.17$  となる。つまりトロンの線量寄与は、ラドンの  $17\%$  程度であるということになる。

Table 2 Results of surveys of indoor thoron progeny.

Country, Number of sample	Equilibrium equivalent thoron concentration (EET) (Bq/m <sup>3</sup> )		EET/EEC	Reference
	A. Mean ± SD	Range		
Laboratory	0.13 (ThB) 0.10 (ThC)			Harly et al., Health Phys 1973
Germany (Salzburg)	0.89 (ThC)	0.0037- 2.3	0.053	Steinhäusler et al. 1975
W.Germany, 32 houses	0.37		0.046	Wick 1979
W.Germany, 250		0.3-0.6		Jacobi 1980
Salzburg, 729 person	1 (ThC)			Steinhäusler et al. 1980
Norway, 22 houses	0.7	0.1-1.1	0.04	Stranden, Health Phys. 1980
Canada, 95 houses (Elliott Lake)	1.5		0.02	Gunning & Scott, Health Phys.1982
W.Germany, 148 houses	0.2 (median)	0.1-0.6		Keller et al. Radiat. Environ. Biophys. 1982
US, 68 houses	0.28±0.04		0.05	Schery, Health Phys. 1985
Hong Kong, 10 houses	0.77±0.33		0.04	Tso & Li, Health Phys. 1987
U.K., 390 houses	0.6 (Estimate whole UK 0.3)			Wrixon et al. NRPB-R190, 1988
U.S. 70 houses (4 States)	0.15±0.11 ~2.6±1.61			Dudney et al., Health Phys. 1990
U.S. Colorado		0.083-1. 9	0.09 - 0.58	Martz et al. Health Phys., 1990
Sweden, 9 houses	0.3	0.1-0.6	0.01	Mjönes et al., Radiat. Prot. Dosim., 1992
Japan, 23 houses	0.72±0.24 (concrete) 3.52±2.48 (mud) 1.72±0.12		0.007 0.037 0.028	Guo et al., Radiat. Prot.. Dosim., 1992
World Average	0.7 0.5 0.5 0.3	0.2 - 1.2  0.47 - 0.7	0.05   (ThC)	UNSCEAR 1982 ICRP Publ. 50 (1986) UNSCEAR 1988 UNSCEAR 1993

EEC:Equilibrium equivalent radon concentration

#### IV. 線量評価

トロンおよびその娘核種の線量評価については、ラドンと同様、実測された研究結果はなく、吸入量から線量への変換は数学モデルによる推定を用いている。吸入した娘核種の呼吸器官への沈着や沈着後の体内の他の臓器への移行については、これまでにW. Jacobi<sup>18, 19)</sup>やA. C. Jamesら<sup>20)</sup>によって行われたトロン娘核種の線量評価モデルの研究に基づいている。ICRP Publication 50<sup>21)</sup>およびUNSCEAR 1988年報告書<sup>16)</sup>、1993年報告書<sup>14)</sup>において線量評価に用いられたトロンの濃度-線量換算係数をTable 4に示す。この表から、この係数の値は、ほとんど改訂されていないし、最近のラドン関連のICRP等の刊行物や報告

Table 3 Ratio of PAEC for  $^{220}\text{Rn}$  progeny to  $^{222}\text{Rn}$  progeny at various locations.  
(Schery, cited from BEIR VI)

Location		PAEC( $^{220}\text{Rn}$ ) PAEC( $^{222}\text{Rn}$ )
Country (district)	Sample number	
Italy(Latium)	50 dwellings	1.3
Canada(Elliot Lake)	90 dwellings	0.3
Hungary	22 dwellings	0.5
Norway	22 dwellings	0.5
Germany(western)	150 dwellings	0.8
Germany(south western)	95 dwellings	0.5
France (Finistere)	219dwellings	0.3
United States (20 states)	68 measurements	0.6
United States (Colorado)	12 indoor locations	0.3
Hong Kong	10 indoor sites	0.8

書においてもトロンに新たな換算係数の提示はされていない。UNSCEAR1988年報告書<sup>16)</sup>で、提示されたトロンおよびその娘核種の単位濃度吸入当たりの各臓器ごとの吸収線量と実効線量当量への換算係数をTable 5に示す。これによるとラドン娘核種による線量のほとんどが、呼吸器官に対するものであるのに対し、トロン娘核種の場合は、呼吸器官のほかに、骨内膜細胞、腎臓、肝臓、骨髄などへの線量も無視できない。屋内のトロン娘核種による各臓器の吸収線量(荷重係数を乗じた値)の実効線量当量への寄与の割合は、肺が67%、腎臓15%、骨表面11%、赤色骨髄4%、肝臓2%となる。

この換算法によると、ラドンおよびその娘核種の吸入による線量は、ラドンガスの濃度-線量変換係数が、娘核種に比べて60分の1程度である(ただし娘核種の濃度は平衡等価濃度として)ので、通常的环境中では、ラドンガスの寄与は無視できる程度である。よって、ラドン被曝の場合の被曝線量は、ほとんどがラドン娘核種によるものであり、それらが短半減期であり他の臓器に移行しないので、ほとんどが肺および気管・気管支への線量となっている。一方、トロンの場合は、トロンガスの濃度-線量変換係数については、ラドンと同様に、娘核種のそれに比べて非常に小さい(約300分の1)が、トロンガスの場合は、娘の濃度の数百倍の場所もあるので、無視できない場合もある。

ラドンの人体影響評価においては、最近、線量推定による影響評価のアプローチよりも、直接疫学研究で得られたリスク係数を用いて肺癌リスクを求めるアプローチの方法を重視する傾向にある。しかし、現在のところ、トロン被曝の影響に関する疫学調査はWeiら<sup>2)</sup>によるものだけで、トロンの平均値が168 Bq/m<sup>3</sup>である中国の高自然放射線地域で、染色体異常の頻度で増加が見られるが、肺癌の増加は見られていない。よって、トロン吸入によるリスク係数は得られていない。ICRP Publication50では、ラドン・トロン娘核種による一般環境での被曝による肺癌の頻度の増加を推定しているが、この推定においては濃度-線量換算係数におけるラドン・トロン比を用いて、ラドンのリスク係数を適用することによってトロンの影響を評価している。この推定によると一般環境におけるラドン・トロン平衡等価濃度をそれぞれ、15、0.5Bq/m<sup>3</sup>として、100万人当たりの肺癌の増加分を、ラドンが32、トロンが3.6としている。

Table 4 Mean dose conversion coefficients for indoor and outdoor exposure to thoron and its progeny.

Location	Thoron gas Effective dose per unit integrating concentration nSv / (Bq h m <sup>-3</sup> )	Thoron progeny Effective dose per unit integrating EEC nSv / (Bq h m <sup>-3</sup> )	Reference
Indoor	-	39	ICRP Publ. 50 (1986)
Outdoor	-	39	
Indoor	0.11	32	UNSCEAR 1988
Outdoor	0.11	10	
Indoor	0.11	32	UNSCEAR 1993
Outdoor	0.11	10	

Table 5 Dose factors for indoor and outdoor inhalation of thoron and its progeny by members of the public presented in UNSCEAR 1988 report.

Organ or tissue	Thoron gas	Thoron progeny		
	Dose rate per unit concentration	Dose per unit intake	Dose rate per unit concentration	
	μGy y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>	nGy Bq <sup>-1</sup>	Indoors μGy y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>	Outdoors μGy y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>
Lungs	0.25	14	78	25
Red bone Marrow	0.02	0.8	4.5	1.4
Bone lining cells	0.18	9	50	16
Liver	0.02	1	5.6	1.8
Kidneys	0.10	6	34	11
Spleen	0.004	0.2	1.1	0.4
Other soft tissues	0.002	0.1	0.6	0.04
Effective dose equivalent	0.96 μSv y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>	50 nSv Bq <sup>-1</sup>	280 μSv y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>	88 μSv y <sup>-1</sup> per Bq m <sup>-3</sup>

## V. おわりに

これまでに述べたように、トロンの線量寄与は、一般公衆においてはラドンと比較して高くないと考えられるが、まだ、濃度レベル、線量推定やリスク評価において未知な部分が多い。日本の土壁家屋の壁面付近で就寝する者や高自然放射線地域や洞穴生活者などの特殊な環境での居住者におけるトロンの被ばくの影響は無視できないと考えられ、今後のトロン被ばく線量評価に関する研究は重要である。

## 参考文献

- 1) 米原英典、青山喬、飯田孝夫、山西弘城、阪上正信：一般家屋におけるトロン(<sup>220</sup>Rn)およびその娘核種と Passive 法によるラドン(<sup>222</sup>Rn)測定に及ぼす影響。日本放射線影響学会第32回大会講演要旨集

(1989)

- 2) Wei L., Sha Y., Tao Z., He W., Chen D., Yuan Y. : Epidemiological investigation in high background areas of Yangjang, China. Sohrabi M., Ahmed U, Durrani S. A. eds. *Proc. Int. Conf. On High Levels of Natural Radioactivity*(1990)
- 3) Steinhäslser F. : Environmental  $^{220}\text{Rn}$  : A review. *Environ. Int.*, **22**(suppl 1), S1111-1123(1996)
- 4) Katase, A., Matsumoto, Y., Sakae, T., Ishibashi, K. : Indoor Concentrations of  $^{220}\text{Rn}$  and Its Decay Products. *Health Phys.*, **54**(3), 283-286(1988)
- 5) Doi, M., Fujimoto, K., Kobayashi, S., Yonehara, H. : Spatial Distribution of Thoron and Radon Concentrations in The Indoor Air of A Traditional Japanese Wooden House, *Health Phys.*, **66**(1), 43-49(1994)
- 6) Ma, J., Yonehara, H., Aoyama, T., Doi, M., Kobayashi, S., Sakanoue, M. : Influence of air flow on the behavior of thoron and its progeny in a traditional Japanese house. *Health Phys.*, **72**(1), 86-91(1997)
- 7) UNSCEAR, Ionizing Radiation : Sources and Biological Effects, UNSCEAR 1982 Report (1982)
- 8) 伊藤和男、浅野賢二 : 居住環境における放射線レベルの形成機構に関する研究. 昭和63年度国立機関原子力試験研究成果報告書(第29集)(1988)
- 9) Quo, Q., Iida, T., Okamoto, K., and Yamasaki, T. : Measurements of Thoron Concentration by Passive Cup Method and Its Application to Dose Assessment. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **32**, 794-803(1995)
- 10) Bigu, J. : Effect of Selected Variables on Airborne  $^{220}\text{Rn}$  Progeny Concentration. *Health Phys.*, **54**(1), 93-98(1988)
- 11) Schery, S. D. : Measurements of airborne  $^{212}\text{Pb}$  and  $^{220}\text{Rn}$  at varied indoor locations within the United States. *Health Phys.*, **49**(6), 1061-1067(1985)
- 12) Doi, M., Kobayashi, S. : Characterization of Japanese Wooden Houses with Enhanced Radon and Thoron Concentrations. *Health Phys.*, **66**(3), 274-282(1994)
- 13) 宮野敬治 : ラドン濃度全国調査(一般家屋内)結果から. トロンとその娘核種の性状と挙動に関する専門研究会報告書、京都大学原子炉実験所(1995)
- 14) UNSCEAR, Sources and Effects of Ionizing Radiation, UNSCEAR 1993 Report(1993)
- 15) Quo, Q., Shimo, M., Ikebe, Y., Minato, S. : The study of thoron and radon progeny concentration in dwelling in Japan. *Radiat. Prot. Dosim.*, **45**, 357-359(1992)
- 16) UNSCEAR, Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation, UNSCEAR 1988 Report (1988)
- 17) Schery S. D. : Thoron in the environment. *JAWWA*, **40**, 493-497(1990)
- 18) Jacobi, W., Eisfeld, K. : Internal dosimetry of radon-222, radon-220 and their short-lived daughters. In "*Natural Radiation Environment*" (K. Vohra et al., eds.), Wiley Eastern Limited(1982)
- 19) Jacobi, W. : Relations Between The Inhaled Potential  $\alpha$ -Energy of  $^{222}\text{Rn}$ -and  $^{220}\text{Rn}$ -Daughters and The Absorbed  $\alpha$ -Energy in The Bronchial and Pulmonary Region. *Health Phys.*, **23**, 3-11(1972)
- 20) James, A. C., Greenhalgh, J. R., Birchall, A. : A Dosimetric Model for Tissues of the Human Respiratory Tract at Risk from Inhaled Radon and Thoron Daughters. In "*Proceedings of the 5th Congress of International Radiation Protection Association*", Vol. 2, pp.1045-1048, Jerusalem(1980)
- 21) ICRP, Lung Cancer Risk from Indoor Exposures to Radon Daughters, ICRP Publication 50. (1987)

## 線量評価法

下 道國

放射線医学総合研究所 内部被ばく・防護研究部

### Dose Estimation Methods for Human Exposure to Radon Decay Products

Michikuni SHIMO

National Institute of Radiological Sciences

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

#### Abstract

The dose estimation methods for human exposed to radon and radon progeny are introduced in UNSCEAR, ICRP and BEIR reports etc. The methods are divided into two classes; one is the dosimetric approach and the other is the epidemiological approach. UNSCEAR has continuously adopted the former method since 1977 Report, while ICRP has introduced two methods since the publication 32. In this paper, features of two dose estimation methods and the difference among doses respectively obtained by two methods are introduced.

#### I. はじめに

ラドン子孫核種による人体の線量算定方法について、これまでに国連科学委員会、国際放射線防護委員会、米国BEIR委員会など複数の国際機関等によって提示されてきた。国連科学委員会(UNSCEAR)では、線量学的手法による線量算定を継続的に紹介してきており、また、国際放射線防護委員会(ICRP)報告書では、過去、線量学的手法ならびに疫学的手法による線量算定を併記の形で記述されてきたが、ICRP Publ.32(1993)以来、両手法について言及している。両手法で算定されるラドン子孫核種の線量を比べると、疫学的手法による値は線量学的手法による値のおよそ2/3程度となる。ここでは、線量学的手法と疫学的手法の二つの線量算定方法について概略的に述べる。

#### II. 実効線量算出方法

実効線量(実効線量当量)算定の方法は、線量学的方法と、ラドンの疫学データと原爆被曝者データとの比較から実効線量を推定する方法、の二つがある。以下に、順にその算出方法・手順を記す。

##### 1. 線量学的方法

ラドン子孫核種の被曝による実効線量を算出する場合、ラドン濃度以外に、子孫核種平衡ファクタ、子孫核種エアロゾルの濃度・粒径分布などの物理計測量、所在場所に関する所在係数など、さまざまな要因を考慮する必要がある。ラドン濃度から実効線量を求める過程で、これらの要因がどのステップで

# ラドンによる人体影響

考慮すべきパラメータ

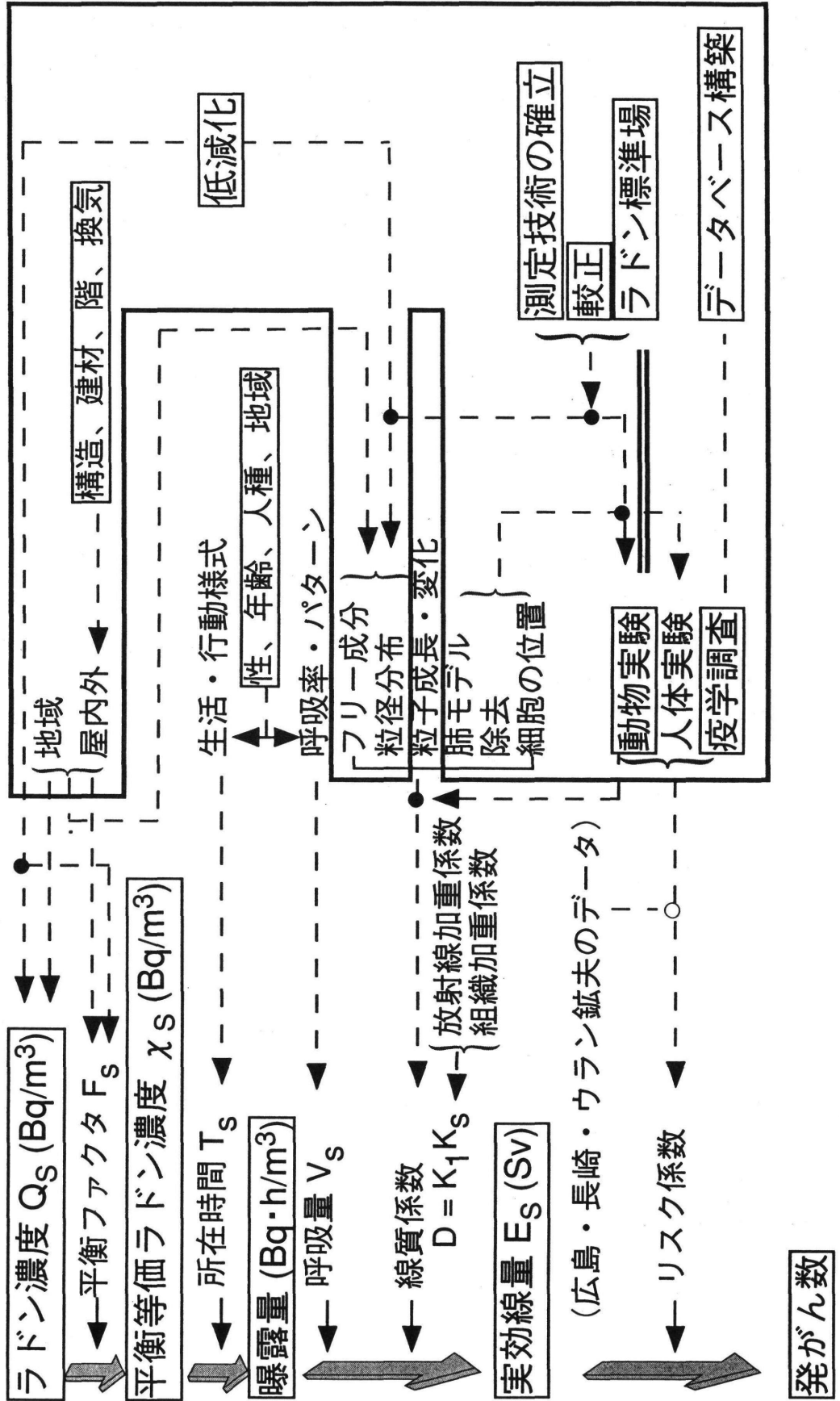


図1 ラドン濃度から線量評価までに係る諸因子と算定手順



関与するかを図1の流れ図に示した。以下に述べる実効線量算定式では、因子がラドン濃度、平衡ファクタ、所在係数、線量換算係数の4因子に集約されるが、ここでいう線量換算係数は同図では曝露量から実効線量までを一括りとした量を意味しており、図から明らかなように多くの要因が線量換算係数の中に含まれることに留意しなければならない。

(1)実効線量算定式

この方法はUNSCEARで1982年以来、一貫して採用されているもので、実効線量Eの算定式はつぎのとおりである。

$$E = Q \cdot F \cdot T \cdot K_U \quad [\text{mSv}] \quad (1)$$

ここで、Q : ラドン濃度  $[\text{Bq}/\text{m}^3]$

F : 平衡ファクタ  $[-]$

T : 所在係数×年間時間(8,760h)  $[\text{h}]$

$K_U$  : 線量換算係数  $[\text{mSv}/(\text{Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})]$

である。

(2)線量換算係数の導出

この方法では、線量換算係数 $K_U$ の算出が線量学的手法に基づいているために、論理的でわかりやすい。以下に示した①～③がその筋道である。

① 単位放射能当りのポテンシャルアルファエネルギー ( $5.54 \times 10^{-9} \text{ J/Bq}$ ) の導出

この量は、ラドン子孫核種の $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ のそれぞれの単位放射能当りのポテンシャルアルファエネルギーの和を取ったもので、紛れる余地のない定数である。数値は以下のようにして計算される。

$$\begin{aligned} ^{218}\text{Po}: 6.0 \text{ MeV} + 7.69 \text{ MeV} &= 3.7 \text{ MeV} = 2.19 \text{ pJ} \\ \rightarrow 2.19 \text{ pJ} \div \lambda (0.00378) &= 5.79 \times 10^{-10} \text{ J/Bq} \end{aligned}$$

同様にして、

$$\begin{aligned} ^{214}\text{Pb}: 28.6 \times 10^{-10} \text{ J/Bq} \\ ^{214}\text{Bi}: 21.0 \times 10^{-10} \text{ J/Bq} \end{aligned}$$

となり、これら3核種の和をとって、 $5.54 \times 10^{-9} \text{ J/Bq}$ となる。

② 摂取量と実効線量の換算係数(屋内: 2 Sv/J; 屋外: 3 Sv/J; 1982 Report)

人体に与えられたエネルギー(摂取量) [J] がどの程度の実効線量となるかは極めて重要な点であるが、この間には、場所や時間によって変動する子孫核種のフリー成分比や粒径分布をはじめ、粒子の沈着部位を計算するのに用いる肺モデルの取り方、放射線荷重係数や組織荷重係数などが介在し、簡単に決まる値でないが、1982 UNSCEARでは以下の値が提示されている。

屋内滞在者に対して: 2 Sv/J

屋外滞在者に対して: 3 Sv/J

屋内外の滞在者に対する違いは次の理由による。すなわち、屋外のエアロゾル粒子径が屋内よりも大きいとのデータに基づいている。なお、肺の質量を1 kgとしているので、単純に肺に $\alpha$ 線によって平均的に1 Jのエネルギー吸収があったとすると、それは2.4Sv(組織荷重係数×放射線荷重係数=0.12×20)に相当する。

③ 1時間の呼吸量(屋内:  $0.8\text{m}^3/\text{h}$ ; 屋外:  $1.0\text{m}^3/\text{h}$ ; 1982 Report)

ラドン子孫核種の吸入では、呼吸量が大きく関与する。1982UNSCEARでは以下の値が提示されている。

屋内滞在者に対して：0.8m<sup>3</sup>/h

屋外滞在者に対して：1.0m<sup>3</sup>/h

したがって、線量換算係数Ku(1982 UNSCEAR)は次のようになる。

屋内：Ku=①×②×③=8.7×10<sup>-6</sup> [mSv/(Bq·h·m<sup>-3</sup>)]

屋外：Ku=①×②×③=17×10<sup>-6</sup> [mSv/(Bq·h·m<sup>-3</sup>)]

ところが、1988UNSCEAR報告書および1993UNSCEARでは、線量換算係数は屋内と屋外の区別はなくなり、次のように同一の数値が提示されている。

1988UNSCEAR：Ku=10×10<sup>-6</sup> [mSv/(Bq·h·m<sup>-3</sup>)]

1993UNSCEAR：Ku=9×10<sup>-6</sup> [mSv/(Bq·h·m<sup>-3</sup>)]

屋内と屋外の区別がなくなった理由として、粒径分布の屋内外で多くのデータが蓄積されるにつれて、両者の間に差が認めにくくなったことが挙げられている。1988年報告の数値は、1982年数値の屋内と屋外の加重平均を丸めた数値と推定される。また、この数値と1993年報告との違いは、同じ<sup>222</sup>Rn濃度に対する平衡等価ラドン濃度値が16 Bq/m<sup>3</sup>から15 Bq/m<sup>3</sup>に変更されたためである。

## 2. 疫学的方法

この方法はICRP Publication 65で採用された。同書では家庭内についてしか言及せず、それゆえと云うべきか、屋内の平衡ファクタを0.4として線量換算係数(線量換算規約)に含めてしまっている。ここでは、公衆の線量算定では屋外生活も考慮しなければならない、すなわち、屋内と屋外に分けて評価しなければならないとの観点から、線量換算規約に平衡ファクタは含めない形、つまり線量学的方法と同じ形式で表現することとする。したがって、原著と区別するために、線量換算規約とせずに線量換算係数とする。

### (1) 実効線量算定式

ICRP Publication 65の記述に基づいて、実効線量Eの算定式を導出すると次式のようにになる。

$$E = Q \cdot F \cdot T \cdot K_I \quad [\text{mSv}] \quad (2)$$

ここで、Q : ラドン濃度 [Bq/m<sup>3</sup>]

F : 平衡ファクタ [—]

T : 所在係数×年間時間(8,760 h) [h]

K<sub>I</sub> : 線量換算係数 [mSv/(Bq·h·m<sup>-3</sup>)]

である。

### (2) 線量換算規約の導出

はじめに、原著の線量換算規約の算定手法をみておく。そこでは、ウラン鉱夫等の疫学データ(ラドン曝露量当りの発癌者数)と原爆被曝者集団などから推定された損害確率が用いられている。

#### ① 曝露量当りの損害確率

曝露量当りの損害確率(生涯致死確率係数)は、ウラン鉱夫等の疫学データと日本、米国、英国、中国、プエルトリコで得られた生涯致死確率に関するデータを用いて、次の値が示されている。

$$[\text{損害確率}/\text{曝露量}] : 8.0 \times 10^{-4} (\text{mJ} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})^{-1}$$

なお、曝露量のデータはWLM単位で示されていることが多いが、mJ·h·m<sup>-3</sup>への換算には1 WLM =

3.54mJ・h・m<sup>-3</sup>の理論的關係を使用する。

② 実効線量当りの損害確率

実効線量当りの損害確率は、原爆被爆集団のデータからのリスク係数として、公衆と作業者に分けて求められており、次のように示されている。

$$\begin{aligned} \text{[損害確率/実効線量]} &: 7.3 \times 10^{-4} (\text{mSv})^{-1}; \text{公衆} \\ &5.6 \times 10^{-4} (\text{mSv})^{-1}; \text{作業者} \end{aligned}$$

したがって、線量換算規約は、この「①の②による商」に0.4を乗じることによって求まることになる。

(3) 線量換算係数の算定

ここでは、前述したように、線量換算係数として求めるので、0.4を乗じない「①の②による商」に留める。すなわち、

$$\begin{aligned} \text{線量換算係数} &= \text{[損害確率/曝量露]} / \text{[損害確率/実効線量]} \\ &= \text{[実効線量/曝量露]} \\ &= 1.1 \text{ [mSv/(mJ} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})]}; \text{公衆、} \\ &= 1.4 \text{ [mSv/(mJ} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})]}; \text{作業者} \end{aligned}$$

となる。

したがって、公衆に対する線量換算係数 $K_I$ は、

$$\begin{aligned} K_I &= 1.1 \text{ [mSv/(mJ} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})] } \times 5.54 \times 10^{-9} \text{ [J/Bq]} \\ &= 6.09 \times 10^{-6} \text{ [mSv/(Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})] } \end{aligned}$$

となる。

### Ⅲ. 線量学的方法と疫学的方法の相違と問題点

線量学的方法と疫学的方法の違いは、線量換算係数の導出過程の違いである。換算係数の数値だけを比較すると、前者による係数は $9 \times 10^{-6} \text{ [mSv/(Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})]$ であり、後者による係数は $6 \times 10^{-6} \text{ [mSv/(Bq} \cdot \text{h} \cdot \text{m}^{-3})]$ と、前者が後者の約1.5倍と大きい。したがって、ラドンによる線量算定では、この違いがそのまま出て前者による評価が大きくなり、後者での算定値は前者でのその2/3となる。

線量学的手法で導出される換算係数の問題点として、次の諸点が挙げられる。

- ① 測定量である非付着成分と粒径分布のデータがまだ少なく、かつ限定されている、
- ② 呼吸量に関するデータ、分析も極めて少ない、
- ③ 肺モデルの適合性(沈着部位、標的細胞位置、 $\alpha$ 線の無駄打ち、年齢、等)

いくつかの不確定要素がここに皺寄せされているともいえないが、それぞれの項目が実測や調査などにより確定されてくれば、線量換算係数の精度の向上が期待される。

一方、疫学的手法による換算係数の問題点として、次の点が挙げられる。

- ① 曝露量をそのまま使用しているが、鉱夫と公衆では曝露形態が異なるか、
- ② 広島・長崎の $\gamma$ 線・中性子線のデータをそのままラドンに用いてよいか(線種および短時間の一時大量被曝と長期間の慢性被曝などの違い)。
- ③ 疫学データには交絡因子含まれており、サンプル数とも関係するが、相当に大きな誤差が入ることは免れえず、バイアスの入る余地が残る。

などである。

いずれも一長一短あって、どちらかが決定的に優れているとは言い難い。これまで線量学的手法に用いられてきた呼吸器モデルを相当に改良したモデルとして、ICRP Publ.66で新しい呼吸器モデルが提示されたものの、ラドンへの適用は見送られている状況にある。したがって、近い将来にラドン用の呼吸器モデルが示されるまで、従来モデルを継続して使用するのも止むを得ない。著者は線量学的手法をによる算定法を支持するが、ラドン用の呼吸器モデルが未開発である点を注視する立場、あるいは実際の疫学等のデータの反映を支持する立場の者が多くなれば、線量換算規約に示されるICRPの手法が評価に際して使用されるようになるであろう。

ここでは触れなかったが、トロンとその子孫核種についても同様の扱いができるが、疫学データがほとんどない現状では、線量学的手法に依らざるを得ないであろう。

最後に、沈着粒子が呼吸気道の一部に局所的に沈着し、かつ $\alpha$ 線のように局部的でかつ $\gamma$ 線に比べて線エネルギー付与の大きい「ラドン・トロン」に対して、いまの放射線加重係数や生物学的加重係数を乗じて単純にシーベルト単位で被曝を算定することについては、他の放射線との並びで被曝を比較するためという放射線防護上の意味を認めつつも、その適・不適を含めて大きな問題があるということ指摘しておきたい。

#### IV. おわりに

ラドンによる被曝線量の算定方法について、線量学的手法と疫学的手法の二つを概略的に説明し、それによる線量の違いとして、後者による値が前者による値の6割程度と見積もられることを述べた。また、いずれが特に優れているとは言い難いが、今後は、ICRPでも採用された疫学的手法によって線量評価がなされる可能性を述べた。

#### 参考文献

- 1) UNSCEAR 1977 Report, United Nations, New York (1977)
- 2) UNSCEAR 1982 Report, United Nations, New York (1982)
- 3) UNSCEAR 1988 Report, United Nations, New York (1988)
- 4) UNSCEAR 1993 Report, United Nations, New York (1993)
- 5) BEIR VI Report, National Academy Press, Washington DC (1998)
- 6) ICRP Publication 32, Pergamon Press, Oxford (1981)
- 7) ICRP Publication 65, Pergamon Press, Oxford (1993)
- 8) ICRP Publication 66, Pergamon Press, Oxford (1994)

## わが国の線量評価値

飯本 武志

東京大学 原子力研究総合センター

### Effective Dose due to Radon in Japan

Takeshi IIMOTO

The University of Tokyo

Yayoi 2-11-16, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

#### Abstract

The annual effective dose due to  $^{222}\text{Rn}$  series for the Japanese public was estimated as 0.46mSv/y. Variation range of each dosimetric parameter used in the calculation (that is radon concentration, occupancy factor, unattached fraction ratio of radon progeny, size distribution of radon progeny and equilibrium factor) was also discussed and systematic error of the effective dose was estimated. The data number of Japanese parameters is not enough to determine the representative value. However, since each parameter includes tens to hundreds percent of error, the effective dose estimated in this paper should not be so different from the real average. In the near future, the Japanese out-door concentration will be reported. As new information on parameters is obtained, the Japanese effective dose can be estimated more precisely.

#### I. はじめに

ラドン娘核種による実効線量の算出方法には、大きく分けて2つのアプローチがある。そのひとつは、①単位放射能当りのポテンシャルアルファエネルギー [J/Bq]、②体内摂取量を実効線量に変換するための係数 [Sv/J] および③呼吸率 [ $\text{m}^3/\text{h}$ ] の3者の積として計算される線量換算係数 [ $\text{mSv/Bqhm}^{-3}$ ] による「線量学的アプローチ」である。国連科学委員会(UNSCEAR)は現在まで一貫してこの手法を採用している<sup>1,2,3)</sup>。もうひとつは、ウラン鉱山労働者や原爆被爆者の疫学データによって得られた曝露量当りの損害確率を基に決定される線量換算規約 [ $\text{mSv/Bqhm}^{-3}$ ] を用いる「疫学的アプローチ」である。国際放射線防護委員会(ICRP)では、従来前者と後者を併記していたが、ラドンに関する最新の勧告書(Publication65<sup>4)</sup>)では、後者、すなわち疫学的アプローチのみを採用している。UNSCEARとICRPの最新の報告書を比べると、線量換算係数( $9 \times 10^{-6}$ )が線量換算規約( $6.0 \times 10^{-6}$ )の約1.5倍と評価されているため、その結果アプローチの選定により実効線量の算定結果が大きく異なってしまうという問題が未解決のまま残っている。ここではその差についての言及はせず、より詳細なパラメータを基に線量算定する前者の手法を例にとり、わが国のラドンによる線量を評価する。また、線量計算に寄与するパラメー

タの変動の範囲や計算された線量が有する誤差についても簡単に述べる。特に、線量計算上の主要なパラメータのひとつ「平衡ファクタ」については、筆者による実測データを基にその時間的変動を考察し、評価結果に及ぼす影響を概算する。

## II. わが国の実効線量の評価

国連科学委員会報告(UNSCEAR1993)<sup>3)</sup>によれば、線量学的アプローチによるラドン娘核種の吸入に起因する実効線量は以下の式で算定される。

$$H = Q_i \times F_i \times T_i \times K$$

ここで、

$$\begin{array}{ll} H ; \text{年実効線量当量 [mSv y}^{-1}] & Q ; \text{ラドン濃度 [Bqm}^{-3}] \\ F ; \text{平衡ファクタ [-]} & T ; \text{居住係数} \times 8760 \text{ [hy}^{-1}] \\ K ; \text{線量換算係数 [mSv/Bqhm}^{-3}] & i ; 1 \text{ が屋内、} 2 \text{ が屋外} \end{array}$$

である。

さらに、線量換算係数Kは、呼吸量、ラドン娘核種の物理的特性(非付着成分比、粒径分布)、生物学的特性(気管支モデル、標的細胞への距離、溶解度、クリアランス)、放射線荷重係数、組織荷重係数等の多くの線量学的パラメータによって決定されることが知られている(Ⅲ参照)。わが国独自の線量を精密に計算するには、第一にこれらの線量学的パラメータについてわが国独自の数値を定め、その後に独自の線量換算係数を評価することになる。その際多くの文献が指摘しているように、これらのパラメータは単独で変動するものもあれば、互いに相関性をもつものがあることにも注意が必要である。

Table 1 にわが国の実効線量の計算に使用したパラメータを示す。これらは、Ⅲで述べるわが国の代表値とその変動幅を基に決められた数値である。

Table 1 Parameters used in the Japanese radon dosimetry.

	Parameters	Unit	Indoor	Outdoor
H	Effective dose	mSv y <sup>-1</sup>	0.44	0.02
Q	Radon conc.	Bq m <sup>-3</sup>	15.5	5
F	Equilibrium factor	-	0.4	0.6
T	Occupancy factor x 8760	h y <sup>-1</sup>	0.9 x 8760	0.1 x 8760
K	Conversion coefficient	mSv/Bqhm <sup>-3</sup>	9 x 10 <sup>-6</sup>	9 x 10 <sup>-6</sup>
i	1:indoor 2:outdoor			

前述の通り、UNSCEAR1993では、 $K = 9 \times 10^{-6}$  [mSv/Bqhm<sup>-3</sup>] と評価している。Kに寄与する多くのパラメータは、日本の代表値とよく一致している(体格差や肺モデルの適合性などの問題は残るが)ここではそのままわが国の線量計算に用いることができると考えた。上式にその他の日本独自のパラメータを代入し、屋内と屋外の被曝線量を別々に計算し和をとった。

$$\begin{aligned} H &= (15.5 \times 0.4 \times 0.9 \times 8760 \times 9 \times 10^{-6}) + (5 \times 0.6 \times 0.1 \times 8760 \times 9 \times 10^{-6}) \\ &= 0.46 \text{ [mSv/y]} \end{aligned}$$

したがって、わが国のラドン娘核種吸入による年実効線量は0.46mSvと算定された。その他、ラドンガスの溶解による体内吸収(溶解係数0.4)と肺内部に摂り込まれたラドンガスそのものからの線量寄与は、上記線量値のそれぞれ2%程度と見積もられている。

### Ⅲ. わが国のパラメータの代表値とその変動幅

Table 1 で用いたわが国独自のパラメータは、既にいくつかの報告書により検討され整理されている。例えば、「ラドンの人体影響評価専門研究会報告書(日本保健物理学会、平成10年5月)」<sup>5)</sup>がそのひとつである。この報告書では、ラドンによる実効線量を精密に評価する際に議論すべきパラメータについて、最新の情報を整理し、問題点を挙げ、今後この分野に必要となる研究についての方向づけを行っている。様々な角度から関連するパラメータの特徴が議論されているため大変参考になる報告書である。しかし、この報告書の性格上、日本の代表値としての整理はしていないため、ここでは別の代表的な報告書、すなわち「ラドン濃度測定・線量評価最終報告書(放射線医学総合研究所、ラドン濃度測定・線量評価委員会、平成10年3月)」<sup>6)</sup>で議論されたわが国のパラメータを紹介する。

Table 2 にラドンの実効線量算定に関連のあるパラメータとその変動幅を再度整理した。参考のために、同表に人口で荷重平均された全世界の代表値も示した。以下、各々について代表値の決定に至る経緯の概略を述べる。

Table 2 Dosimetric parameters determined for the calculation of the effective dose due to radon and its progeny (as representative values).

Reference	Japan		World
	Final report of radon concentration measurements and dosimetry (1998)		UNSCEAR (1993)
	Representative value	Variation	Representative value
Radon conc.[Bqm <sup>-3</sup> ]	Indoor 15.5 Outdoor 5	Indoor *1 Outdoor 4~7	Indoor 40 Outdoor 10
Equilibrium factor[—]	Indoor 0.4 Outdoor 0.6	Indoor 0.3~0.5 Outdoor 0.5~0.7	Indoor 0.4 Outdoor 0.8
Occupancy factor[—]	Indoor 0.9 Outdoor 0.1	Indoor 0.85~0.95 Outdoor 0.05~0.15	Indoor 0.8 Outdoor 0.2
Unattached fraction ratio of progeny[—]	0.03	Indoor 0.02~0.05 Outdoor 0.02~0.06	Indoor 0.1*3 Outdoor 0.02-0.03
Particle size distribution*2[ $\mu\text{m}, \sigma_g$ ]	0.2, 2.4	0.1~0.3, 2~3	0.2, Not reported

\*1estimated for each region

\*2AMD

\*3England, Norway 0.04~0.2

Germany 0.096 (smoking 0.006, outdoor 0.02)

UNSCEAR 1988 0.025

## 1. ラドン濃度

わが国における屋内ラドン濃度の大規模な全国調査はこれまでに二度実施されている。第1回目の調査は国連科学委員会の要請を受け、1985年から放射線医学総合研究所(NIRS)が実施したものである。ドイツのカールスルーエ原子力センターが開発したパッシブタイプの測定器が使用されたが、この測定器は換気率が高くラドン・トロンの弁別能が比較的低かったため、結果としてラドン濃度を過大評価している可能性があるとして指摘された。その後NIRSが独自にパッシブタイプのラドン・トロン弁別測定器を開発し、1992年から第2回目の調査を施した。この調査では、各都道府県に20軒、総計940軒が測定の対象として選定されており、このときに得られた全国平均ラドン濃度がTable 2に示された代表値 $15.5\text{Bqm}^{-3}$ である。この全国調査結果の10パーセンタイルは $6\text{Bqm}^{-3}$ 、90パーセンタイルは $27\text{Bqm}^{-3}$ であり、全体としては代表値から50%程度の変動があると考えてよい。また、データは家屋構造別にも整理されており、①プレハブ②木造③鉄筋鉄骨コンクリート④コンクリートブロックの順に高くなる濃度の傾向を示した。その他、線量の評価には屋内の濃度として職場環境の情報も必要となるが、残念ながらそのデータには限りがあるため<sup>7)</sup>、今後の研究成果を待つ必要がある。屋内濃度は換気やエアコンの動作状況によって大きく変動するため、季節間や昼夜間に大きな変動幅が予想される。この点にも線量評価の際には注意を要する。

屋外濃度については、現在日本分析センターが全国調査とデータの取り纏めを進めている。最終的な代表値の選定にはその報告を待つ必要があるが、Table 2には今までに公表されているいくつかの断片的な報告を基にした推定値 $5\text{Bqm}^{-3}$ を示した。

## 2. 所在係数

平成3年に総務庁統計局が実施した「国民生活時間調査報告」を基に、国民の平均的な屋内滞在時間、屋外滞在時間を評価している。この調査報告では、性別や年齢、職業、家族構成等も情報として与えられているが、ラドン濃度測定・線量評価最終報告書では所在係数を求めるのに国民全体をまとめて一括評価している。結論としては、屋内所在係数は88%(変動の幅は5~6%)、屋外所在係数は12%となり、代表値には屋内所在係数に0.9が選定された。

ただし、この評価の過程には注意すべき点があることも同時に報告されている。総務庁の調査には15歳以下のデータが反映されていない点や、睡眠や食事の場所の選定、通勤・通学の方法(地下鉄、バイク)による効果、家事・育児の場所の選定等にさらなる配慮が必要となる。

## 3. 非付着成分比

一般にフリー成分(fp)とも呼ばれるこのパラメータは、後に述べる平衡ファクタとの間に負の相関関係があることが知られている。現在まで、わが国の値としては極めて限られた測定例しか報告されていないが、それらを基にTable 2の代表値が決められている。屋内、屋外ともfpは0.03であり、それぞれの変動幅は50%程度である。

またfpの変動が、線量換算係数Kへ及ぼす影響を以下のように評価した。平衡ファクタ(=0.4)と個別濃度比を固定し、fpのみをその変動幅の範囲で大きくふらせたときの線量換算係数の変動を計算により評価する。その結果、fpが0.03から0.02に減少した場合、線量換算係数は4%減少した。また反対にfpが0.03から0.05に増加した場合は、線量換算係数は7%増加することがわかった。



#### 4. 粒径分布

粒径分布は呼吸器系に取り込まれた後のラドン娘核種の沈着部位と沈着量を支配するパラメータであり、周辺環境に浮遊するエアロゾルの粒径分布に大きく依存している。分布形には対数正規分布が仮定されている。このパラメータについてもわが国独自の測定例が少なく、特に数ヶ月に及ぶ長期的なデータが一件しか報告されていないことに不確定要素がある。現在のところ、この限られた情報を基に代表値が提案されており、屋内外とも幾何中央径 $0.2\mu\text{m}$ で幾何標準偏差 $\sigma_g$ は2.4、変動の幅はそれぞれ50%程度である。

粒径分布の線量換算係数 $K$ への寄与は以下の通りである。幾何中央径が $0.2\mu\text{m}$ から $0.1\mu\text{m}$ になった場合、換算係数は53%増加、逆に $0.3\mu\text{m}$ になった場合、換算係数は17%減少する。また、 $\sigma_g$ が2.4から2.0になった場合は9%減少、逆に3.0と大きくなった場合は14%増加する。

#### 5. 平衡ファクタ

ラドン濃度と平衡等価ラドン濃度との比として定義される平衡ファクタ $F$ は、ラドン濃度を基にして線量計算をする現手法には欠かせない重要なパラメータのひとつである。しかし、平衡等価ラドン濃度の長期的な(数ヶ月に及ぶ)平均値を現場で測定することは技術的あるいは実験的に困難であるため、わが国独自のデータとして参照できる報告が限られているのも事実である。しかし現在までに得られている断片的かつ短期的なデータを見比べると、それほど大きなばらつきはないため、年平均の代表値として屋内0.4(変動幅0.3~0.5)、屋外0.6(変動幅0.5~0.7)が提案されている。

一方、ラドン濃度の項で述べた通り、屋内濃度は換気やエアコンの動作状況によって大きく変動し、季節間や昼夜間に大きな変動幅が予想されるため、結果として平衡ファクタも時間的に大きく変動している可能性も否定できない。この変動が大きければ、年実効線量線量の評価値が変わることも予想されるため、さらなるデータの蓄積が期待される。

ここで関連する最新のデータとして、筆者による平衡ファクタ測定例を簡単に紹介する。

東京都江戸川区の荒川・中川流域の東側約500mに位置する3階建て鉄筋コンクリートアパートの3階(6畳、畳間、寝室)で、一年間平衡ファクタの連続評価を実施した。月別に整理した平衡ファクタの変動は、Fig. 1に示す通りである(横軸;月、縦軸;平衡ファクタ)。

窓の開閉やエアコンの動作による換気率の変化により平衡ファクタは大きく変動する。たとえば、窓を閉め切り換気率が極端に下がる季節は、濃度は高くなり平衡ファクタは大きくなる傾向である。また、窓を開放する機会が増え、エアコン等の利用時間が増える季節は濃度が下がり、特にエアコンの動作時間が長いときは、フィルトレーション効果が顕著に現れ、平衡ファクタが小さくなる。この

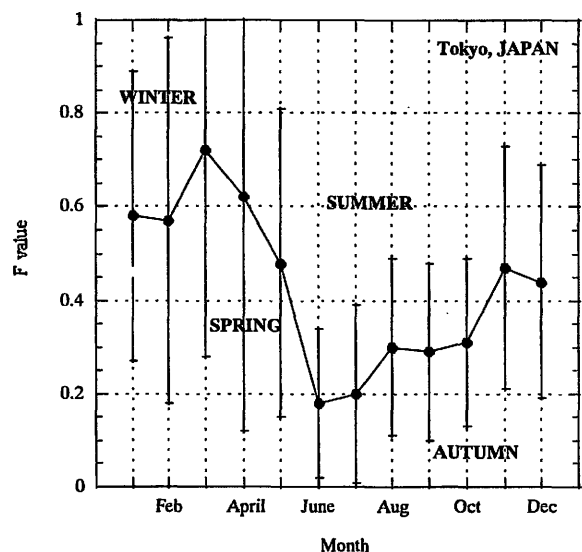


Fig. 1 Monthly variation of  $F$ .

ように同一の部屋においても、季節(生活の状況)によって平衡ファクタが大きく変動するため、各季節を同等に扱うことは線量評価の方法としては簡略化しすぎている可能性がある。たとえば、前述で紹介したラドン濃度の全国調査の結果は3ヶ月毎の濃度としてまとめられているので、季節に応じて、生活習慣を考慮した線量評価が必要かもしれない。参考までに、江戸川区での実測データを、従来どおりの年平均のパラメータで線量評価した場合と、3ヶ月平均のパラメータにより年積算した線量を比較すると Table 3 の通りとなった。

Table 3 Comparison between annual mean and seasonal mean on effective dose calculation.

	Radon Conc. [Bqm <sup>-3</sup> ]	F value	OF [ratio]	Conversion coefficient [mSv/ Bqhm <sup>-3</sup> ]	Effective Dose of the dwelling [ $\mu$ Svy <sup>-1</sup> ]
Annual mean	17.25 $\pm$ 1.89	0.43 $\pm$ 0.09	0.52	$9 \times 10^{-6}$	0.30 $\pm$ 0.02
I term mean	11.94 $\pm$ 4.01	0.43 $\pm$ 0.22	0.50		$0.25 \pm 0.01$
II term mean	13.22 $\pm$ 3.23	0.26 $\pm$ 0.21	0.53		
III term mean	26.20 $\pm$ 2.80	0.41 $\pm$ 0.11	0.53		
IV term mean	13.22 $\pm$ 4.78	0.47 $\pm$ 0.13	0.50		

OF: Occupancy factor

I: April-June II: July-September III: October-December IV: January-March

このアパートの居住で受ける年実効線量は、一年平均のパラメータを用いた計算によれば0.30mSv、3ヶ月ごとに計算して年積算する方法では0.25mSvとなり、平均期間の差によって若干の評価誤差が生じることがわかった。このような誤差が一般的な事象か否かは現時点では不明であるため、季節別の線量評価の必要性については、さらにデータの蓄積を待つ必要がある。

#### IV. おわりに

本稿では最新のわが国独自のパラメータを基に、ラドンによる年実効線量を概算した。また、線量計算に寄与するパラメータの変動の範囲や計算された線量が有する誤差についても概説した。十分なデータがそろっていない現時点では、パラメータの代表値を確定することは容易なことではない。しかし、実際にそれぞれのパラメータがある程度の変動幅を持っていることを考慮すれば、今回得られた実効線量の計算結果について大きくは誤っていないと結論できる。屋外ラドン濃度の全国調査結果やその他の新たな情報を得るとともに、さらに確度高い評価が可能となるであろう。

#### 参考文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and biological effects of ionizing radiation*, New York, United Nations (1982)
- 2) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources, biological effects and risks of*

- ionizing radiation*, New York, United Nations (1988)
- 3) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. *Sources and effects of ionizing radiation*, New York, United Nations (1993)
  - 4) ICRP, Publication 65, *Protection Against Radon-222 at Home and at Work*, *Annals of the ICRP*, 23, 2 (1993)
  - 5) 日本保健物理学会、ラドンの人体影響評価専門研究会報告書(1998)
  - 6) 放射線医学総合研究所ラドン濃度測定・線量評価委員会、ラドン濃度測定・線量評価最終報告書(1998)
  - 7) S. Tokonami *et al.* : Radon Measurements in Indoor Workplaces. *Radiation Protection Dosimetry*, 67, 143 (1996)

## 線量評価と生物学的パラメータ

石博 信人

放射線医学総合研究所 内部被ばく・防護研究部

### Bio-medical Parameters in Lung Dosimetry

Nobuhito ISHIGURE

National Institute of Radiological Sciences

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

#### Abstract

Study on dosimetry for radon exposure should primarily be targeted to get reliable prediction of risks for members of public. To achieve this goal, it should contribute to interpret epidemiological evidence of cancer induction among uranium miners through reasonable retrospective dose estimation for them. As well as field study to inspect characteristics of radon atmosphere, method to evaluate dose as "a quantity of cause", which is supported by bio-medical understanding should be investigated. In this report, relations of dose with bio-medical parameters such as dissolution half time of materials at airway surface into blood, types of target cells and their locations in airway wall and relative sensitivities for cancer induction among the regions of airways have been described. Dose estimation models in ICRP publication 66 have been applied. Though the ICRP has applied epidemiological data to risk estimation in the case of radon exposure, the use of the models in Publication 66 could be helpful to compare lung doses resulting from different parameters.

#### I. はじめに

線量は元々は物理量であり生物影響や健康リスクとは独立した概念である。しかし、健康リスクの予測を目的とした“線量評価”においては、生物影響の原因をよく表現した量としての線量に意味がある。本稿では、かかる“線量評価”の観点から物理学と生物学との間のしきりに小さな穴をあけ、物理の側から向こう側を覗いて見たい。こちらの視線に気づいて頂ければ幸いである。

#### II. 線量評価モデルと基準パラメータ

##### 1. 線量評価の手順

Fig. 1 にラドン子孫核種の吸入被曝の線量評価の手順を表すスキームの一例を示す。

まず、子孫核種の気道沈着率と気道からのクリアランスとから気道壁における一定期間の壊変数が求められる。その値に標的組織のエネルギー吸収割合を乗ずることにより、RaA、RaB、RaC各々の付着、

非付着各成分の線量換算係数が求められる。これらの換算係数に各子孫核種の濃度と呼吸量を乗じ、さらに各気道領域の感受性で荷重することによって、呼吸気道全体の等価線量が求められる。

たとえば、気道沈着には粒子径や粒子の形状、密度といったエアロゾルのキャラクタ、身体活動のレベル、呼吸習慣といった人間側の要因等々が影響する。その他、同図に示した種々のパラメータが線量に影響を与える。それらのうちの幾つかについては別の講演で述べられた。本稿においては、「線量評価と生物学的パラメータ」と題し、沈着粒子の気道壁における血中吸収特性、標的組織とその幾何学、および各気道領域の発がん感受性が線量に及ぼす影響について述べる。

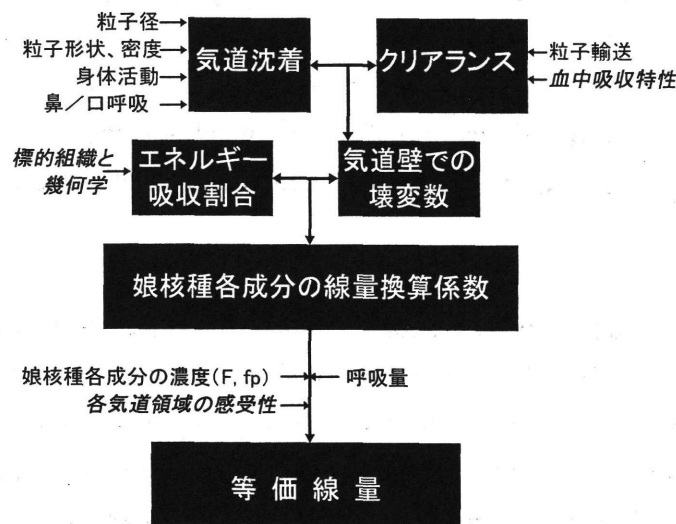


Fig. 1 Diagram showing procedures to calculate doses to lung by inhaled radon progenies.

## 2. 呼吸気道モデル

本研究における検討は、全面的にICRP Publication66(以下、ICRP Publ. 66)の呼吸気道モデル<sup>1)</sup>に基づいている。周知のように、ICRPはラドンのリスク評価にあたり、疫学的アプローチを採用することとし、新呼吸気道モデルのラドンへの適用を見送った経緯がある<sup>2)</sup>。しかし、ICRP Publ. 66の第356項に述べられているように、被ばく条件の差異が線量にどのように影響するかを評価するためには、当モデルがたいへん役立つとみなしており、筆者も同意見である。

## 3. 各パラメータの参照値

今回の計算に用いた各パラメータの参照値を以下に記す。

[ラドン雰囲気キャラクタ]

- ・平衡度係数(F) : 0.4
- ・非付着成分比(fp) : 0.01
- ・粒子径 : 0.001  $\mu\text{m}$  (非付着成分)      0.25  $\mu\text{m}$  (付着成分)
- ・密度 : 1  $\text{g/cm}^3$  (非付着成分)      3 $\text{g/cm}^3$  (付着成分)
- ・形状係数 : 1 (非付着成分)      1.5 (付着成分)
- ・化学形 : タイプF (非付着成分)      タイプF,M (付着成分)

[被検者]

- ・ ICRP Publ. 66記載の作業者
  - ・ 身体活動時間の割り振りおよび呼吸率(平均呼吸率：1.7m<sup>3</sup>/h)
- 強い身体活動(3.0m<sup>3</sup>/h, 170×(1/8)h)+軽い身体活動(1.5m<sup>3</sup>/h, 170×(7/8)h)

#### 4. 子孫核種各成分の構成比と線量

特定の平衡度係数や非付着成分比を実現する子孫核種の構成比の候補は無数にある。線量計算は実際上特定の構成比に対して行われる。従って、得られた計算結果の代表性を事前に検討しておく必要がある。そこで、本題に入る前に、F及びfpの特定の値に対し、線量は子孫核種の構成比にどの程度影響されるかを検討した。

子孫核種の構成比は無数にあるとは言え、エアロゾル粒子への付着速度や、床・壁等への沈着速度、換気率、リコイルによる脱着率等によって規定される。ここでは、子孫核種の構成比を規定するこれら各パラメータの幅と計算刻み幅を、種々文献を参考にして以下のようにそれぞれ設定した。そして、特定のFとfpとを実現する各パラメータの値と構成比とを全て選び出し、線量の最大値と最小値とを計算した。

[子孫核種の成分比を支配する各パラメータ値の幅と計算刻み幅]

- ・ 非付着成分の大気中エアロゾル粒子への付着速度  
10h<sup>-1</sup>～200h<sup>-1</sup>の間を1h<sup>-1</sup>の刻み幅
- ・ 非付着成分の床、壁等への沈着速度  
36h<sup>-1</sup>～450h<sup>-1</sup>の間を3.6h<sup>-1</sup>の刻み幅
- ・ 付着成分の床、壁等への沈着速度  
付着成分の沈着速度の1/200～1/50の間を等比的に20段階
- ・ 換気率  
0.1h<sup>-1</sup>～1h<sup>-1</sup>を0.01h<sup>-1</sup>の刻み
- ・ リコイルによる粒子からの脱着率  
0.5～0.8の間を0.05の刻み幅

なお、テストしたケースは、296,380,812通り(=191×116×21×91×7)となる。

Fig. 2は、平衡度係数を0.4と固定したとき、種々の付着速度に対し、非付着成分比fpが図中に示した値をとる“場合の数”(頻度)を示したものである。この図から、たとえばfpが0.03となる場合は、付着速度がおおよそ70h<sup>-1</sup>から200h<sup>-1</sup>の間であり、140h<sup>-1</sup>の時最も実現しやすい、あるいは、付着速度が70h<sup>-1</sup>以上では、fpが0.07より大きい値をとる場合はあまり無いであろう、あるいは逆に付着速度が110h<sup>-1</sup>以下では、fpが0.02より小さい値をとる場合はありそうもない等々が推定される。

線量の最大値と最小値に関する計算結果をFig. 3に示す。付着成分、比付着成分ともにタイプFの場合である。横軸に非付着成分比、縦軸には実効線量を平衡度係数で除した値を示した。

この図より、平衡度係数が0.2から0.6の間であれば、特定の非付着成分比fpを実現する全ての子孫核種の組み合わせに対して、平衡等価濃度当たりの線量の幅は最大でも5.5%程度でありかなり小さいことが分かる。平衡度係数を0.4と固定した場合には、この幅はさらに小さくなり1.7%程度となる。なお、付着成分がタイプMの場合、最大値と最小値とはほとんど差が無い。

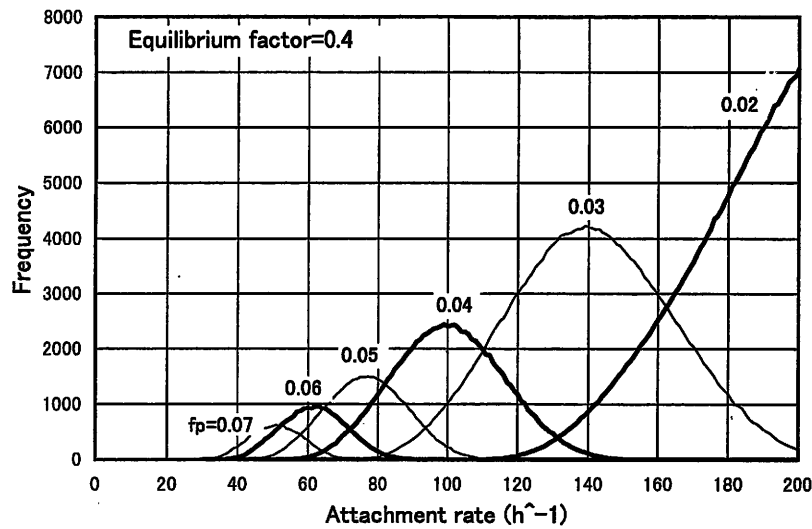


Fig. 2 Frequency distribution of unattached fractions ( $f_p$ ) for different attachment rates of radon progeny to ambient aerosols.

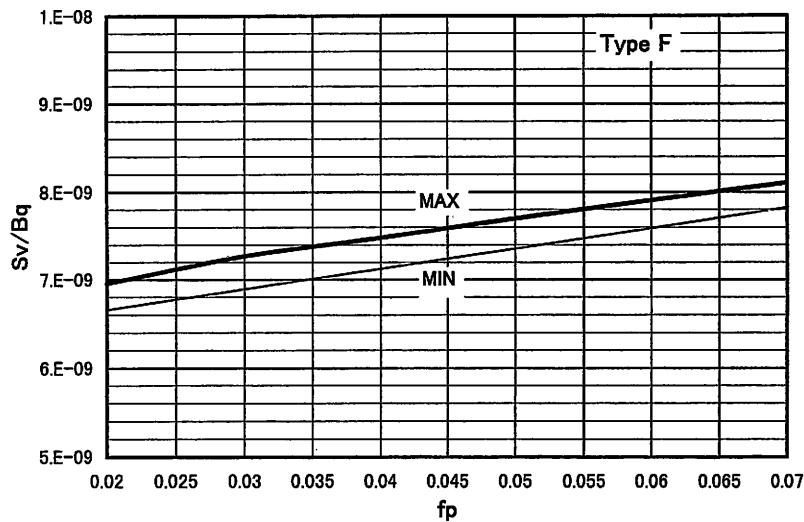


Fig. 3 Maximum and minimum of doses per equilibrium factor for various constitutions of radon progeny.

以上より、特定の子孫核種の構成比のみを対象としても、得られる結果の一般性は充分保証され得ると考えられる。

### Ⅲ. ラドン子孫核種の血液吸収速度と線量換算係数

#### 1. クリアランスモデル

Fig. 4 は、ICRP Publ. 66の気道クリアランスを表すコンパートメントモデルの概略図である。下向きの矢印が血中へ吸収される経路、上向きおよび斜め上向きの矢印が胃腸管へ向かっての粘液繊毛運動による粒子の輸送経路を表している。気道壁に沈着した子孫核種のクリアランスの速さは、核種の気道壁における滞留時間、つまり気道壁で $\alpha$ 壊変が起こるか否かに直接関するパラメータとして重要であることは容易に理解できる。

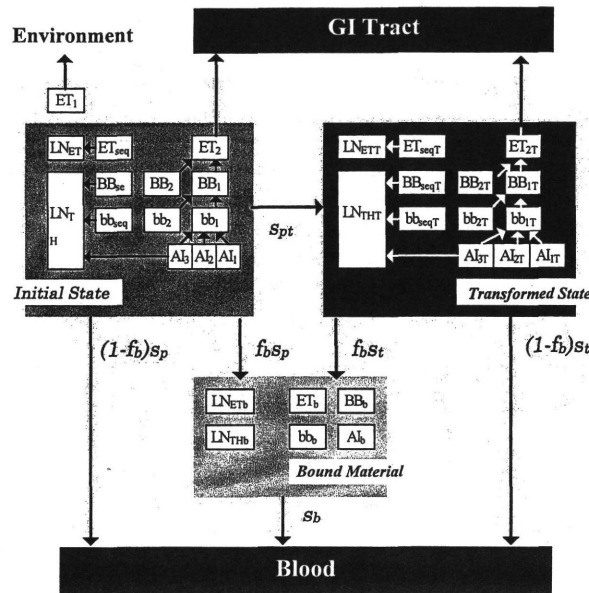


Fig. 4 Comprehensive compartment model of particle clearance at airway surface recommended by the ICRP.

## 2. 血液吸収特性

従来、たとえばICRP.Publ. 32<sup>3)</sup>で述べられているように、子孫核種の物理学的半減期は、最も長いRaB (<sup>214</sup>Pb)でも26.8分と短いため、気道クリアランスの影響は考慮されていない。しかしながら、血液吸収速度は、気道粘膜において子孫核種がキャリアエアロゾルから脱着する割合やその速さ、またキャリアエアロゾル自身の溶解性などに関連しており、その実相はかなり複雑と考えねばならず、一概にこの効果を見逃してよいかどうか、たとえば、タイプFの物質の気道壁における生物学的半減期は9.5分であり、物理学的半減期と拮抗する。以上のことから従来の、 $\alpha$ 線エネルギーの全てが気道壁に与えられるという仮定が妥当か否かということは検討に充分値する問題であろうと考えられる。

さて、そのラドン子孫核種の血中吸収速度としては一体どのような値と考えたらよいのか、あるいは、その値がキャリアエアロゾルの種類によって大きく異なるのか異なるのか、また、そのキャリアエアロゾルの種類は環境によってどのように異なるのかなど、必ずしも多くのデータがあるとは言えないのが現状である。ICRPにおいては、Publ. 32の第11項で、子孫核種のポテンシャルアルファエネルギーのほとんどは呼吸器に吸収されるであろうと述べておりながら一方で、同じPubl. 32のTable 1には、子孫核種の吸入のクラスをDと仮定した計算結果を示している。このクラスDの化合物は、Publ. 66では、新しい分類法のタイプFに対応させると述べており、このタイプFの化合物のクリアランスの半減期は前述のように9.5分と仮定されているので、ポテンシャルアルファエネルギーの大部分が呼吸器に吸収されるとはとて言えない。

## 3. 線量換算係数の血液吸収速度依存性

本稿では、血液吸収の半減期を色々に変え、ICRPの呼吸気道モデルを用いて、非付着成分比0.01、平衡度係数0.4、重労働1時間、軽労働7時間という鉱山労働を想定して線量を計算した。その結果をFig. 5



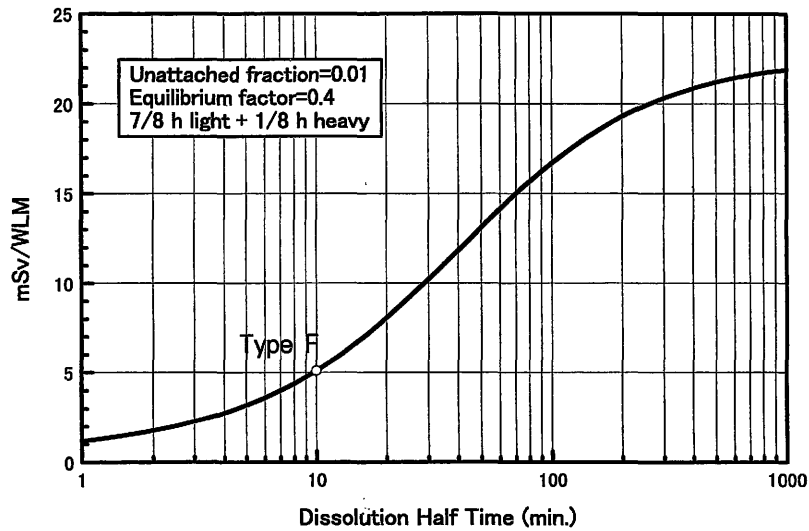


Fig. 5 Dependence of doses on half times at which materials at airway surface are absorbed unto blood.

に示す。図中○印はタイプFの場合である。

同図より、実効線量は血液吸収速度に非常に大きく影響されることは明らかである。

数値で表すと以下ようになる。

- ・非付着成分、付着成分ともにタイプF : 5.1mSv/WLM
- ・非付着成分タイプF、付着成分タイプM : 20.9mSv/WLM
- ・非付着成分、付着成分ともにタイプM : 21.8mSv/WLM

なお、これら筆者らの値はNRPBのBirchallら<sup>4)</sup>が以前に報告した計算結果よりやや大きい値であるが、この違いは、付着成分の密度や形状係数あるいは身体活動レベル、呼吸量などに関する仮定が筆者らと異なっていることに起因するものと考えられる。彼らと同じ仮定で計算した場合、筆者らも同様の結果が得られている。

以上より、ラドン子孫核種による線量を正確に評価するという観点から、ラドン子孫核種の血液吸収特性は今後さらなる検討が加えられる必要があり、そのためには、放射線物理学、表面物理学、エアロゾル工学、溶液化学、生理学等種々の専門的知識・手法の集約が望まれる。

#### IV. 発がん感受性細胞の種類と線量

##### 1. 組織平均線量の問題点

組織平均線量が生物影響の原因量のよい近似と見なせるのは、組織を構成する細胞の線量が均一の時か、あるいは、細胞の感受性が一様でかつ線量-効果関係に比例性が成立する時である。ところで、気管支の上皮組織は、粘液・漿液を分泌する細胞、繊毛をそなえた細胞、これらの細胞の基にある基底細胞など数種の異なる上皮細胞により構成されている。肺腫瘍の組織発生に関するこれまでの研究によれば、肺腫瘍はこれらの上皮細胞の全てからではなく、いくつかの特定の細胞種から発生する。この事実は、各細胞種の放射線感受性が一様ではないことを意味している。従って、沈着粒子がラドン子孫核種のような $\alpha$ 放射体の場合には、付与されるエネルギーの空間分布が著しく不均等であるため、少なくと

も放射線生物学の観点からは、気道壁全体を対象とした平均線量は有効とはならない。

## 2. 気管支領域の線量を計算すべき標的細胞

ICRP Publ. 66によれば、胸郭領域の腫瘍がどの細胞から発生するかについて、組織学者の間で現在も議論が続いているとのことである。

Gazdarら<sup>5)</sup>、McDowellら<sup>6)</sup>、Johsonら<sup>7)</sup>は、それぞれに、分泌細胞の方が基底細胞よりも分裂増殖能が高いことを観察した。Masseは、 $\alpha$ 放射体に曝露されたラットの気管支に発生した扁平上皮化が基底細胞以外の全ての種類の細胞から構成されていることを観察し、分泌細胞が前駆細胞であることを示唆した<sup>8)</sup>。また、Jettenら<sup>9)</sup>、Plopperら<sup>10)</sup>の観察は、基底細胞は中間細胞に由来し、真の幹細胞ではないことを示唆している。

しかしこれらの見解と矛盾する観察や推察も見られる。たとえば、Fordらは、ラットの気管上皮から採取された基底細胞と分泌細胞との分裂増殖能の比較から、基底細胞が気管上皮の幹細胞の有力候補であるとの見解を示している<sup>11)</sup>。また、Spencerによると、基底細胞はクルチッキー細胞および中間(未分化)細胞の前駆細胞であり、この細胞から燕麦細胞型の小細胞癌が発生する可能性があり、また、分泌細胞は、化を経て扁平上皮癌になる可能性を考えている<sup>12)</sup>。

このように、基底細胞が腫瘍形成過程において、正確な機序は不明にしても一定の役割を果たしているという観察がある。しかしそのことによって分泌細胞の多機能性の前駆細胞としての中心的役割が否定されるわけではなく、現在は、これら両者の細胞をともに発がん感受性細胞と見なすべきであるとされている。

## 3. 気道壁の幾何学モデル

本稿で計算に用いた気管支領域の気道壁の幾何学モデルをFig. 6に示す。これは、ICRP Publ. 66のモデルと同じである。表面に $5\mu\text{m}$ の粘液層、その下が $6\mu\text{m}$ の繊毛層、さらにその下 $10\mu\text{m}$ の深さから厚さ $30\mu\text{m}$ の分泌細胞の核の分布する層、その下に分泌細胞に食い込む形で基底細胞の核が分布する層があり、分泌細胞の層と、基底細胞の層について線量を計算する。

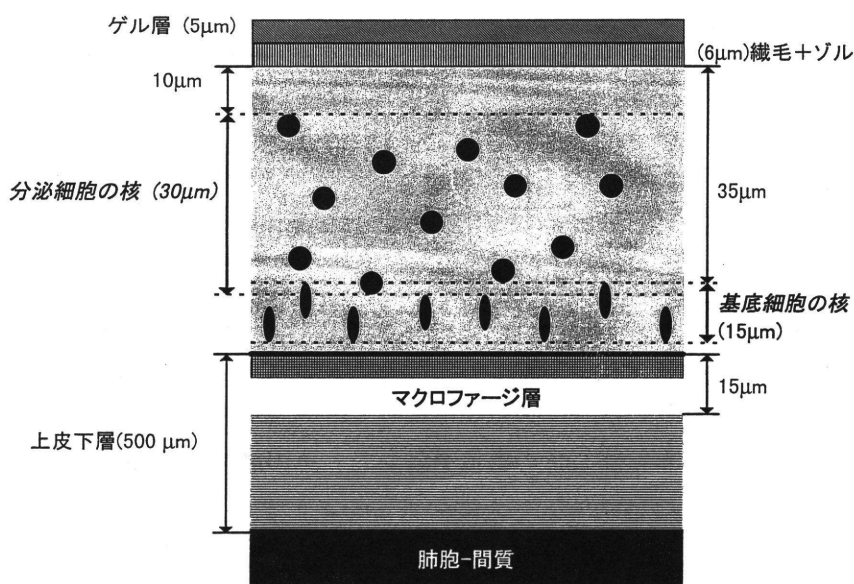


Fig. 6 Model of target cell nuclei and the geometry of the wall of bronchus.

Fig. 7は、細気管支領域の気道壁の幾何学モデルであり、分泌細胞の層について線量を計算する。

その他の領域も含め全ての領域の発がん感受性細胞の種類と、その核の分布する深さをTable 1にまとめた。なお、深さには粘液繊毛層が含まれていない。

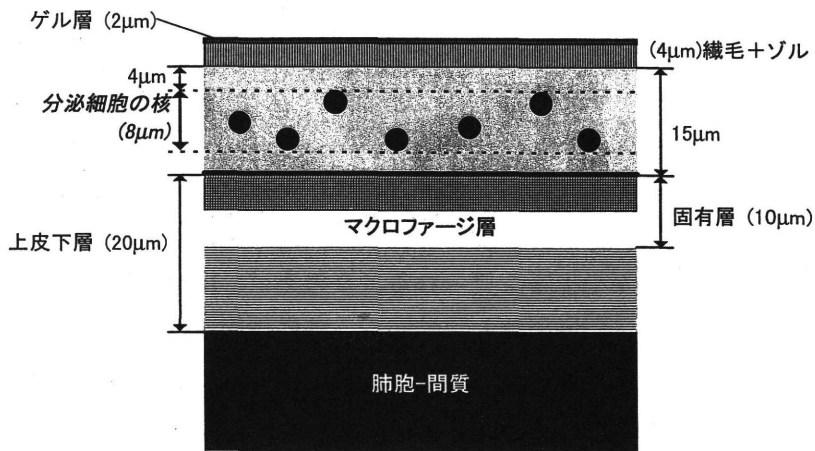


Fig. 7 Model of target cell nuclei and the geometry of the wall of bronchioles.

Table 1 Target cells of human respiratory tracts.

領域	細胞種	深さ、分布
肺胞・間質領域	分泌(Clara)細胞	一様
	Ⅱ型上皮細胞	一様
細気管支領域	分泌(Clara)細胞	4-12 µm
気管支領域	分泌細胞	10-40 µm
胸郭外領域 2	基底細胞	40-50 µm
	基底細胞	35-50 µm
胸郭外領域 1	基底細胞	40-50 µm

#### 4. 発がん感受性細胞の仮定と肺の線量

感受性細胞を分泌細胞のみとした時、逆に基底細胞のみとした時、および、この両者とした時、それぞれの仮定により肺の線量がどの程度異なるかを検討した。その結果をTable 2に示す。

まず、肺胞領域の感受性細胞の線量、これは肺胞領域の全組織の平均線量と同じであるが、同表に示したように他の領域の線量より一桁以上小さい点に注意されたい。また、気管支領域の基底細胞の線量は分泌細胞の40%になる。

これら個々の標的細胞の線量の値から肺全体の線量を計算し、その結果をTable 2の一番下の欄に示した。分泌細胞、基底細胞の両者が感受性細胞とした時の線量を1とすると、基底細胞のみとした場合は0.53、一方、分泌細胞のみとした場合は1.18となる。すなわち、発がん感受性細胞に関する仮定により、線量は係数2以上変化をすること示している。

Table 2 Effects of lung doses on assumptions for types of target cells in respiratory tracts.

領域	感受性細胞	Sv/Bq (EEC)	デトリメント分配係数		
			ICRP 66	基底細胞のみ	分泌細胞のみ
肺胞・間質領域	Ⅱ型上皮	1.09E-8	0.333	0.333	0.333
細気管支領域	分泌細胞	2.53E-7	0.333	0	0.333
気管支領域	分泌細胞	2.84E-7	0.167	0	0.333
	基底細胞	1.16E-7	0.167	0.666	0
胸郭内領域の等価線量, Sv/Bq			1.54E-7	8.09E-8	1.82E-7
			(1.00)	(0.53)	(1.18)

このように感受性細胞の同定、その空間分布はヒトにおける線量評価および健康リスクの評価に強く影響することが示され、直接ラドンとは無縁のように受け止められている形態計量学、実験病理学等も、その線量評価に果たす役割は大きいものと考えられる。

#### V. 各気道領域の放射線感受性と線量

IV章で述べた気道壁の幾何学モデルに基づき気管支、細気管支、肺胞それぞれの領域の標的細胞の層について線量が計算される。では、肺全体としての線量は、これら領域ごとの線量からどのように計算されるのであろうか。ICRP Publ. 66のモデルでは、放射線感受性がこれら気道領域により異なる可能性を考慮するため、各気道領域の線量に、それぞれの相対的感受性に応じた比率(以下、デトリメント分配荷重係数と記す)を乗じた上で、それらを合計することによって肺全体としての線量を求めることとされている。一方、ICRP Publ. 32では、気管支の基底細胞層の線量と、肺胞全体の平均線量に組織荷重係数が等分配されている。

ここで重要な問題は、この荷重係数を具体的に定めるための基礎データと基本的な方針である。この問題に関し、ICRPでも種々の論議が交わされたものと推察される。Table 3に示すようにドラフトによってその値が変遷してきたからである。

デトリメント分配荷重係数として、Table 3に示した3種類の組み合わせの各々を用いた時、肺全体の線量がどの程度変動するかを計算した。その結果をTable 4に示す。

Table 3 Partition of detriment among respiratory tract tissues.

領域	ドラフト		
	Apr./91	Oct./92	final
肺胞・間質領域	0.05	0.1	0.333
細気管支領域	0.15	0.3	0.333
気管支領域	0.8	0.6	0.333

Table 4 Effects of lung doses on partition of detriment among respiratory tract tissues.

領域	感受性細胞	Sv/Bq (EEC)	デトリメント分配係数		
			ICRP 66	Oct./92	Apr./91
肺胞・間質領域	Ⅱ型上皮	1.09E-8	0.333	0.1	0.05
細気管支領域	分泌細胞	2.53E-7	0.333	0.3	0.15
気管支領域	分泌細胞	2.84E-7	0.167	0.3	0.4
	基底細胞	1.16E-7	0.167	0.3	0.4
胸郭内領域の等価線量 (Sv/Bq)			1.54E-7 (1.00)	1.97E-7 (1.28)	1.98E-7 (1.29)

3つの領域に等分配した場合を1とすると、(0.1、0.3、0.6)の組み合わせでは、1.28倍、(0.05、0.15、0.8)では1.29倍となった。また、ICRP Publ. 32のように気管支と肺胞に組織荷重係数を等分配した場合は、0.74倍となる。計算前の予想ほどは大きな開きを生じたとはいえない。しかし、最大で係数1.7前後の差が生じ、本章で議論した相対感受性の定量的評価に関する課題もやはり重要であることは否定できないと考えられる。

## VI. むすび

以上述べたように、ラドン娘核種による線量、ひいては健康リスクをより高い信頼度で評価するためには、沈着物質の呼吸気道における代謝挙動、放射線感受性細胞の同定など、医学・生物学の知識や手法を取り入れた研究が今後重要になるものと思われる。ここでは触れなかったが、当然のことながら、 $\alpha$ 線に対する生物の反応、とりわけ実効線量の評価に比例的に反映される $\alpha$ 線のRBEを、高い信頼度で定量評価することは必要である。ラドン娘核種を $\alpha$ 線源として利用し、吸入投与という曝露手法を用いて、“ラドン”という特定物質にとどまらず“ $\alpha$ 線”という特定放射線の生物影響における特質を明らかにするという視点に立ち、放射線生物学上の色々な疑問に答え得るように実験プロトコルを設定して進められるならば、ラドン吸入実験は、線量および健康リスクの評価に大きい役割を果たし得るであろう。

## 参考文献

- 1) ICRP : ICRP Publication 66, Ann. ICRP, 24 (1-3), Pergamon Press, Oxford (1994)
- 2) ICRP : ICRP Publication 65, Ann. ICRP, 23 (2), Pergamon Press, Oxford (1993)
- 3) ICRP : ICRP Publication 32, Ann. ICRP, 6 (1), Pergamon Press, Oxford (1981)
- 4) A. Birchall and A. C. James : *Radiat. Prot. Dosim.*, **53**(1-4), 133-140 (1994)
- 5) A. F. Gazdar and R. I. Linnoila : *Semin. Oncol.*, **15**, 215-225 (1988)
- 6) McDowell *et al.* : *Am. J. Pathol.*, **129**, 511-522 (1987)
- 7) N. F. Johnson and A. F. Hubbs : *Am. J. Respir. Cell Mol. Biol.*, **3**, 579-585 (1990)
- 8) R. Masse : *Proc. 19th Ann. Hanford Life Sciences Symposium* (Eds. C. L. Sanders *et al.*), CONF-791002, 498-521 (1980)
- 9) A. M. Jetten, S. H. Bernacki and E. E. Floyd : *Cell Growth & Differ. B.*, **3**, 549 (1992)

- 10) C. G. Plopper, J. L. Alley and A. J. Weir : *Am. J. Anat.*, **175**, 59-71 (1986)
- 11) J. R. Ford and M. Terzaghi-Howe : *Exp. Cell Res.*, **198**, 69-77 (1992)
- 12) H. Spencer : "*Pathology of the Lung. 4th Edition*", Pergamon Press, Oxford (1985)

## Radon-induced Lung Cancers in Rats : Influence of Dose-rate and of Combined Exposure to Tobacco Smoke and Other Agents

Georges MONCHAUX and Jean-Paul MORLIER

*CEA-Département de Radiobiologie et Radiopathologie, Laboratoire de Cancérologie Expérimentale  
BP 6, F-92265 Fontenay aux Roses Cedex, France*

### Abstract

Experimental animal studies were used in addition to epidemiological studies to investigate the effects of exposure, exposure rate and other factors in predicting risks resulting from human exposures. The advantage of animal data is that animal experiments are generally conducted under carefully controlled conditions and that exposure and exposure rate can be estimated more accurately. A dose-effect relationship was established for cumulative exposures varying from  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25 WLM) up to  $21.6 \text{ J h m}^{-3}$  (6,000 WLM) which was very similar for medium and high cumulative exposures to that observed in uranium miners. A trend towards increasing tumour risk with decreased exposure rate was observed in rats exposed at cumulative exposures higher than  $0.72 \text{ J h m}^{-3}$  (200 WLM). In contrast, the results obtained at low cumulative exposure, comparable to domestic indoor exposures showed no evidence of an inverse exposure-rate effect. Chronic radon exposure at  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25 WLM), protracted over a 18 months period, at a potential alpha energy concentration (PAEC) of  $0.042 \text{ mJ m}^{-3}$  (2 WL), resulted in fewer lung carcinoma in rats than a similar cumulative exposure protracted over 4 to 6 months at  $2.1 \text{ mJ m}^{-3}$  (100 WL). Moreover, the preliminary results of a new series of experiments, carried out to investigate the influence of exposure rate on lung cancer induction, indicate that at relatively low cumulative exposures comparable to lifetime exposures in high-radon houses or current underground mining exposures of about  $0.36 \text{ J h m}^{-3}$  (100 WLM), the risk of lung cancer in rats decreases with decreasing PAEC, i.e., with exposure rate. These data suggest that in terms of risk of induction of lung cancer, there is a complex interplay between cumulative exposure and exposure rate, resulting in an optimal combination of these two parameters.

Moreover, the effects in rats of combined exposure to radon and other environmental or industrial airborne pollutants, such as tobacco smoke, mineral fibres, diesel exhausts, minerals from metallic mine ores, ozone and chlorinated compounds, that may act synergistically with radon exposure, are reviewed in relation with the possibility of combined exposure for workers in different industries.

### Introduction

Experimental animal studies were used in addition to epidemiological studies to investigate the

effects of exposure, exposure rate and other factors in predicting risks resulting from human exposures both in the home and in the workplace. The advantage of animal data is that animal experiments are generally conducted under carefully controlled conditions and that exposure and exposure rate can be estimated more accurately. Radon animal data, obtained primarily in adult rats, were provided mainly by the Pacific Northwest National Laboratory (PNNL, formerly PNL) in USA and our laboratory in France<sup>1)</sup>. This paper summarises the main data and the results of ongoing experiments on the influence of exposure rate on lung cancer induction.

Moreover, as combined exposure to various carcinogenic agents is common in some mine environments, the potential co-carcinogenic effects of industrial ad/or environmental airborne pollutants, such as tobacco smoke, mineral fibres, diesel exhausts, minerals from metallic mine ores, ozone or chlorinated compounds, acting in combination with radon exposure, were studied in rats. This paper summarises the results of these studies in relation with the possibility of combined exposure for workers in different industries.

### **Effects of exposure to radon and progeny**

It has been previously demonstrated that exposure to radon and its progeny induces lung cancers in rats<sup>2, 3)</sup>. Although the oat-cell carcinomas that are common in humans were not found in rats, other histological types of lung cancers, especially squamous cell carcinomas and primitive lung adenocarcinomas, were very similar to those observed in humans<sup>4, 5)</sup>. Unlike human lung tumours, which are of bronchial origin, lung tumours in rats are originating from terminal and respiratory bronchioles and the deep lung, or even from the bronchial tree cells.

An excess risk of lung cancer was observed in rats at cumulative exposure as low as  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM) performed at relatively high potential alpha energy concentration (PAEC) of  $2.1 \text{ mJ m}^{-3}$  (100WL)<sup>6)</sup>. A dose-effect relationship was established showing that the incidence of lung carcinomas in rats exposed to radon/radon progeny increased with cumulative exposure (Figure 1). The incidence of lung carcinomas increased for cumulative exposures varying from  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM) to  $10.8 \text{ J h m}^{-3}$  (3,000WLM), and decreased thereafter. For medium and high cumulative exposures, this pattern was very similar to that observed in uranium miners<sup>3)</sup>.

### ***Influence of exposure rate***

Despite the fact that significant cumulative exposures at typical residential exposure rates of about  $1.8 \cdot 10^{-5} \text{ J h m}^{-3}$  per week, approximately 0.005 WLM per week, cannot be tested in a shortlived species like the rat, the rat model is valuable for reducing the uncertainties that exist in human data, particularly in regard to the exposure-rate effect. In PNL lifespan animal experiments, a trend towards increasing tumour risk with decreased exposure rate has been reported in Wistar rats exposed at  $2.1 \text{ mJ m}^{-3}$  (100WL) and  $21 \text{ mJ m}^{-3}$  (1,000WL) and cumulative exposures varying from  $2.3 \text{ J h m}^{-3}$  (640WLM) up to  $18.4 \text{ J h m}^{-3}$  (5,120WLM)<sup>7)</sup>.



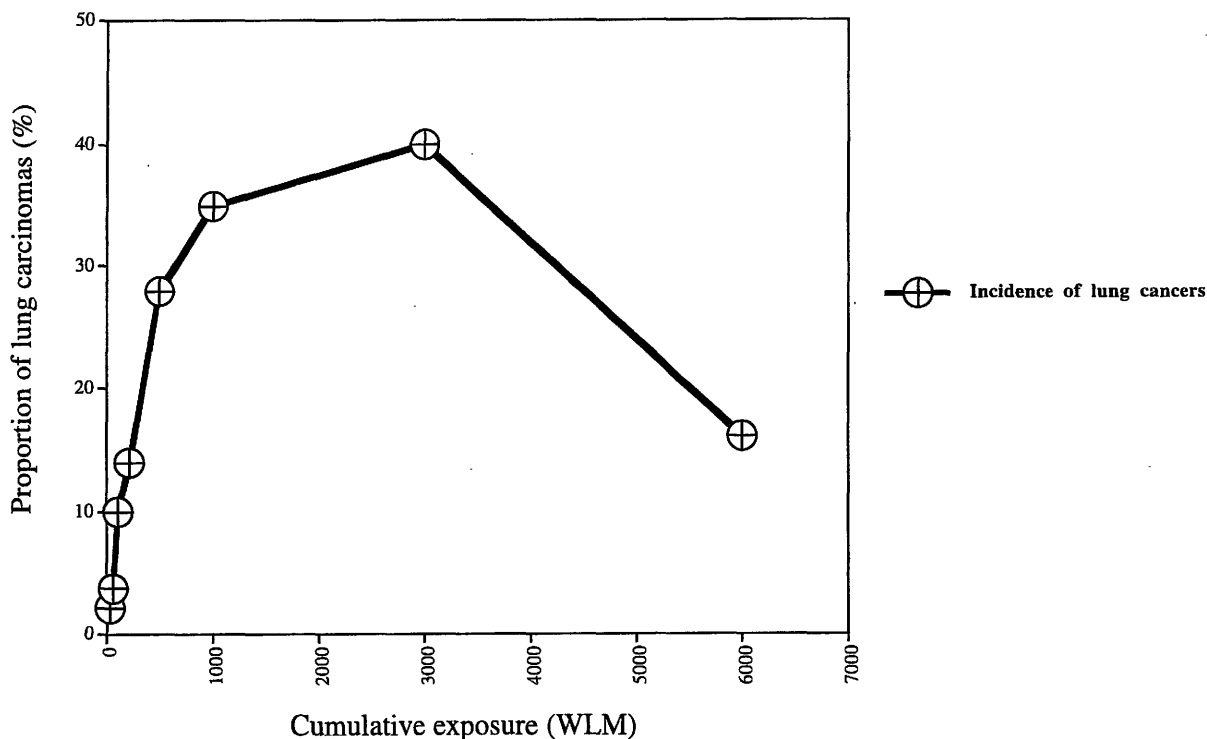


Fig. 1 Dose-effect relationship observed in rats exposed to radon/radon progeny.

A similar trend was observed in our experiments in Sprague-Dawley rats exposed at  $3.6 \text{ J h m}^{-3}$  (1,000WLM) cumulative exposure up to  $21.6 \text{ J h m}^{-3}$  (6,000WLM) and high exposure rates varying from  $0.25 \text{ mJ h m}^{-3}$  (70WLM per week) to  $0.9 \text{ mJ m}^{-3}$  (250WLM per week)<sup>6</sup>. In contrast, the results obtained at low cumulative exposure, comparable to domestic indoor exposures showed no evidence of an inverse exposure-rate effect. Indeed, chronic radon exposure at  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM), protracted over a 18 months period at an alpha potential energy of  $0.042 \text{ mJ m}^{-3}$  (2WL), resulted in fewer lung carcinomas in rats than a similar cumulative exposure delivered over a 4 to 6 months period at a potential alpha energy of  $2.1 \text{ mJ m}^{-3}$  (100WL)<sup>8</sup>. The lung cancer incidence in rats exposed at low exposure rate (0.60%) was slightly lower than that in control animals (0.63%).

Under the Fourth CEC Research and Development Framework Programme, a new series of experiments was carried out to investigate specifically the influence of exposure rate on lung cancer induction in rats. These studies were conducted at relatively low cumulative exposure comparable to lifetime exposures in high-radon houses or current underground mining exposures of about  $0.36 \text{ J h m}^{-3}$  (100 WLM). The animal experiments were conducted concomitantly both at CEA (France) and AEA-Technology, plc (Harwell, UK). Where possible, the experimental conditions used at the two laboratories were similar, for example both groups used rats of the same strain, sex and age. In addition, the metrology of the radon exposure atmospheres and the reporting of pathology were standard-

ised between the two groups. The principal differences between the exposure conditions were that exposures were conducted during the working day at CEA without introduction of carrier aerosol and continuously (24 hours per day) using Carnauba wax as carrier aerosol at Harwell. The preliminary results of the ongoing experiments conducted at CEA are reported below.

### Radon exposure

Exposures were designed to investigate the role of PAEC and protraction of exposure which have been demonstrated to be the main important parameters for lung cancer induction in experimental animals. All the CEA animal exposures were performed at the CEA-University of Limoges radon inhalation facility located in Razès (France). Radon gas emanation from uranium ore was introduced into the 10 m<sup>3</sup> stainless steel chambers through a dilution system and the radon progeny were attached to the ambient aerosol (natural aerosol). The duration of exposure sessions was 6 hours. Exposures were conducted under static conditions without air renewal in the chambers. During the exposures, monitoring of the potential alpha energy concentration (PAEC), equilibrium factor F, unattached fraction  $f_p$ , radon progeny concentrations and environmental conditions were performed using recognised methods agreed between AEA and CEA in previous metrology inter-comparison exercises<sup>9)</sup>. Inhalation parameters of the different exposure groups are summarised in Table 1.

Table 1 Distribution of rats and characteristics of exposure to radon/radon progeny between the different experimental groups.

Experimental groups	Number of rats	Age at start of exposure (months)	Cumulative exposure		PAEC		F	$f_p$
			mJ h m <sup>-3</sup>	WLM	mJ m <sup>-3</sup>	WL		
Gr. 0 (RnCt) <sup>(a)</sup>	120	-	≈ 0.9	≈ 0.25	≈ 0.0004	≈ 0.002	-	-
Gr. 1 (RnPC) <sup>(b)</sup>	240	3	378	105	3.91 ± 1.25	188 ± 60	0.14 ± 0.03	0.25 ± 0.04
Gr. 2 (RnFr) <sup>(c)</sup>	240	3	385	107	3.05 ± 0.95	147 ± 46	0.20 ± 0.04	0.18 ± 0.06
Gr. 3 (RnD3) <sup>(d)</sup>	240	3	361	100	1.21 ± 0.40	58.3 ± 19.4	0.09 ± 0.03	0.33 ± 0.03
Gr. 4 (RnD12) <sup>(e)</sup>	240	2.5	358	100	0.27 ± 0.01	13 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.30 ± 0.03
Gr. 5 (RnD6) <sup>(f)</sup>	211	3	151	42	0.37 ± 0.16	18.0 ± 8.0	0.14 ± 0.04	0.25 ± 0.06

- a.* Group 0 : untreated controls  
*b.* Group 1 : exposed to radon from 29-04-1996 to 28-05-1996  
*c.* Group 2 : exposed to radon from 11-07-1996 to 02-10-1996  
*d.* Group 3 : exposed to radon from 03-03-1997 to 03-06-1997  
*e.* Group 4 : exposed to radon from 01-12-1997 to 11-12-1998  
*f.* Group 5 : exposed to radon from 29-04-1996 to 14-10-1996

In these studies, experiments were performed at a cumulative exposure of 360 mJ h m<sup>-3</sup> (100WLM) and PAEC varying from 0.22 mJ m<sup>-3</sup> (12-13WL) to 3.15 mJ m<sup>-3</sup> (150WL). Group 0 (RnCt) was an unexposed control group. Group 1 (RnPC) was used as a positive control group and was exposed to

radon and progeny at a cumulative exposure of about  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM) and high PAEC of  $3.15 \text{ mJ m}^{-3}$  (150 WL) which was expected to induce a lung cancer incidence of about 10%. Group 2 (RnFr) was exposed to a similar cumulative exposure of  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM) and high PAEC as Group 1, but the exposure of this group was protracted over a 3 months period, at 1 or 2 sessions per week, instead of 5 sessions per week delivered for 4 weeks in Group 1. Group 3 (RnD3) was exposed to a similar cumulative radon exposure of  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM), but at a lower PAEC of about  $1.2 \text{ mJ m}^{-3}$  (50WL). Group 4 (RnD12) was exposed to a similar cumulative radon exposure of  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM), but at a lower PAEC of about  $0.27 \text{ mJ m}^{-3}$  (13WL). Group 5 (RnD6) was initially scheduled to be exposed at the same cumulative exposure of  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM) as other groups, but at lower PAEC of about  $0.3 \text{ mJ m}^{-3}$  (15WL). In fact, due to works for renewal and refurbishment of the radon inhalation facility, the exposure of this group was stopped at a cumulative exposure of  $151 \text{ mJ h m}^{-3}$  (42WLM). However, this point should be very informative, since in our experience, we did not have data on experiments conducted at such cumulative exposure and PAEC.

#### ***Animals and histologic analysis***

Exposed rats were 12 week-old, male, specific-pathogen-free Sprague-Dawley rats (Ico : OFA SD, IFFA-CREDO, France). During exposure, they were housed in wire stainless steel cages within the inhalation chambers. Litter consisted in sawdust removed daily before the beginning of exposure. Food (AO4 from UAR, France) and water were given freely. After exposure, rats were kept and regularly observed until death and euthanased when moribund. Necropsies consisted of a complete examination of all the organs and recording any abnormalities. The lungs were carefully observed and any nodules detected by a gentle palpation. Lungs, selected organs and organs with suspicious lesions were taken systematically for histopathological examination. Lungs were fixed *in situ* by intratracheal instillation of 10% neutral buffered formalin (NBF). Thoracic lymph nodes and surrounding tissues from the mediastinum, including heart, were fixed all together. If no lesion was observed, samples from liver, spleen, kidneys and the whole brain were fixed in NBF after all the organs had been systematically weighted. Any suspicious lesion from other organs was taken and fixed. Sagittal sections of the nasal and paranasal cavities were performed and any macroscopic lesion fixed. Tissues were fixed in NBF by immersion before processing and embedding in paraffin wax. Serial  $5\text{-}\mu\text{m}$  thick sections were performed taking care to trim only the sufficient tissue for histopathological diagnosis in order to keep remaining tissue from the lesion available for further studies on biological markers. Routine process consisted in haematoxylin-eosin-saffron staining. In addition, selected special histochemical stainings including Alcian-blue for mucus detection in adenocarcinoma and/or immunohistochemical methods were used. Proliferative preneoplastic lesions and lung tumours were classified according to the classification published in the EULEP Color Atlas<sup>10</sup>.

## Results

These studies are not yet fully completed. However, the majority of rats have died or were killed when moribund and then autopsied. In the first four experimental groups, group 0 (RnCt), and groups 1 (RnPC), 2 (RnFr), 3 (RnD3), and 5 (RnD6) all the rats have been autopsied. In contrast, in Group 4 (RnD12), about 34% of the rats, 82 of 240, are still alive. Table 2 shows the distribution of lung tumours larger than 5 mm in diameter at macroscopic examination. In our experience, lung tumours larger than 5 mm in diameter at autopsy were found to be almost exclusively malignant tumours. In rats exposed to similar cumulative exposure and decreasing PAEC, the proportion of lung tumours larger than 5 mm at macroscopic examination decreases from 10% in Group 1 (RnPC) to 3.33% in Group 3 (RnD3) and 1.27% in Group 4 (RnD12). However, this last group should be regarded cautiously since all the rats from this group have not yet been autopsied. On the other hand, in group 2 (RnFr) which was exposed to radon at similar cumulative exposure and PAEC as group 1 (RnPC), but protracted over a 3-months period, the incidence (5.41%) of macroscopic lung tumours observed is marginally significantly lower than that of Group 1 (10%). In group 5 (RnD6) exposed at lower cumulative exposure of  $151 \text{ mJ h m}^{-3}$  (42WLM) and lower PAEC of  $0.37 \text{ mJ m}^{-3}$  (18WL) than other groups, 5 lung tumours larger than 5 mm at macroscopic examination (2.36%) were observed.

Table 2 Distribution of macroscopic lung tumours with a diameter larger than 5mm observed at autopsy in rats between the different experimental groups.

Experimental groups	Number of rats with lung tumours $\text{Ø} \geq 5 \text{ mm}$	Number of rats with single lung tumours	Number of rats with multiple lung tumours	Total number of tumours $\text{Ø} \geq 5 \text{ mm}$	Proportion (%) of tumours $\text{Ø} \geq 5 \text{ mm}$
Group 0 (RnCt)	0 / 120	0	0	0	0
Group 1 (RnPC)	22 / 240	22	2	24	10.0
Group 2 (RnFr)	13 / 240	13	0	13	5.41
Group 3 (RnD3)	8 / 240	8	0	8	3.33
Group 4 (RnD12)	2 / 158	2	0	1	1.27
Group 5 (RnD6)	5 / 211	5	0	5	2.36

In these experiments, the histopathological study is still in progress. All the tumours confirmed at histopathological examination as being lung carcinomas were tumours larger than 5 mm in diameter at macroscopic examination. The distribution of the histological types of lung carcinomas observed until now in the different experimental groups is listed in Table 3.

Table 3 Distribution of histological types of lung carcinomas between the different experimental groups.

	Squamous cell carcinomas	Adenosquamous carcinomas	Adenocarcinomas
<b>Group 1 (RnPC)</b>	6	1	7
<b>Group 2 (RnFr)</b>	1	1	3
<b>Group 3 (RnD3)</b>	0	0	2
<b>Group 5 (RnD6)</b>	0	0	2

Until now, in group 1 (RnPC), exposed at a  $378 \text{ mJ h m}^{-3}$  (105WLM) cumulative exposure and high PAEC of  $3.91 \text{ mJ m}^{-3}$  (188WL), 6 squamous cell carcinomas, 1 adenosquamous carcinoma and 7 adenocarcinomas were observed. In group 2 (RnFr), exposed at a  $385 \text{ mJ h m}^{-3}$  (107WLM) cumulative exposure and similar PAEC of  $3.06 \text{ mJ m}^{-3}$  (147WL) but protracted over a 3 months period, 1 squamous cell carcinoma, 1 adenosquamous carcinoma and 3 adenocarcinomas were observed. In group 3 (RnD3) exposed at  $361 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM) but lower PAEC of  $1.21 \text{ mJ m}^{-3}$  (58WL), 2 papillary adenocarcinomas were observed. In group 5 (RnD6), exposed at  $151 \text{ mJ h m}^{-3}$  (42WLM) but lower PAEC of  $0.37 \text{ mJ m}^{-3}$  (18WL), 2 papillary adenocarcinomas were also observed. It should be pointed out that squamous cell carcinomas were observed only in rats exposed at high exposure rate.

A full statistical analysis of the survival and tumour incidences of this study will not be possible until all animals have been analysed.

### ***Combined effects of radon and other industrial or environmental airborne pollutants***

#### ***Combined exposure to radon and tobacco smoke***

The first experiments were carried out to investigate the effects of inhalation of radon and its daughters at various cumulative doses, before or after various passive exposures to tobacco smoke<sup>11)</sup>, using cigarettes with and without filters. For a 1000 WLM radon exposure, the incidence of lung carcinomas was slightly lower in rats exposed to tobacco smoke before radon exposure than in rats exposed to radon alone, but the distribution of the different histological types of tumours were similar in the two groups. In contrast, a highly significant excess of lung carcinomas, mainly of the squamous cell type, was observed in the group exposed to tobacco smoke after radon exposure<sup>3)</sup>. In this group, the incidence of lung carcinomas was almost four times greater than in the group exposed to radon alone.

The results of further studies in which rats were exposed to cigarette smoke following exposure to radon showed that for the same tobacco smoke exposure, the incidence of lung carcinomas increased with the cumulative dose of radon. In the same way, for an identical cumulative dose of radon and its daughters, the incidence of lung carcinomas increased with the cumulative exposure to tobacco smoke<sup>12)</sup>.

The induction of lung carcinomas was less efficient in rats exposed to tobacco smoke produced by filter cigarettes than in those exposed to cigarettes without filters<sup>13)</sup>. The incidence of lung carcinomas was higher, but not statistically significant in the groups exposed to radon and tobacco smoke combined than in the group exposed to radon alone. Moreover, the proportion of lung carcinomas was higher in the group exposed to unfiltered cigarettes than in the group exposed to filtered cigarettes. In the group exposed to radon and unfiltered cigarettes, the increased incidence of lung carcinomas was mainly related to an increased incidence of squamous cell carcinomas. These findings suggested a stronger synergistic effect of radon and unfiltered cigarettes compared to that of radon and filtered cigarettes<sup>14)</sup>.

In rats exposed to radon and tobacco smoke combined, for the same radon exposure, the incidence of lung carcinomas was greatly increased in the group exposed to radon and tobacco smoke compared with the group exposed to radon only. Tumours observed in the groups exposed to radon and tobacco smoke were larger and more invasive than in the groups exposed to radon alone. These tumours also spread more to the pleura and the presence of intrapulmonary metastases or of multiple tumours in the lung was observed. For the same radon exposure, the mean latent period for lung carcinomas was shorter in the group exposed to radon and then to tobacco smoke compared with the group exposed to radon alone. For an identical tobacco smoke exposure of 350 hours, the mean latency period was inversely related to the cumulative radon dose. All these results showed a clear co-carcinogenic effect of exposure to radon and radon daughters and tobacco smoke in rats.

#### *Combined exposure to radon and mineral fibres and other industrial or environmental airborne pollutants*

The experimental protocol described above was used to study the potential co-carcinogenic effects of radon and mineral fibres. Acid treated chrysotile fibres were shown to exhibit less carcinogenic activity in vivo than untreated fibres<sup>15)</sup>. These experiments were designed to investigate the potential synergistic action of different kinds of untreated or acid treated asbestos fibres and other mineral dusts injected into the pleural cavity of rats after previous inhalation of radon and its daughters. In these experiments, 60 rats exposed to radon alone were used as controls. Ten groups of 10 rats each were exposed to the same dose of radon and then, 2 weeks later were injected intrapleurally with 2 mg of mineral dust, untreated or acid treated asbestos fibres, glass fibres and two varieties of quartz. No rats were exposed to mineral fibres alone.

The potential carcinogenic or co-carcinogenic role of 4 minerals present in the ores of metallic

mines was also investigated<sup>16)</sup>. These included, nemalite (a contaminant of Quebec chrysotile), biotite (present in many granites and in the French uranium ore), iron pyrites (present in various iron and gold ores), and finally iron-rich chlorite (present in iron, tungsten and gold ores).

The use of diesel-powered vehicles is steadily increasing world-wide. Experimentally, some evidence of a carcinogenic effect has been previously reported in rats after exposure to diesel exhaust containing high concentrations of diesel soot particles for periods of up to 2 years<sup>17)</sup>. The potential synergistic effects of diesel exhaust were investigated in rats after previous exposure to radon and radon daughters<sup>18)</sup>.

Suggestions of co-carcinogenicity were also observed in rats exposed first to radon progeny  $3.5 \text{ J h m}^{-3}$  (1000WLM) and one month later to ozone  $0.2 \text{ ml.l}^{-1}$  (0.2 ppm) by inhalation. A clear but non-significant increase in lung cancers was observed in the group exposed to radon and ozone combined as compared with the group exposed to radon alone<sup>19)</sup>.

Chlorinated compounds are widely used in a variety of commercial forms for industrial and medical applications. Exposure to dichloromethane (methylene chloride) induces lung and liver cancers in mice. The aim of this study was to test the potential carcinogenic or co-carcinogenic effect of dichloromethane in rats, acting either alone, as a complete carcinogen, or as a promoter after local pulmonary irradiation by inhalation of radon<sup>20)</sup>.

The results of these different studies are summarised in Table 4.

## Discussion

The results of these studies showed that lung carcinomas could be induced in rats by exposure to radon and its progeny. A dose-effect relationship was established for cumulative exposures varying from  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM) up to  $21.6 \text{ J h m}^{-3}$  (6,000WLM)<sup>3)</sup>. An excess of lung cancer was observed in rats exposed to cumulative exposures similar to those to which former uranium miners were exposed, i. e., from  $72 \text{ mJ h m}^{-3}$  (200WLM) to  $10.8 \text{ J h m}^{-3}$  (3,000WLM), but only at high exposure rate. For low cumulative exposures, exposure at low exposure rates resulted in fewer induced lung carcinomas than similar exposures at higher exposure rates<sup>8)</sup>.

The ongoing studies on the influence of exposure rate are not yet fully completed and the histopathology study is still in progress. Full statistical analysis of all animals is required before full conclusions can be drawn. However, on the basis of autopsy macroscopic findings and of preliminary histopathological results, the results of this study could be compared with those of an historical control group of 785 rats and with those of previous experiments in rats exposed at various cumulative exposures and exposure rates.

The preliminary results of these studies indicate that at relatively low cumulative exposures of  $0.36 \text{ J h m}^{-3}$  (100WLM), comparable to lifetime exposures in high-radon houses or current underground mining exposures, the risk of lung cancer in rats decreases with PAEC, i. e., exposure rate. They confirm the results obtained at lower cumulative exposure showing that for the same cumulative

Table 4 Effects of combined exposure to radon and other environmental or industrial airborne pollutants.

<b><u>Experiments</u></b>	<b><u>Results</u></b>	<b><u>Conclusion</u></b>
<b>Radon + Cigarette Smoke</b>	<i>Increased incidence of lung carcinomas up to 4 times greater than in rats exposed to radon progeny alone</i>	<b>Multiplicative Effect</b>
<b>Radon + Mineral Fibres</b>	<i>1/3 Lung Carcinomas 1/3 Pleural Mesotheliomas 1/3 Combined Pulmonary Pleural Tumours in excess</i>	<b>Additive Effect</b>
<b>Radon + Minerals from Metallic Mine Ores</b>	<i>Slight non significant excess of lung carcinomas</i>	<b>No clear synergistic effect</b>
<b>Radon + Diesel Exhausts</b>	<i>Slight non significant excess of lung carcinomas</i>	<b>No clear synergistic effect</b>
<b>Radon + Ozone 0.2 ppm</b>	<i>Slight non significant excess of lung carcinomas</i>	<b>No clear synergistic effect</b>
<b>Radon + Methylene Chloride</b>	<i>No excess of lung cancer</i>	<b>No synergistic effect</b>



exposure of  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM), the relative risk (RR) of lung cancer decreases from 4.45 in rats exposed at  $3.15 \text{ mJ m}^{-3}$  (150WL) to 3.48 in rats exposed at  $2.1 \text{ mJ m}^{-3}$  (100WL) and to 0.94 in rats exposed at  $0.042 \text{ mJ m}^{-3}$  (2WL). These preliminary results also indicate that the risk of lung tumour induction for rats is maximum for cumulative exposures ranging from  $0.09 \text{ J h m}^{-3}$  (25WLM) up to  $360 \text{ mJ h m}^{-3}$  (100WLM) and PAEC ranging from  $1.05 \text{ mJ m}^{-3}$  (50WL) up to  $3.15 \text{ mJ m}^{-3}$  (150WL), i.e., exposure rates ranging from  $18 \text{ mJ h m}^{-3}$  per week (5 WLM per week) and  $90 \text{ mJ h m}^{-3}$  per week (25 WLM per week). These data suggest that the induction of lung cancer results from a complex interplay between cumulative exposure and exposure rate, with an optimal combination of exposure rate at a given exposure level.

The significance of exposure rates in assessing the hazards of domestic radon exposure was addressed on biophysical grounds by Brenner<sup>21)</sup>, who concluded that, when cumulative exposures are sufficiently low that multiple traversals of target cells by alpha particles are rare—that is the case for typical domestic radon exposures—, all exposure-rate enhancement effects disappear. The results of recent experiments conducted by Miller *et al.* using a microbeam source<sup>22)</sup>, showed that traversal of cell nuclei by a single alpha particle induced significantly lower oncogenic transformation in the C3H10T1/2 mouse fibroblast system than does a Poisson-distributed mean of one alpha particle, suggesting that cells traversed by multiple alpha particles contribute most of the risk.

In this respect, based on dose-rate effect considerations, extrapolation of lower exposure-rate miner data to residential exposures—where no target cell is traversed by more than a single alpha particle—may overestimate risks associated with typical residential exposures and exposure rates. Our recent data in rats appear to follow this same trend and to support the hypothesis that, at low doses, the risk of lung cancer is governed by the rate at which the dose is delivered, and not by the total cumulative dose alone. Likewise, recent data from R. Mitchell *et al.*<sup>23)</sup> following chronic exposures to high concentrations of natural uranium ore dust alone also indicate that malignant lung tumour risks are not directly proportional to dose, but are directly proportional to dose rate.

These data are also consistent with that of underground miners<sup>24)</sup> showing an inverse dose-rate effect at high cumulative exposures, but a diminution of this effect at cumulative exposures lower than  $0.18 \text{ J h m}^{-3}$  (50WLM). They support both the existence of an inverse dose-rate effect at high cumulative exposure, as well as its diminution or disappearance at low cumulative exposures.

The results of the studies on combined exposure to radon and other agents demonstrate the potential co-carcinogenic action of various environmental or industrial airborne pollutants acting in combination with radon exposure. They showed either a multiplicative, an additive or nil effect. The strongest co-carcinogenic effect was shown by combined exposure first to radon and then to tobacco smoke and resulted in an increased incidence of lung carcinomas, mainly of the squamous cell type. These results also indicated the possible application of this “radon model” to the investigation of possible interactions between exposure to two occupational and/or environmental pollutants. The importance of such an experimental model for risk assessment should be emphasised since human

industrial occupational or environmental exposures are nearly always not single but multiple exposures.

However, in the majority of co-carcinogenesis studies reported here, strong synergistic effects could be observed only when the potential co-carcinogens were administered at high doses, as reported for combined exposures to radon and cigarette smoke. The co-carcinogenic effect of radon, which has been observed in high-level exposures, cannot be extrapolated to humans exposed in the domestic environment as they are never exposed to such high levels<sup>21)</sup>.

*Acknowledgements* : This work was supported in part by Grant FI4P-CT95-0025 (Commission of the European Communities) and COGEMA (PIC D11).

## References

- 1) Cross, F. T. and Monchaux, G. : Risk Assessment of Radon Health Effects from Experimental Animal Studies. A joint review of PNL (USA) and CEA-COGEMA (France) data. In "*Indoor Radon Exposure and its Health Consequences-Quest for the True story of Environmental Radon and Lung Cancer*", Masahiro Doi and Jiro Inaba (eds), Kodansha Scientific, Co. Ltd., Tokyo, Japan, 85-105 (1999)
- 2) Cross, F. T. : A review of experimental radon health effects data. In "*Radiation Research : A Twentieth-Century Perspective, Vol. 2*", Proceedings of the 9th International Congress of Radiation Research, W. C. Dewey, M. Edington, R. J. M. Fry, E. J. Hall, and G. F. Whitmore, eds., Academic Press, San Diego, 476-481 (1992)
- 3) Monchaux, G., Morlier, J.P., Morin, M., Chameaud, J., Lafuma, J. and Masse, R. : Carcinogenic and co-carcinogenic effects of radon and radon daughters in rats. *Environ. Health Perspect.*, 102, 64-73 (1994)
- 4) Masse, R. : Histogenesis of lung tumors induced in rats by inhalation of alpha emitters : An overview. In "*Pulmonary Toxicology of Respirable Particles*", Proceedings of the 19th Hanford Life Sciences Symposium, CONF-791002, National Technical Information Service, Springfield, Virginia, 498-521 (1980)
- 5) Dagle, G.E., Cross, F.T and Gies, R. A. : Morphology of respiratory tract lesions in rats exposed to radon/radon progeny. In "*Indoor Radon and Lung Cancer : Reality or Myth?, Part 2*", Proceedings of the 29th Hanford Symposium on Health and the Environment, F. T. Cross, ed., Battelle Press, Columbus, Ohio, 659-676 (1992)
- 6) Chameaud, J., Masse, R. and Lafuma, J. : Influence of radon daughter exposure at low doses on the occurrence of lung cancers in rats. *Radiat. Protect. Dosim.*, 7, 385-388 (1984)
- 7) Gilbert, E.S., Cross, F. T. and Dagle, G.E. : Analysis of lung tumor risks in rats exposed to radon. *Radiat. Res.*, 145, 350-360 (1996)
- 8) Morlier, J. P., Morin, M., Monchaux, G., Pineau, J. F., Chameaud, J., Lafuma, J. and Masse, R. : Lung cancer incidence after exposure of rats to low doses of radon : influence of dose rate. *Radiat. Protect. Dosim.*, 56, 93-97 (1994)
- 9) Strong, J. C., Morlier, J. P., Monchaux, G., Barstra, R. W., Groen, J.S. and Baker, S.T. : Intercomparison of measurement techniques used in radon exposure facilities for animals in Europe. *Appl. Radiat. Isot.*, 47, 355-359 (1996)

- 10) Hahn, F. F. and Boorman, G. A. : Neoplasia and Preneoplasia of the Lung. In "*Pathology of Neoplasia and Preneoplasia in Rodents*", P. Bannasch and W. Gössner (Eds), EULEP Color Atlas, Volume 2., Schattauer, Stuttgart, New York, 29-42 (1997)
- 11) Chameaud, J., Perraud, R., Chrétien, J., Masse, R. and Lafuma, J. : Combined effects of inhalation of radon daughter products and tobacco smoke. In "*Pulmonary Toxicology of Respirable Particles*", Proceedings of the 19th Hanford Life Sciences Symposium, CONF-791002, National Technical Information Service, Springfield, Virginia, 551-557, (1980)
- 12) Gray, R. G., Lafuma, J., Parish, S. E. and Peto, R. : Lung tumors and radon inhalation in over 2000 rats : approximate linearity across a wide range of doses and potentiation by tobacco smoke. In "*Lifespan Radiation Effects Studies in Animals : What Can they Tell Us?*", Proceedings of the 22nd Hanford Life Sciences Symposium, CONF-830951, National Technical Information Service, Springfield, Virginia, 592-607, (1986)
- 13) Chameaud, J., Perraud, R., Chrétien, J., Masse, R. and Lafuma, J. : Lung carcinogenesis during in vivo cigarette smoking and radon daughters exposure in rats. In "*Recent Results in Cancer Research*", Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg, Vol. **82**, 11-20, (1982)
- 14) Monchaux, G., Morlier, J. P., Rochefort, P., Fritsch, P., Douriez, E., Morin, M. and Maximilien, R. : Cocarcinogenic effects in rats of various agents following exposure to radon and radon daughters. *Environ. Int.*, **22**, Suppl. 1: S917-S925 (1996)
- 15) Bignon, J., Monchaux, G., Chameaud, J., Jaurand, M.C., Lafuma, J. and Masse, R. : Incidence of various types of thoracic malignancy induced in rats by intrapleural injection of 2 mg of various mineral dusts after inhalation of <sup>222</sup>Rn. *Carcinogenesis*, **4**, 621-628 (1983)
- 16) Monchaux, G., Morlier, J. P., Morin, M., Zalma, R., Ogata, H., Pézerat, H. and Masse, R. : Carcinogenic effects on rats of exposure to different minerals from metallic mine ores, radon and radon daughters. In "*Cellular and Molecular Effects of Mineral and Synthetic Dusts and Fibres*", NATO ASI Series, Vol. H 85, Edited by J. M. G. Davis and M. C. Jaurand, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 159-164 (1994)
- 17) Heinrich, U., Muhle, H., Takenaka, S., Ernst, H., Fuhst, R., Mohr, U., Pott, F. and Stöber, W. : Chronic effects on the respiratory tract of hamsters, mice and rats after long-term animal inhalation of high concentrations of filtered and unfiltered diesel engine emissions. *J. Appl. Toxicol.*, **6**, 383-395, (1986)
- 18) Monchaux, G., Morlier, J.P., Chameaud, J., Deb Roche, M., Morin, M. and Masse, R. : Carcinogenic effects on rats of exposure to mixtures of diesel exhausts, radon and radon daughters. *Ann. Occup. Hyg.*, **38**, Suppl. 1 : 281-288 (1994)
- 19) Monchaux, G., Morlier, J.P., Trédaniel, J., Rochefort, P., Morin, M. and Maximilien, R. : Cocarcinogenic effects in rats of combined exposure to radon and ozone. *Environ. Int.*, **22**, Suppl. 1., S909-S915 (1996)
- 20) Morlier, J. P., Morin, M., Altmeyer, S. and Monchaux, G. : Long-term effects of combined exposure to radon and dichloromethane (DCM) by inhalation in rats. *Submitted to J. Radiological Protection* (1999)
- 21) Brenner, D. J. : The significance of dose rate in assessing the hazards of domestic radon exposure. *Health Phys.*, **67**, 76-79 (1994)
- 22) Miller, R. C., Randers-Pehrson, G., Geard, C. R., Hall, E. J. and Brenner, D. J. : The oncogenic transforming

potential of the passage of single alpha particles through mammalian cell nuclei. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*, **96**, 19-22 (1999)

- 23) Mitchell, R. E., Jackson, J. S. and Heinmiller, B. : Inhaled uranium ore dust and lung cancer risk in rats. *Health Phys.*, **76**, 145-155 (1999)
- 24) Lubin, J. H., Boice, J. D. Jr, Edling, C., Hornung, R. W., Howe, G., Kunz, E., Kusiak, R.A., Morrison, H. I., Radford, E. P., Samet, J. M., Tirmarche, M., Woodward, A., Xiang, Y. S. and Pierce, D. A. : Radon-exposed underground miners and inverse dose-rate (protraction enhancement) effects. *Health Phys.*, **69**, 494-500 (1995)

## BEIR VIにみるラドン影響の考え方

土居 雅広、中村 裕二

放射線医学総合研究所 第4研究グループ

### Health Effects of Radon : A Review of BEIR VI Report

Masahiro DOI and Yuji NAKAMURA

National Institute of Radiological Sciences

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

#### Abstract

Radon and its progeny are regarded as the largest contributor of natural radiation exposure to the human irradiation. Epidemiological follow-up studies on the radium painters and the miners in silver, fluorspar, niobium and uranium mines suggested the risk of radon and its progeny exposure to induce the lung cancer. In recent years, it came to notice that we should pay more attention to the uncertainties in these epidemiological studies taking some synergistic effects between radon and other environmental carcinogens, such as mine dust, smoking habit, arsenic, etc into account. In spite of these deficiencies, it is still widely accepted that the residents in the house with elevated radon and its progeny concentrations will have an excess risk of lung cancer mortality associated with their radon progeny exposure.

The Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations, U.S.A reviewed the major four epidemiological studies by Lundin et al. (1971), Muller et al. (1983), Radford and Renard (1984), Howe et al. (1986), and Hornung et al. (1987) in BEIR IV report (1988). New evidence since 1989 has been reviewed in the recent BEIR VI report (1999), and the approaches to assess the lung cancer risk posed by residential radon exposure has been reexamined. The BEIR VI report preferred two new risk projection models, and discussed uncertainties related to the induction of lung cancer at low level radon exposure and the impact of tobacco smoking. These models were based only on the pooled analysis of epidemiological studies of miners by Lubin et al. 1995, and not on the meta-analysis of case-control studies on residential radon and lung cancer by Lubin and Boice 1997. Excess lifetime risks of lung cancer mortality are also evaluated for U.S.A. Japanese and Swedish populations averaged over 1980-1984 using the Time-Since-Exposure (TSE) model in BEIR IV report, the Exposure-Age-Concentration (EAC) model and the Exposure-Age-Duration (EAD) model in BEIR VI report.

## I. はじめに

15世紀頃、ドイツ・ザクセン地方のシュネーベルグ銀山の鉱山労働者に致死的な呼吸器疾患が発生し、原因不明の「ヤマの病気」としておそれられていた。他方、れき青ウラン鉱(ピッチブレンド)を産出していたチェコ共和国ボヘミア地方のヨアヒム鉱山でも、鉱山労働者のあいだに致死性の肺疾患が発生していた。これら「ヤマの病気」が、「肺(気管支)がん」であり、その原因として、坑道内作業環境中の $^{222}\text{Rn}$ (ラドン)と壊変生成物( $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{214}\text{Po}$ )の吸入による被ばくが疑われるようになったのは20世紀になってからのことである<sup>1)</sup>。

1945年以降、相次いで実施された米国、カナダ、スウェーデンのウラン等鉱山労働者集団を対象とした健康影響調査(後向きコホート研究)では、鉱山労働者集団の肺がん罹患(致死)率が、積算曝露量に応じて高まることを見いだされた<sup>2,3,4,5,6)</sup>。これら疫学調査の詳細な見直しに基づいて、米国学術会議の電離放射線の生物学的影響に関する委員会(BEIR)は、ラドン壊変生成物の吸入被ばく1 WLM(ワーキング・レベル・マン・ス、付録1参照)あたりの肺がんの過剰相対リスク係数を1.34%(95%信頼区間0.8%-2.3%)と推定し、潜伏期間(Latency-Period)、被ばく後経過時間(Time-Since-Exposure)、年齢(Attained age)を考慮した肺がん致死リスク(生涯リスク)推定モデル(TSE-model)を提案した(BEIR IV報告書、1988年)<sup>7)</sup>。しかし、その後、鉱山労働者に関する疫学調査において、作業履歴や作業環境測定、喫煙等の交絡因子の評価における不確実性等、様々な問題点があること、一般家屋内の居住環境と坑道内の作業環境とでは、平衡等価ラドン濃度(平衡を仮定した娘核種濃度、付録2参照)以外にも、様々な環境条件(温度・湿度、粉塵など)が大きく異なっていることが指摘されるようになり、一般家屋内ラドンの吸入被ばくの健康影響を推定するための疫学調査の必要性が認識されるようになったのである。

これを受けて、米国(ニュージャージー州における女性肺がんの患者対照研究<sup>8)</sup>、ミズーリ州における非喫煙女性肺がんの患者対照研究<sup>9)</sup>、フィンランド(全国肺がん患者対照研究<sup>10,11)</sup>)、中国(Shenyang県女性肺がん患者対照研究<sup>12)</sup>)、カナダ(Winnipeg州肺がん患者対照研究<sup>13)</sup>)スウェーデン(ストックホルム女性、全国肺がん患者対照研究<sup>14,15)</sup>)、など、家屋内ラドン濃度と肺がんに関する疫学調査研究が相次いで実施されたのである。

特に、米国では、1985年以降、環境保護庁(EPA)等による家屋内ラドン濃度調査から、行動レベル( $149\text{ Bq m}^{-3}$ )を越える空气中ラドン濃度を有する家屋が数多く見いだされ、「屋内空気のラドン汚染」は、社会問題となっていた。全米肺がん協会と米国環境保護庁が、あらゆる情報メディアを活用して「ラドンと肺がんキャンペーン」を大々的に推進し、家屋内平均ラドン濃度の高い郡(County)は肺がん高リスク地域とされ、地域住民に積極的な屋内ラドン濃度低減対策(場合によっては移転を含めた)が勧告されたのである。ラドン低減化対策に関連する様々な事業が(民間を含めて)急速に伸長し、スーパーマーケットで多種類の簡易ラドン濃度測定キット(主に活性炭法や固体飛跡検出法等のパッシブ型測定器)が販売されていたのはこの時期である。

これに対して、ピッツバーグ大学のCohen教授らは、全米1729郡(County)において、家屋内ラドン濃度調査結果(米国環境保護庁、州・郡の環境衛生研究所などによる調査結果)を行政郡(County)毎に集計し、それぞれの郡における肺がん罹患率と比較して「域内の家屋内ラドン濃度の平均値が高い郡ほど、肺がん罹患率が低い」ことを示した。このことから、Cohen教授は従来の「しきい値のない直線を仮定した線量-効果関係」に基づくリスク推定・評価に疑問を投げかけるとともに、家屋内ラドンのリスク低

減に関連して全米で数十億ドル以上が投資されている現状を「誤りである」と明確に主張し、これを容認できないとした<sup>16)</sup>。

Cohen教授らの調査は、地域相関研究(ecological study)の一つである。地域相関研究は、疾患の集団的・地域的・時間的な分布に関する一般的特徴を記述する疫学的研究の総称であり、①同一期間における各地域集団の疾病率を調べて地域特性との関連を調べる方法(記述研究、Cohen教授らの調査研究<sup>16)</sup>はこの方法である)、②同一集団について、要因保有率と疾病頻度の経年変化を調べる方法(トレンド研究)、③多集団のそれぞれについて要因保有率、疾病頻度を比較する方法(集団比較研究)等がある。地域相関研究は、比較的容易に実施でき、新しい仮説提唱のための予備的研究としては有用であるが、個人について要因と疾病の有無を調査して解析している訳ではないので、他の要因(交絡因子)の影響で結果が歪められる可能性がある。このことから、Cohen教授らの主張は、厳しい批判にさらされることになったが、米国国立がん研究所のLubin博士らによるウラン等鉱山労働者集団を対象とした健康影響調査(後向きコホート研究)の見直し作業<sup>17)</sup>や、各国で実施された家屋内ラドンと住民の肺ガンに関する患者対照研究の統合(メタ)分析<sup>18,19)</sup>、さらにBEIR-IV報告書<sup>7)</sup>で提案された肺がん致死リスク(生涯リスク)推定モデルの改訂を促すことになった。BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>は、このような状況の下で、BEIR-IV報告書<sup>7)</sup>の改訂版として上梓されたものである。

## II. 肺ガンリスク評価の基礎となる疫学調査の概要

### 1. 鉱山労働者コホート調査研究の見直し

BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>では、従来の米国(Colorado Plateau)<sup>3)</sup>、カナダ(Ontario)<sup>4)</sup>、カナダ(Beaverlodge)<sup>5)</sup>、スウェーデン(Malmberget)<sup>6)</sup>のウラン等鉱山労働者集団を対象とした後向きコホート研究を改めて見直すとともに、中国(雲南省)<sup>21)</sup>、チェコ(Western Bohemia)<sup>22)</sup>、カナダ(Newfoundland)<sup>23)</sup>、カナダ(Northwest Territories)<sup>24)</sup>、米国(Grants, New Mexico)<sup>25)</sup>、オーストラリア(南部)<sup>26)</sup>、フランス(中部3鉱山)<sup>27)</sup>における鉱山労働者集団を対象とした後向きコホート研究についても検討を加えている。特に坑道内の作業環境の特殊性(粉塵等との共存等)、当時の坑道内ラドン娘核種濃度測定結果や個々の坑夫についての作業履歴記録や鉱塵吸入の有無、喫煙習慣の有無等の交絡因子への曝露量推定結果の信頼性について、11のコホート研究それぞれに詳細な検討が加えられている。BEIR-VI報告書<sup>20)</sup>における各鉱山労働者コホート研究の再評価結果を要約したものを表1に示す。

Table 1 Summary of the 11 underground miner studies (after Tables A-1, D-12 and D-18 in BEIR VI report, 1999).

Location	Follow-up period	Type of mine	Number of miners	Number of Person-years	Number of lung cancers	Mean WLM(*)	Mean WL(*)	Mean Duration	ERR (%) / WLM with 95%CI	Smoking data	Reference
Colorado, U.S.A.	1950-90	Uranium	3,347	79,556	334	578.6	11.7	3.9	0.42 (0.3-0.7)	available	3
Ontario, Canada	1955-86	Uranium	21,346	300,608	285	31.0	0.9	3.0	0.89 (0.5-1.5)	-	4
Beaverlodge, Canada	1950-80	Uranium	6,895	67,080	56	21.2	1.3	1.7	2.21 (0.9-5.6)	-	5
Malmberget, Sweden	1951-91	Iron	1,294	32,452	79	80.6	0.4	18.2	0.95 (0.1-4.1)	available	6
China	1976-87	Tin	13,649	134,842	936	286.0	1.7	12.9	0.16 (0.1-0.2)	available	21
W.Bohemia, Czechoslovakia	1952-90	Uranium	4,320	102,650	701	196.8	2.8	6.7	0.34 (0.2-0.6)	-	22
Newfoundland, Canada	1950-84	Fluorspar	1,751	33,795	112	388.4	4.9	4.8	0.76 (0.4-1.3)	available	23
Port Radium, Canada	1950-80	Uranium	1,420	31,454	39	243.0	14.9	1.2	0.19 (0.1-0.6)	-	24
New Mexico, U.S.A.	1943-85	Uranium	3,457	46,800	68	110.9	1.6	5.6	1.72 (0.6-6.7)	available	25
Radium Hill, Australia	1948-87	Uranium	1,457	24,138	31	7.6	0.7	1.1	5.06 (1.0-12.2)	available	26
Three mines, France	1948-86	Uranium	1,769	39,172	45	59.4	0.8	7.2	0.36 (0.0-1.2)	-	27

(\*) Weighted by person-years; includes 5 year lag interval.

これらの解析から、BEIR-VI報告書<sup>20)</sup>では、ラドンと肺癌に関する相対リスクモデルとして2つの新しいリスク評価モデルを提案している。一つは、従来の積算曝露量(WLM、ワーキング・レベル・マンス)の曝露後経過時間(Time-Since-Exposure)による補正に、評価対象年齢(歳)、曝露期間(年)による補正を加えた「積算曝露量-年齢-曝露期間(EAD)」モデルであり、もう一つは、年齢とラドン(平衡等価)濃度レベル(WL、ワーキング・レベル)による補正を加えた「積算曝露量-年齢-濃度レベル(EAC)」モデルである。BEIR-IV報告書<sup>7)</sup>における「曝露後経過時間(TSE)」モデルと、BEIR-VI報告書<sup>20)</sup>における「積算曝露量-年齢-曝露期間(EAD)」モデル、「積算曝露量-年齢-濃度レベル(EAC)」モデルをまとめて表2に示す。

Table 2 Comparison of preferred risk models in BEIR IV (1988) and BEIR VI (1999) reports.

BEIR IV (1988)		BEIR VI (1999)			
Time-Since-Exposure model		Exposure-Age-Duration model		Exposure-Age-Concentration-model	
$\beta \times 100$	2.5 (95%CI 2.2-2.6)	$\beta \times 100$	0.553 (95%CI 0.271-1.125)	$\beta \times 100$	7.681 (95%CI 3.969-14.864)
Time-since-exposure windows		Time-since-exposure windows		Time-since-exposure windows	
$\theta_{5-15y}$	1.00	$\theta_{5-15y}$	1.00	$\theta_{5-15y}$	1.00
$\theta_{15-25y}$	0.5	$\theta_{15-25y}$	0.72	$\theta_{15-25y}$	0.78
$\theta_{25y+}$	0.5	$\theta_{25y+}$	0.44	$\theta_{25y+}$	0.51
Attained Age (years)		Attained Age (years)		Attained Age (years)	
$\phi_{< age 55}$	1.2	$\phi_{< age 55}$	1.00	$\phi_{< age 55}$	1.00
$\phi_{age 55-64}$	1.0	$\phi_{age 55-64}$	0.52	$\phi_{age 55-64}$	0.57
$\phi_{age 65-74}$	0.4	$\phi_{age 65-74}$	0.28	$\phi_{age 65-74}$	0.29
$\phi_{age 75y+}$	0.4	$\phi_{age 75y+}$	0.13	$\phi_{age 75y+}$	0.09
		Duration of Exposure (years)		Exposure rate (WL)	
		$\gamma_{< 5y}$	1.00	$\gamma_{< 0.5WL}$	1.00
		$\gamma_{5-14y}$	2.78	$\gamma_{0.5-1.0WL}$	0.49
		$\gamma_{15-24y}$	4.42	$\gamma_{1.0-3.0WL}$	0.37
		$\gamma_{25-34y}$	6.62	$\gamma_{3.0-5.0WL}$	0.32
		$\gamma_{35y+}$	10.20	$\gamma_{5.0-15.0WL}$	0.17
				$\gamma_{15.0WL+}$	0.11

$$\text{Relative risk (RR)} = 1 + \beta \times (\theta_{5-15} \times W_{5-15} + \theta_{15-24} \times W_{15-24} + \theta_{25+} \times W_{25+}) \times \phi_a \times \gamma_z$$

Here  $\phi_a$  denotes attained age, a in years,  $\gamma_z$  denotes either exposure duration in years or radon progeny concentration categories in WL.

それぞれの相対リスクモデル(TSE-model、EAD-model及びEAC-model)から、年あたり0.1、0.5、および1.0WLMのラドン被ばく(線量率)を生涯にわたって受けた場合の年齢別過剰肺癌致死誘発確率(リスク)を推定した結果を図1a及び図1bに示す。図1aは、米国の男女別肺癌死亡率(1980-1984年の平均)を基にした推定結果を、図1bは、日本の男女別肺癌死亡率(1980-1984年の平均)を基にした推定結果を示したものである。これらの年齢別リスクを、全年齢にわたって積算することにより(図1aおよび図1bの各曲線と年齢軸(横軸)で囲まれた部分の面積に相当する)、生涯過剰肺癌致死誘発確率(リスク)を



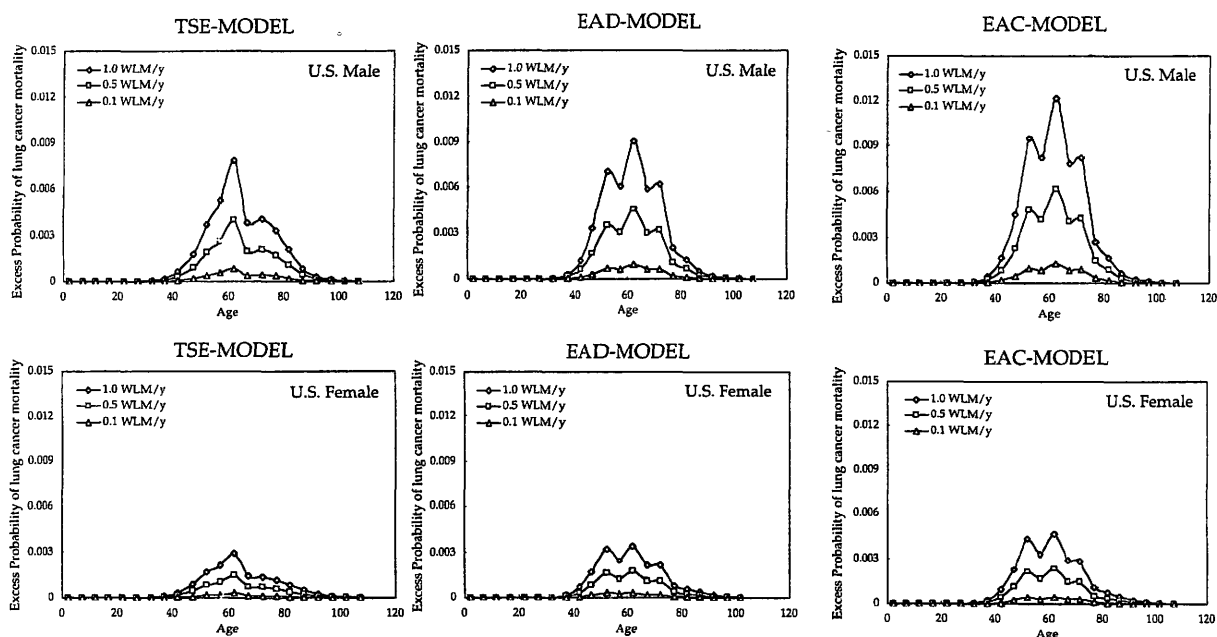


Fig. 1-a Excess Probability of lung cancer mortality by age projected to American population averaged over 1980-1984 by Time-Since-Exposure (TSE) model (BEIR IV, 1988), Exposure-Age-Duration (EAD) and Exposure-Age-Concentration (EAC) models (BEIR VI, 1999) at potential alpha energy exposure rate of 0.1, 0.5 and 1.0 WLM/y.

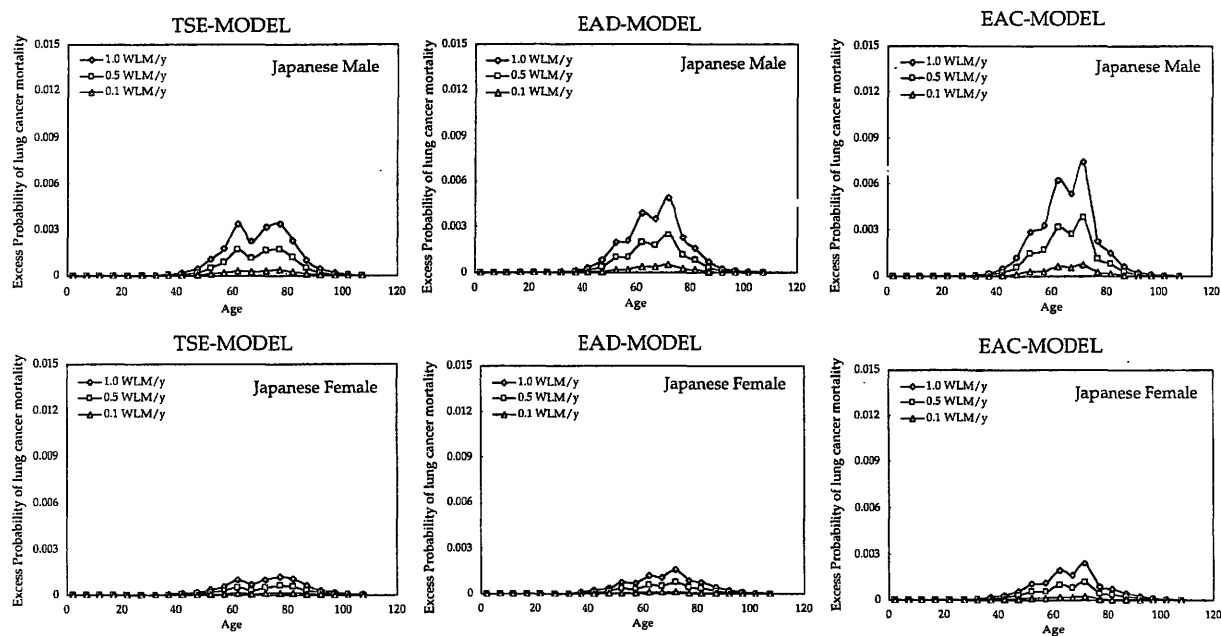


Fig. 1-b Excess Probability of lung cancer mortality by age projected to Japanese population averaged over 1980-1984 by Time-Since-Exposure (TSE) model (BEIR IV, 1988), Exposure-Age-Duration (EAD) and Exposure-Age-Concentration (EAC) models (BEIR VI, 1999) at potential alpha energy exposure rate of 0.1, 0.5 and 1.0 WLM/y.

推定することができる。年あたり1.0WLMのラドン被ばく(家屋内ラドン濃度224 Bqm<sup>-3</sup>、付録3参照)における、米国と日本の男女(1980-1984年の平均)それぞれに対する生涯過剰肺癌致死誘発確率(リスク)推定値を、相対リスクモデル毎にまとめて表3(上段)に示す。ラドン生涯肺癌リスク推定値は、米国男性に「積算曝露量-年齢-濃度レベル(EAC)」モデルを適用して推定した場合の9.20(95%信頼区間4.86-17.1)×10<sup>-4</sup> WLM<sup>-1</sup>から、日本女性に「曝露後経過時間(TSE)」モデルを適用して推定した場合の0.95(95%信頼区間0.84-0.99)×10<sup>-4</sup> WLM<sup>-1</sup> まで一桁違いがある。

広島・長崎の原爆被爆者コホート調査研究から、単位実効線量あたりの公衆における確率的影響の名目確率係数は、国際放射線防護委員会1990年勧告において7.30×10<sup>-5</sup> mSv<sup>-1</sup>と推定されている<sup>28)</sup>。この確率的影響の名目確率係数と、鉱山労働者コホート研究から推定されたラドン生涯肺癌リスク推定値(WLM<sup>-1</sup>、表3(上段)参照)との比から、ラドン曝露量-実効線量換算係数(mSv WLM<sup>-1</sup>)を算出した結果を表3(下段)に示す。これら疫学的アプローチによるラドン曝露量-実効線量換算係数の推定値は、性別、国別、相対リスク推定モデル別に異なり、米国男性に「積算曝露量-年齢-濃度レベル(EAC)」モデルを適用して推定した場合には12.6(95%信頼区間6.66-23.4)mSv WLM<sup>-1</sup>と推定され、日本女性に「曝露後経過時間(TSE)」モデルを適用して推定した場合には1.30(95%信頼区間1.15-1.35)mSv WLM<sup>-1</sup>と推定される。

Table 3 Excess lifetime mortality of lung cancer per unit potential alpha energy exposure (in WLM) evaluated by risk projection models to the population of U.S.A. and Japan averaged over 1980-1984. BEIR IV-Time-Since-Exposure (TSE) model, BEIR VI-Exposure-Age-Duration (EAD)-model and BEIR VI-Exposure-Age-Concentration (EAC)-model are applied to each population for an exposure rate of 1 WLM per year. The ratio of these mortalities and 7.3×10<sup>-5</sup> mSv<sup>-1</sup>, the nominal probability coefficient of stochastic effects for whole population (ICRP 1991) are the dose conversion factors in mSv per WLM.

Population	Sex	Excess life-time lung cancer mortality per 10,000 person WLM (95%CI)		
		BEIR IV-TSE-model	BEIR VI-EAD-model	BEIR VI-EAC-model
U.S.A. 1980-1984	Male	5.00 ( 4.40 - 5.20 )	6.22 ( 3.10 - 12.26 )	9.20 ( 4.86 - 17.07 )
	Female	1.82 ( 1.61 - 1.89 )	2.36 ( 1.16 - 4.75 )	3.52 ( 1.83 - 6.71 )
Japan 1980-1984	Male	2.65 ( 2.33 - 2.75 )	3.04 ( 1.50 - 6.10 )	4.37 ( 2.28 - 8.29 )
	Female	0.95 ( 0.84 - 0.99 )	1.05 ( 0.52 - 2.13 )	1.48 ( 0.77 - 2.85 )
		Effective dose (mSv) per WLM (95%CI)		
		BEIR IV-TSE-model	BEIR VI-EAD-model	BEIR VI-EAC-model
U.S.A. 1980-1984	Male	6.85 ( 6.03 - 7.12 )	8.52 ( 4.24 - 16.8 )	12.6 ( 6.66 - 23.4 )
	Female	2.50 ( 2.20 - 2.59 )	3.24 ( 1.59 - 6.51 )	4.82 ( 2.51 - 9.19 )
Japan 1980-1984	Male	3.62 ( 3.20 - 3.77 )	4.17 ( 2.06 - 8.35 )	5.99 ( 3.13 - 11.4 )
	Female	1.30 ( 1.15 - 1.35 )	1.44 ( 0.71 - 2.92 )	2.03 ( 1.05 - 3.91 )

\* Annual exposure rate for above risk projection was fixed at 1 WLM/y.

国際放射線防護委員会報告書Publication 65<sup>29)</sup>では、米・国立衛生研究所(NIH)が開発した標準人口集団(米国、英国、日本、中国、プエルトリコにおける人口動態統計の荷重なし平均値)に、「曝露後経過時間(TSE)」モデル<sup>7)</sup>を適用し、一般公衆を対象とした名目ラドン曝露量-実効線量換算係数推定値として3.88 mSv WLM<sup>-1</sup>を提案している(疫学的アプローチ)。

一方、国際放射線防護委員会報告書Publication 66<sup>30)</sup>で採用された呼吸気道モデルを用いて、BirchallとJamesは、ラドン曝露量-実効線量換算係数を、17.2 mSv WLM<sup>-1</sup>(算術平均値)、15 mSv WLM<sup>-1</sup>(中央値)と推定している<sup>31,32)</sup>(呼吸気道モデルによる線量推定アプローチ)。

国際放射線防護委員会は、ラドン曝露量-実効線量換算係数を推定する根拠として疫学的アプローチを採用するとしている。しかし、表3(下段)より、疫学的アプローチにおいても、相対リスク係数の信頼区間、リスク推定の対象となる集団の特性(国別、性別、その他交絡因子別)及び適用するリスク推定モデルの選択により、評価値に大きな幅が生じることは明らかである。このようなリスク評価値の不確実性を考慮した上で、呼吸気道モデルを用いたラドン曝露量-実効線量換算係数推定値との違いについても検討していく必要がある。

## 2. 家屋内ラドンと肺がんに関する疫学調査研究

BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>では、各国で実施された家屋内ラドンと肺がんに関する疫学調査研究を、患者対照(case-control)研究と地域相関(ecological study)研究とに大別して、細かい検討を試みている。Lubin博士らの統合(メタ)分析<sup>18)</sup>の対象となった患者対照(case-control)研究(米国<sup>8,9)</sup>、フィンランド<sup>10,11)</sup>、中国<sup>12)</sup>、カナダ<sup>13)</sup>、スウェーデン<sup>14,15)</sup>の概要を表4に示す。各患者対照研究における家屋ラドン濃度とオッズ比(相対リスクの指標)の関係を図2に示す。Lubin博士らの統合(メタ)分析<sup>18)</sup>の結果、家屋内ラドン濃度レベル150 Bq m<sup>-3</sup>における統一肺がん致死相対リスク(Combined Relative Risk)を1.14(95%信頼区間

Table 4 Summary of 8 case-control studies and their meta-analysis on residential radon and lung cancer (after Tables G-21 and G-25 in BEIR VI report, 1999).

Study	Number of cases	Number of controls	Radon level of cases (Bq m <sup>-3</sup> )	Radon level of controls (Bq m <sup>-3</sup> )	Comments	Relative Risk at 150 Bq m <sup>-3</sup>	95%CI	Reference
New Jersey, U.S.A.	480	442	19	19	female only	1.83	(1.15-2.90)	8
Missouri, U.S.A.	538	1,183	67	67	nonsmoking females	1.12	(0.92-1.36)	9
Finland-I	238	415	174	274	-	1.30	(1.09-1.55)	10
Finland-II	517	517	103	96	-	1.01	(0.94-1.09)	11
Shenyang, China	308	356	104	107	female only	0.84	(0.78-0.91)	12
Winnipeg, Canada	738	738	115	126	-	0.96	(0.86-1.08)	13
Stockholm, Sweden	201	378	115	107	female only	1.83	(1.34-2.50)	14
Nationwide, Sweden	1,281	2,576	56	56	-	1.20	(1.13-1.27)	15
Combined	3,283	6,605				1.14	(1.01-1.30)	18

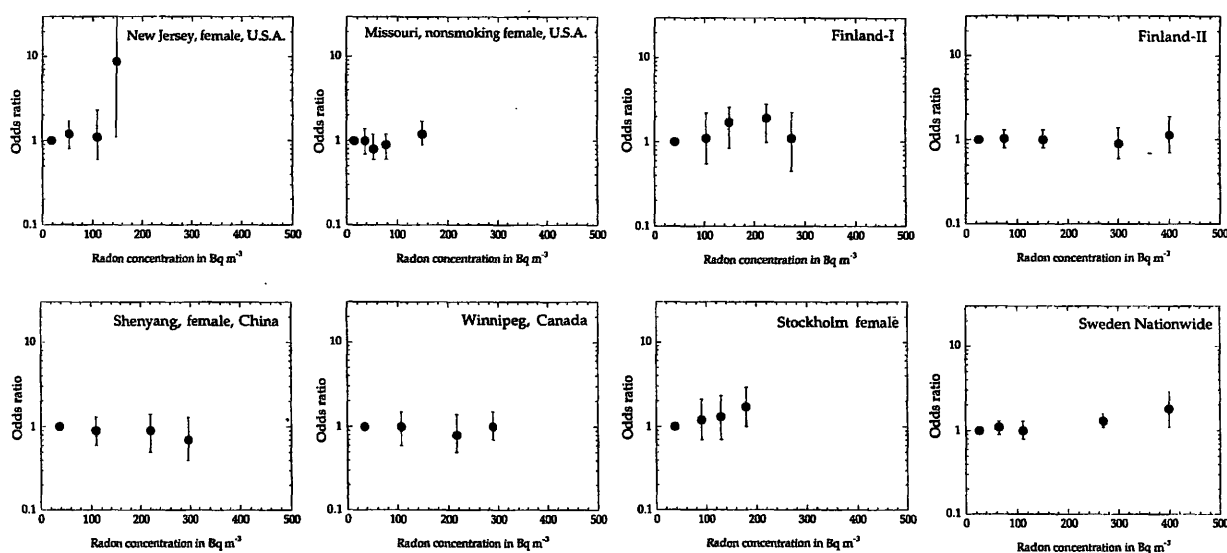


Fig. 2 Odds ratios from 8 lung cancer case-control studies of indoor radon. <sup>8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15)</sup>

1.01-1.30)と推定している。150 Bq m<sup>-3</sup>のラドン濃度の家屋において、平衡定数(ラドンガスとラドン娘核種の放射平衡比)を0.4、屋内に滞在する時間比率を0.8、平均曝露期間を30年とそれぞれ仮定する<sup>33)</sup>と、家屋内ラドンによる生涯積算ラドン曝露量(WLM)は、およそ20 WLMとなる(付録4参照)。したがって生涯過剰肺がん致死リスクは、0.7%(95%信頼区間0.05%-1.5%)と換算され(付録5参照)、表1に示した鉱山労働者コホート研究におけるリスク推定値<sup>17)</sup>と、概ね符合するとしている。

その一方で、BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>は、患者対照研究における問題点(喫煙履歴データ、がん登録データ、その他個人データ(開放した窓際で就寝する習慣の有無など)、引っ越し等による家屋の遡久的調査データの信頼性、その他)を細かく論じており、鉱山労働者コホート研究におけるリスク推定値<sup>17)</sup>からの外挿によって家屋内ラドンによる肺がん影響を推定するのが現時点において妥当としている。

地域相関(ecological study)研究については、多くの論文を網羅して調べているものの、致命的なバイアスを潜在的に含んでいる可能性があるとして、相対リスクを推定する根拠にはならないと断じている。

BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>におけるこれらの見解は、Cohenらの地域相関研究<sup>16)</sup>、鉱山労働者コホート研究におけるリスク推定値<sup>17)</sup>、及び家屋内ラドンと肺がんに関する患者対照研究のメタ分析<sup>18)</sup>結果を示した図3に要約されている。

しかし、BEIR-VI報告書(1999)<sup>20)</sup>の指摘している問題点を受け入れるならば、家屋内ラドン濃度が150 Bq m<sup>-3</sup>に満たないときには、患者対照研究を実施しても肺がんリスクは検出できないことになる<sup>15)</sup>。わが国の全国屋内ラドン濃度レベルの平均値は15 Bq m<sup>-3</sup>であることから、わが国において家屋内ラドンと肺がんに関する患者対照研究を実施したとしても、肺がんリスクは検出できない(ほど小さい)のである。

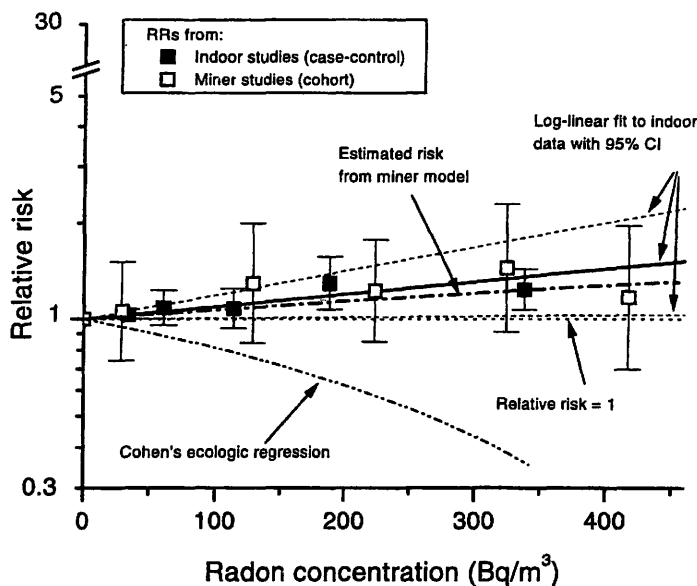


Fig. 3 Relative risks from meta-analysis of indoor radon and lung cancer studies and relative risks from pooled analysis of underground-miner studies, of which exposures were restricted to under 50 WLM. Linear relative risk based on ecological analysis by Cohen (1995) is included. (after Figure 3-2 in BEIR VI report, 1999)

### Ⅲ.まとめ

1988年に、米国学術会議の電離放射線の生物学的影響に関する委員会(BEIR)は、BEIR IV報告書において、鉱山労働者の後ろ向きコホート研究による相対リスクを推定し、ラドン壊変生成物の吸入被ばく1 WLMあたりの肺がんの過剰相対リスク係数1.34%(95%信頼区間 0.8%-2.3%)と、潜伏期間(Latency-Period)、被ばく後経過時間(Time-Since-Exposure)、年齢(Attained age)を考慮した生涯肺がんリスク推定モデルを提案した。

1999年に発表されたBEIR-VI報告書は、主にLubinらによる検討結果を基に、ラドンと肺がんに関するあらゆる疫学的調査(鉱山労働者の後ろ向きコホート研究、家屋内ラドンと肺がんに関する地域相関研究、患者対照研究)の網羅的なレビューと、各国の家屋内ラドンと肺がんに関する患者対照研究をメタ・分析によって評価し、BEIR-IV報告書で提案された生涯過剰肺がん致死リスクを推定するモデルの見直しと改訂を行ったものである。

鉱山労働者の後ろ向きコホート研究の見直しにより、さらに詳細な2つのリスク評価モデルが示されたが、これらのモデルによるラドン肺がんリスク推定値は、BEIR-IVにおける従来のリスク推定モデルによる推定値と大きく違わない。家屋内ラドン濃度と肺がんに関する患者対照研究については、個々の調査における問題点を指摘した上で、メタ・分析により、ラドン濃度 $150 \text{ Bq m}^{-3}$ において30年間被ばくしたときの統一相対リスク(Combined Relative Risk)として1.14(95%信頼区間 1.01-1.30)が提示された。これは、平衡係数0.4、居住係数0.8として換算すると、1 WLMあたりの肺がんの過剰相対リスク0.7%(95%信頼区間 0.05%-1.5%)に相当する。

### 付 録

#### 1. WLM(ワーキング・レベル・マンズ):

平衡等価ラドン濃度 $100 \text{ pCi L}$ ( $3,700 \text{ Bqm}^{-3}\text{EEC}$ )の環境において170 hrs過ごした場合のラドン曝露量を1 WLMという。 $1 \text{ WLM} = 3,700 \text{ Bqm}^{-3}\text{EEC} \times 170 \text{ hrs} = 6.29 \times 10^5 (\text{Bqm}^{-3}\text{ECC hr})$ である。

#### 2. 平衡等価ラドン濃度( $\text{Bqm}^{-3} \text{EEC}$ ):

ラドンガス( $^{222}\text{Rn}$ )とラドン娘核種( $^{218}\text{Po}$ 、 $^{214}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{214}\text{Po}$ 、 $^{210}\text{Pb}$ )が放射平衡にあると仮定したとき、実際の空気中ポテンシャルアルファエネルギーと同等のポテンシャルアルファエネルギーを与えるラドン娘核種の平衡濃度を、平衡等価ラドン濃度( $\text{Bqm}^{-3} \text{EEC}$ )という。ラドンガス濃度( $\text{Bqm}^{-3}$ )に対する平衡等価ラドン濃度( $\text{Bqm}^{-3} \text{EEC}$ )の比を平衡係数という。

#### 3. 年あたり1WLMの被ばくをもたらず屋内ラドン濃度:

平衡係数0.4、居住係数0.8とした場合、

$$\begin{aligned} \text{年あたり1 WLM} &= 6.29 \times 10^5 (\text{Bqm}^{-3}\text{ECC hr}) / (365 \text{ days} \times 24 \text{ hrs}) \\ &= 71.8 (\text{Bqm}^{-3}\text{ECC}) \\ &= 71.8 (\text{Bqm}^{-3}\text{ECC}) / 0.8 / 0.4 \\ &= 224 (\text{Bqm}^{-3}) \end{aligned}$$

#### 4. ラドンガス濃度 $150 \text{ Bq m}^{-3}$ 、曝露期間30年、平衡係数0.4、居住係数0.8の場合の積算ラドン曝露量(WLM):

$$150 \text{ Bq m}^{-3} \times 30 \text{ 年} \times 365 \text{ 日/年} \times 24 \text{ 時間/日} \times 0.4 \times 0.8 / 6.29 \times 10^5 = 20.0 \text{ WLM}$$

と計算される。

5. 肺がん致死相対リスクのWLMあたり過剰肺がん致死相対リスクへの変換：

肺がん致死相対リスク1.14(95%信頼区間1.01-1.30)からそれぞれ1をひくと、過剰肺がん致死相対リスク0.14(95%信頼区間0.01-0.30)を得る。これを20.0 WLMで割ると、WLMあたりの過剰肺がん致死相対リスク0.7%(95%信頼区間0.05%-1.5%)を得る。

## 参考文献

- 1) W. Jacobi : The History of the radon Problem in Mines and Homes. In “*Protection Against Radon-222 at Home and at Work*”, ICRP Publication 65, Pergamon Press, p39-45(1994)
- 2) F. E. Lundin, J. K. Wagoner, V. E. Archer : Radon daughter exposure and respiratory cancer: quantitative and temporal aspects. Joint Monograph No. 1. NIOSH and NIEHS, U.S. Dept. of Health, Education and Welfare, Public Health Service, Washington D. C.(1971)
- 3) R. W. Hornung, T. J. Meinhardt : Quantitative risk assessment of lung cancer in U.S. Uranium miners. *Health Physics*, **52**, 417-430(1987)
- 4) J.Muller, W. C. Wheeler, J. F. Gentleman, G. Suranyi, R. Kusiak : Study of mortality of Ontario miners 1955-1977, Part I. Toronto : Ontario Ministry of Labour, Ontario workers compensation board(1983)
- 5) G. R. Howe, R. C. Nair, H. G. Hewcombe, A. B. Miller, J. D. Abbatt : Lung cancer mortality (1950-1980) in relation to radon daughter exposure in a cohort of workers at the Eldorado Beaverlodge uranium mine. *J. Natl. Cancer Inst.* **77**(2), 357-362(1986)
- 6) E. P. Radford, K. G. St. Clair Renard : Lung cancer in Swedish Iron miners exposed to low doses of radon daughters. *New England J. Medicine*, **310**(23), 1485-1494(1984)
- 7) Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation(BEIR). Health Risks of radon and other internally deposited alpha-emitters, BEIR-IV report, Washington, D. C. : National Academy Press(1988)
- 8) J.B. Schoenberg, J.B. Klotz, G.P. Wilcox, M.T. Gil-del-Real, A. Stemhagen, T.J. Mason : Case-control study of residential radon and lung cancer among New Jersey women. *Cancer Research*, **50**, 6520-6524(1990)
- 9) M. C. R. Alavanja, R. C. Brownson, J. H. Lubin, C. Brown, C. Berger, J. D. Boice Jr : Residential radon exposure and lung cancer among non-smoking women. *J. Natl Cancer Inst.* **86**, 1829-1837(1994)
- 10) E. Ruostenoja, I. Makelainen, T. Rytomaa, T. Hakulinen, M. Hakama : Radon and lung cancer in Finland. *Health Physics*, **71**(2), 185-189(1996)
- 11) A. Auvinen : Indoor radon and the risk of lung cancer : A nested case-control study in Finland. *J. Natl. Cancer Inst.* (In press).
- 12) W. J. Blot, Z. Y. Xu, J. D. Boice Jr, D-Z, Zhao, B. J. Stone, J. Sun, L-B, Jing, J. F. Fraumeni Jr : Indoor radon and lung cancer in China. *J. Natl. Cancer Inst.* **82**, 1025-1030(1990)
- 13) E. G. Letourneau, D. Krewski, N. W. Choi, M. J. Goddard, R. G. McGregor, J. M. Zielinski, J. Du : Case-control study of residential radon and lung cancer in Winnipeg, Manitoba, Canada. *Am. J. Epidemiology* **140**, 310-322, (1994)
- 14) G. Pershagen, Z-H, Liang, Z. Hrubec, C. Svensson, J. D. Boice Jr : Residential radon exposure and lung cancer

- in Swedish women. *Health Physics*, **63**, 179-186 (1992)
- 15) G. Pershagen, O. Axelson, B. Clavensjo L. Damber, G. Desai, A. Enflo, F. Lagarde, H. Mellander, M. Svartengren, G. A. Swedjemark, G. Akerblom : Residential radon exposure and lung cancer in Sweden. *New England Journal of Medicine*, **330**, 159-164 (1994)
  - 16) B. L. Cohen : Tests of the Linear No-threshold theory of radiation carcinogenesis for inhaled radon decay products. *Health Physics*, **68**, 157 (1995)
  - 17) J. H. Lubin, JD, Jr. Boice, C. Edling, RW. Hornung, G. R. Howe, E. Kunz, R. A. Kusiak, H. I. Morrison, E.P. Radford, J. M. Samet, M. Tirmarche, A. Woodward, S. X. Yao, D. A. Pierce : Lung Cancer Risk : A Joint Analysis of 11 Underground Miners Studies. National Institute of Health, National Cancer Institute, NIH publication No.94-3644. Washington D. C. U. S. Department of Health and Human Services (1994)
  - 18) J. H. Lubin, JD, Jr. Boice : Lung cancer risk from residential radon : meta-analysis of eight epidemiological studies, *J. Natl Cancer Inst.* **89**, 49-57 (1997)
  - 19) J. H. Lubin, JD, Jr. Boice, C. Edling, RW. Hornung, G. R. Howe, E. Kunz, R. A. Kusiak, H. I. Morrison, E.P. Radford, J. M. Samet, M. Tirmarche, A. Woodward, S. X. Yao, D. A. Pierce : Lung cancer in radon exposed miners and estimation of risk from indoor exposure. *J. Natl. Cancer Inst.* **87**, 817-827 (1995)
  - 20) BEIR committee (Committee on the health risks of exposure to radon, BEIR VI). Health effects of exposure to Radon, Washington, D. C. : National Academy Press (1999)
  - 21) X. Z. Xuan, J. H. Lubin, J. Y. Li, W.J. Blot : A cohort study in southern China of workers exposed to radon and radon decay products. *Health Physics*, **64**, 120-131 (1993)
  - 22) J. Sevc, E. Kunz, L. Tomasek, V. Placek, D. Chemelecsky, D. Barclay, A.M. Kellerer : A Survey of the Czechoslovak follow-up of lung cancer mortality in uranium mines. *Health Physics*, **64**, 355-369 (1993)
  - 23) H. I. Morrison, R. M. Semenciw, Y. Mao, D. T. Wigle : Cancer mortality among a group of fluorspar miners exposed to radon progeny. *Am. J. Epidemiology*, **128**, 1266-1275 (1988)
  - 24) G. R. Howe, R. C. Nair, H. B. Newcombe, A. B. Miller, J. D. Burch, J. D. Abbat : Lung cancer mortality (1950-1980) in relation to radon daughter exposure in a cohort of workers at the Eldorado Port radium uranium mine : Possible modification by exposure rate. *J. Natl. Cancer Inst.* **79**, 1255-1260 (1987)
  - 25) J. M. Samet, D. R. Pathak, M. V. Morgan, M. C. Marbury, C. R. Key, A. A. Valdivia : Radon progeny exposure and lung cancer risk in New Mexico uranium miners: A case-control study. *Health Physics*, **56**, 415-421 (1989)
  - 26) A. D. Woodward, A. J. Roder, P. C. McMichael, A. Mylvaganam : Radon daughter exposures at the Radium Hill Uranium Mine and lung cancer rates among former workers, 1952-87. *Cancer Causes and Control* **2**, 213-220 (1991)
  - 27) M. Tirmarche, A. Raphalen, F. Allin, J. Chameaud, P. Bredon : Mortality of a cohort of French uranium miners exposure to relatively low radon concentrations. *Br. J. Cancer*, **67**, 1090-1097 (1993)
  - 28) International Commission on Radiological Protection. 1990 recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Publication 60, Pergamon Press (1991)
  - 29) International Commission on Radiological Protection. Protection against radon-222 at home and at work, Publication 65, Pergamon Press (1994)

- 30) International Commission on Radiological Protection. Human Respiratory tract model for radiological protection, Publication 66, Pergamon Press (1994)
- 31) A. Birchall, A. C. James : Uncertainty Analysis of the Effective Dose per Unit Exposure from radon Progeny and Implications for ICRP Risk-Weighting Factors. *Radiation Protection Dosimetry*, **53** 133-140 (1994)
- 32) A. Birchall, A. C. James : The new ICRP Respiratory Tract Model and Radon Dosimetry. In "*Indoor Radon Exposure and its Health Consequences-Quest for the True Story of Environmental Radon and Lung Cancer*" (Ed. J. Inaba et al), Kodansha Scientific Ltd. Tokyo, ISBN-4-906464-10-6, 49-65 (1999)
- 33) International Commission on Radiological Protection. Lung cancer risk from indoor exposures to radon daughters. Publication 50, Pergamon Press (1987)



## 三朝地区における疫学調査

祖父江 友孝\*、Varerie S. Lee\*、葉 為民\*、田ノ岡 宏\*\*、御船 政明\*\*\*、  
陶山 昭彦\*\*\*\*、古賀 妙子\*\*\*\*、森嶋 彌重\*\*\*\*、近藤 宗平\*\*\*\*

\*国立がんセンター研究所がん情報研究部、\*\*分子腫瘍研究部、\*\*\*元岡山大学温泉研究所、  
\*\*\*\*鳥取大学医学部衛生(現：放射線影響研究所長崎)、\*\*\*\*\*近畿大学原子力研究所

### Epidemiologic Studies in Misasa Area

\* Tomotaka SOBUE, \* Varerie S. LEE, \* Wemin YE, \*\* Hiroshi TANOOKA,  
\*\*\* Masaaki MIFUNE, \*\*\*\* Akihiko SUYAMA, \*\*\*\*\* Taeko KOGA,  
\*\*\*\*\* Hiroshige MORISHIMA and \*\*\*\*\* Sohei KONDO

\*Cancer Information and Epidemiology Division, \*\* Genetics Division, National Cancer Center  
Research Institute, 5-1-1 Tsukiji Chuo-ku, Tokyo 104-0045, Japan, \*\*\* Institute for  
Environmental Medicine, Okayama University Medical School, 827 Yamada Misasa-cho, Tottori  
682-0122, Japan, \*\*\*\* Department of Hygiene, Faculty of Medicine, Tottori University, 86 Nishi-  
machi, Yonago-shi, Tottori, 683-0826, Japan, \*\*\*\*\* Atomic Energy Research Institute, Kinki  
University, 3-4-1 Kowakae Higashiosaka-shi, Osaka 577-0818, Japan.

### Abstract

In order to investigate an association between residential radon exposure and risk of lung cancer, a case-control study was conducted in Misasa Town, Tottori Prefecture, Japan. The case series consisted of 28 people who had died of lung cancer in the years 1976-96 and 36 controls chosen randomly from the residents in 1976, matched by sex and year of birth. Individual residential radon concentrations were measured for 1 year with alpha track detectors. The average radon concentration was 46 Bq/m<sup>3</sup> for cases and 51 Bq/m<sup>3</sup> for controls. Compared to the level of 24 or less Bq/m<sup>3</sup>, the adjusted odds ratios of lung cancer associated with radon levels of 25-49, 50-99 and 100 or more Bq/m<sup>3</sup>, were 1.13 (95% confidence interval; 0.29-4.40), 1.23 (0.16-9.39) and 0.25 (0.03-2.33), respectively. None of the estimates showed statistical significance, due to small sample size. When the subjects were limited to only include residents of more than 30 years, the estimates did not change substantially. This study did not find that the risk pattern of lung cancer, possibly associated with residential radon exposure, in Misasa Town differed from patterns observed in other countries.

### I. はじめに

高レベルのラドン曝露は肺がんリスクを高めることが、ウラン鉱山鉱夫の追跡調査から示されている。

一方、一般家庭においても、かなり高濃度のラドンが検出されることが、北欧、米国などの地域で明らかにされ、その健康影響が問題にされるようになった。

鳥取県三朝町は古くからラドン泉を有することで有名であるが、鳥取県三朝町ラドン泉地区住民と対照地区住民の死亡率を比較したところ、ラドン泉地区住民のがん死亡率は対照地区住民よりも低かったことが報告されている<sup>1)</sup>。しかし、この調査では、対象集団の中に中途転入者が含まれておりラドン泉への曝露期間が定かでない点、ラドン泉地区における死亡者に把握漏れが生じていた点、および、喫煙習慣など個人の危険因子による影響を調整できていない点などの問題が残っていた。

中途転入者の問題点を解決するため、1976年1月1日において40歳以上であった三朝町住民全員(4,331名)の名簿を作成し、この固定集団について1993年12月31日までの18年間のがん罹患率をラドン高濃度地区と対照地区とで比較した<sup>2)</sup>。その際、近畿大学原子力研究所の森嶋らのラドン濃度計測結果に基づき、従来、対照地区と扱ってきた2地区(竹田地区、および、旭地区の天神川沿い)をラドン高濃度地区に含めて解析した<sup>3)</sup>。その結果、全がん罹患率については両地区で差がなかったが、部位別に検討すると、ラドン高濃度地区においては胃がん罹患率が低く(男女とも)、肺がん罹患率が高い(男のみ)可能性が示唆された。しかし、ラドン高濃度地区内においても室内ラドン濃度が各家屋によりかなり変動すること、喫煙習慣などの個人の危険因子による影響を調整できていないことから、さらに検討が必要であった。

リスクの増加が示唆された肺がんとラドンとの関連をさらに検討するために、室内ラドンを実測した上での症例対照研究を実施した。この研究デザインは、肺がんと室内ラドンとの関連を検討するための研究としては国際的に最もよく用いられている方法である。

## II. 対象と方法

1976年1月1日より1996年5月31日までのケース(肺がん死亡例)63例を死亡票より把握し、51例について三朝町内在住の遺族を確認した。1996年10月および1997年2月、これらの遺族に対してラドン測定依頼と喫煙などに関する郵送し、未回答の遺族については訪問するなどして、ケース30例の遺族より室内ラドン測定の同意を得た。1976年1月1日において40歳以上であった三朝町住民全員(4,331名)の名簿より、ケースと性・生年をマッチし、対応するケースの肺がん死亡日に生存していた者をコントロールとしてケース1例につき5例ずつ選択し、1996年10月にケース1例につき2例のコントロールについて、ケースと同様の郵送調査を行った。同意の得られなかったコントロールについては、次のコントロール候補に郵送調査を行い、また、同意の得られなかったケースに対するコントロールで同意を得られたものを他のケースのコントロールにまわすなどして、最終的に36例のコントロールより室内ラドン測定の同意を得た。

室内ラドンは、alpha track detectorである「ラドトラック(長瀬ランダウア社)」による測定を1年間(半年間を2回)行った。測定を開始したケース30例のうち2例は、1回目半年間の測定後、家族拒否のため2回目の測定は中止した(1回目のラドン濃度は、33.3および22.2Bq/m<sup>3</sup>であった)。コントロールは全例2回の測定を完了した。解析には、2回の測定の完了したケース28例、コントロール36例を用いた。

### Ⅲ. 結果

Table 1にケースおよびコントロールの性、生年、地区の分布を示した。性、生年については、ケースとコントロールで差はなかったが、地区については、ケースに比べてコントロールの方が、三朝地区に多く、旭、竹田地区に少ない傾向があった。

Table 1 Demographic characteristics of cases, controls and study population.

	Case		Control		Study population	
	N	%	N	%	N	%
Sex						
Male	26	92.9	33	91.7	1,972	44.8
Female	2	7.1	3	8.3	2,428	55.2
Year of birth						
-1896	2	7.1	2	5.6	313	7.1
1897-1906	6	21.4	7	19.4	622	14.1
1907-1916	9	32.1	12	33.3	940	21.4
1917-1926	9	32.1	11	30.6	1,230	28.0
1927-1936	2	7.1	4	11.1	1,295	29.4
District						
Oshika	2	7.1	5	13.9	527	12.0
Mitoku	3	10.7	5	13.9	559	12.7
Misasa spa	6	21.4	19	52.8	1,237	28.1
Asahi 1	3	10.7	1	2.8	548	12.5
Asahi 2	7	25.0	3	8.3	854	19.4
Takeda 1	2	7.1	1	2.8	329	7.5
Takeda 2	5	17.9	2	5.6	346	7.9
Total	28	100.0	36	100.0	4,400	100.0

Table 2にラドンを計測した家屋の特徴を示した。多くは建築後20年以上を経た木造一戸建てで、窓枠はアルミサッシが多かった。コントロールでエアコンの保有率が高かった。

Table 3に半年ごとのラドン測定結果を示した。2回目の測定が冬季をカバーしていたため、1回目に比べて2回目のラドン濃度が高かった。

Fig. 1に1回目と2回目の濃度をそれぞれの測定日数で加重平均して求めた平均室内ラドン濃度の分布を示した。平均室内ラドン濃度の平均値はケースで45.7Bq/m<sup>3</sup>、コントロールで50.6Bq/m<sup>3</sup>とコントロールでやや高かった。最高値は、ケースで312Bq/m<sup>3</sup>、コントロールで252 Bq/m<sup>3</sup>であった。また、100Bq/m<sup>3</sup>以上の例が6件(ケース2件、コントロール4件)あった。

Table 4に居住歴および肺がんの主なリスク要因の分布を示した。ケースコントロールともほぼ半数の人が、生下時より現在の住所に居住していた。喫煙歴および職業歴は、ケースで多かった。

Table 5にロジスティック回帰分析により推定した室内ラドンによる肺がんオッズ比を示した。性、生年、喫煙状況、職歴について調整し、室内ラドン濃度0-24 Bq/m<sup>3</sup>を1とした場合の、25-49 Bq/m<sup>3</sup>、50-99 Bq/m<sup>3</sup>、100 Bq/m<sup>3</sup>以上の肺がんオッズ比は、1.13(95%信頼区間0.29-4.40)、1.23(0.16-9.39)、0.25(0.03-2.33)となった。死亡時住所あるいは現住所に30年以上居住していた人(ケース25例、コントロール31例)に限った場合でも、オッズ比はそれぞれ、1.00(0.24-4.15)、0.74(0.07-7.86)、0.27(0.03-2.53)とほぼ同じであった。

Table 2 Characteristics of houses used for radon measurements by cases and controls.

	Case		Control	
	N	(%)	N	(%)
Years since construction				
Less than 10 years	4	14.3	5	13.9
10-19 years	2	7.1	5	13.9
20-29 years	6	21.4	8	22.2
30-39 years	5	17.9	5	13.9
More than 40 years	9	32.1	11	30.6
Unknown	2	7.1	2	5.6
Type of house				
Wood, single-family house				
one story	9	32.1	5	13.9
two stories	19	67.9	30	83.3
Unknown	0	0.0	1	2.8
History of construction change				
Yes	12	42.9	11	30.6
No	15	53.6	22	61.1
Unknown	1	3.6	3	8.3
Materials of window frame <sup>1)</sup>				
Aluminum sash	20	71.4	26	72.2
Wood	4	14.3	7	19.4
Unknown	4	14.3	3	8.3
Air conditioner <sup>1)</sup>				
Yes	5	17.9	17	47.2
No	20	71.4	18	50.0
Unknown	3	10.7	1	2.8
<b>Total</b>	<b>28</b>	<b>100.0</b>	<b>36</b>	<b>100.0</b>

1) room where detector was located

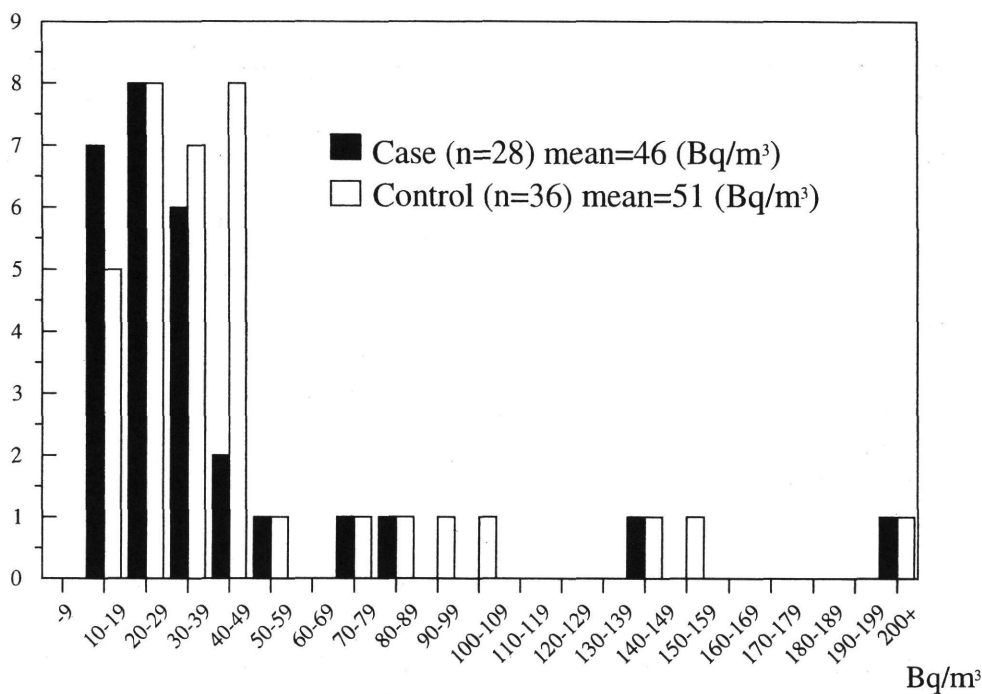


Fig. 1 Distribution of annual average of indoor radon concentration among cases and controls.

Table 3 Duration and concentration of residential radon measurements for cases and controls.

	Case					Control				
	Mean	SD <sup>1)</sup>	Med <sup>2)</sup>	Min <sup>3)</sup>	Max <sup>4)</sup>	Mean	SD <sup>1)</sup>	Med <sup>2)</sup>	Min <sup>3)</sup>	Max <sup>4)</sup>
First measurement										
Duration (days)	199	41	189	156	385	185	20	180	151	234
Radon concentration (Bq/m <sup>3</sup> )	42	47	28	7	222	44	41	31	7	204
Second measurement										
Duration (days)	179	18	183	126	201	181	19	186	134	224
Radon concentration (Bq/m <sup>3</sup> )	49	73	31	7	400	58	59	37	11	296

1) standard deviation

2) median

3) minimum

4) maximum

Table 4 Distribution of residential history and risk factor characteristics among cases and controls.

	Male				Female			
	Case		Control		Case		Control	
	N	%	N	%	N	%	N	%
Duration of residence at current address								
From birth (less than 5 years old)	15	57.7	19	57.6	1	50.0	1	33.3
From marriage (20-29 years old)	4	15.4	6	18.2	1	50.0	1	33.3
From more than 30 years old								
Residing over 30 years	4	15.4	5	15.2	0	0.0	0	0.0
Residing less than 29 years	2	7.7	3	9.1	0	0.0	0	0.0
Unknown	1	3.8	0	0.0	0	0.0	1	33.3
Smoking status								
Current smoker	20	76.9	14	42.4	0	0.0	0	0.0
Ex-smoker	3	11.5	10	30.3	0	0.0	0	0.0
Nonsmoker	3	11.5	8	24.2	2	100.0	3	100.0
Unknown	0	0.0	1	3.0	0	0.0	0	0.0
History of occupational exposure								
Yes	3	11.5	1	3.0	0	0.0	0	0.0
No	23	88.5	32	97.0	2	100.0	3	100.0
Total	26	100.0	33	100.0	2	100.0	3	100.0

Table 5 Age and smoking adjusted odds ratio for lung cancer deaths associated with residential radon.

Subjects	Case		Control		Adjusted odds ratio <sup>1)</sup> (95% confidence interval)
	N	%	N	%	
All subjects					
<=24	9	32.1	10	28.6	1.00 <sup>2)</sup>
25-49	14	50.0	17	48.6	1.13 (0.29-4.40)
50-99	3	10.7	4	11.4	1.23 (0.16-9.39)
100=<	2	7.1	4	11.4	0.25 (0.03-2.33)
Total	28	100.0	35	100.0	
Residents for more than 30 years					
<=24	8	32.0	8	25.8	1.00 <sup>2)</sup>
25-49	13	52.0	15	48.4	1.00 (0.24-4.15)
50-99	2	8.0	4	12.9	0.74 (0.07-7.86)
100=<	2	8.0	4	12.9	0.27 (0.03-2.53)
Total	25	100.0	31	100.0	

1) Adjusted for sex, year of birth, smoking status and occupational history

2) Reference category

#### IV. 考察

室内ラドンと肺がんについての症例対照研究は、これまでに欧米諸国および中国などで実施されている。それらを総括したメタアナリシスの結果、室内ラドン濃度 $150\text{Bq/m}^3$ でのオッズ比は1.14と推定され、この程度の大きさのリスクでも社会的影響が大きいと今後とも検討する必要があるとしている。本研究の結果は、症例数が少ないために推定オッズ比の信頼区間が広く、これを肯定も否定もできなかった。

本研究対象の平均室内ラドン濃度は約 $50\text{Bq/m}^3$ と、日本全国平均 $20\text{Bq/m}^3$ よりも高く、諸外国の研究対象地区における平均室内ラドン濃度に近いことから、三朝町と同等の室内ラドン濃度の地域を確保できれば、対象地域を広げて検討する価値はあると考えられた。しかし、三朝町の中の高濃度ラドン地区と同様の古い花崗岩質をもつ鳥取県西部地域(米子保健所根雨支所管内)の約10カ所で室内ラドン濃度を計測したところ、平均 $20.7\text{Bq/m}^3$ と全国平均とほぼ同様であった。従って、研究対象地域を近隣の市町村に拡大して検討しても、室内ラドン濃度の比較的高い対象者を十分得られる可能性は低く、本研究はここで終了することが適切と考えた。

#### 参考文献

- 1) M. Mifune, T. Sobue, H. Arimoto, Y. Komoto, S. Kondo and H. Tanooka : Cancer mortality survey in spa area (Misasa, Japan) with a high radon background. *Japanese Journal of Cancer Research*, **83**, 1-5(1992)
- 2) W. Ye, T. Sobue, V. S. Lee, H. Tanooka, M. Mifune, A. Suyama, T. Koga, H. Morishima and S. Kondo : Mortality and cancer incidence in Misasa, Japan, a spa area with elevated radon levels. *Japanese Journal of Cancer Research*, **89**, 789-796(1998)
- 3) T. Koga, M. Inagaki, H. Morishima, Y. Tanaka, A. Nakanishi, N. Sasaki and M. Mifune : Measurement of radon in Misasa district, Tottori Prefecture, using the PICO-RAD detector and a liquid scintillation spectrometer(3). *Annual Report of Kinki University Atomic Energy Research Institute*, **33**, 11-23(1996)

## 環境放射線による染色体異常

早田 勇

放射線医学総合研究所 障害基盤研究部

## Chromosome Aberrations Induced by Environmental Radiation

Isamu HAYATA

National Institute of Radiological Sciences

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

## Abstract

In the southern China there is a special area where the level of natural radiation is 3 to 5 times higher than other areas. Cytogenetic studies were performed in the residents in this high background radiation area (HBRA) and in control area<sup>1, 2, 3)</sup>. Increase of the frequency with dose was observed in unstable type (dicentrics, rings) aberrations while no such increase was observed in stable type (translocation) aberrations. The frequency of stable type aberrations was much higher than that of unstable type aberrations. Dicentrics and translocations are induced in the same ratio<sup>4)</sup>. Cancer mortality in HBRA was not different from that in control<sup>7)</sup>. Induction rate of dicentrics is reported to be about 3 in 10,000 cells per cGy<sup>8)</sup>. The average dose people in the world receives is 0.24 cSv per year<sup>9)</sup>. Therefore, the ratio of radiation-induced translocations by natural radiation in people in control area should theoretically be about 4.8 in 1000 cells at the age of 60 years old. The frequency of translocation at that age is almost 20 in 1000 cells in control population in the USA<sup>10)</sup>. As far as the radiation is within the level at least 3 times higher than that in control area, the effect of radiation may be buried in the larger effect of mutagens other than radiation in normal circumstances.

## I. はじめに

中国の最も南に位置する広東省には自然放射線が他の地域に比べて3～5倍高い地域がある。これは土壤に含まれる<sup>232</sup>Thおよび<sup>238</sup>Uの崩壊産物によるものである<sup>1)</sup>。この地域の住民はあまり移動することが無く6世代以上にわたってこの地に住んでいる。低線量放射線が人の健康にどのような影響を及ぼすかを知る目的で1992年より(財)体質研究会(菅原努理事長)が幹事機関となってこの高自然放射線地域住民の疫学調査を日中共同で行なっている。放射線医学総合研究所では科学技術庁の原子力基盤技術クロスオーバー研究と(財)体質研究会の助成を得て中国衛生部工業衛生実験所と共同でこの高自然放射線地域住民の末梢血リンパ球の染色体解析を行なった<sup>2,3)</sup>。この日中共同研究による染色体解析結果とこれまでに報告されている放射線の細胞遺伝学的研究から得られた知見を基に低線量放射線の健康影響(がんや

先天性異常の発症)について論議する。

## II. 放射線の影響に特異的な不安定型染色体異常

ヒトの末梢血リンパ球はDNA合成を済ませた後(G<sub>2</sub>期)の分裂活動を停止した時期(G<sub>0</sub>期)で体内を循環している。ところが、PHAという細胞分裂誘起剤と共に培養すると活発に分裂して染色体が観察出来るようになる。放射線や化学物質などに被曝したリンパ球を培養して第1回目の細胞分裂中期において染色体を観察すると、放射線によるものは染色体型の異常(DNAの2重鎖損傷由来)となり、化学物質などによる染色分体型の異常(DNAの単鎖損傷由来)と区別できる。DNAの2重鎖損傷に由来する異常とDNAの単鎖損傷に由来する異常は第2回目以降の分裂期では同じ形態となり区別できなくなる。DNA 2重鎖損傷を誘発する化学物質も稀にあるが、普通の生活環境ではそれらに接触することはまずない。染色体断片(フラグメント)を伴う2動原体や環状染色体は第1回目の分裂期の染色体型異常であり放射線に特異的な染色体異常とみなされる。フラグメント、2動原体、および環状染色体は細胞分裂で消失し時間経過と共に数が減少するため不安定型異常と呼ばれる。慢性被曝の場合は新たに生産される2動原体を持つリンパ球と消失するものとのバランスから、線量率に依存して2動原体の頻度の上昇が見られる<sup>4)</sup>。

## III. 全ての変異原の影響を反映する安定型染色体異常

不安定型異常に対して細胞分裂により娘細胞に受け継がれ続ける転座や逆位と呼ばれる安定型異常がある。2本の染色体がそれぞれ切断し再結合して交換型染色体異常が出来る時、交換が対称的で動原体のある部分同志と動原体が無い部分同志が入れ替わると転座となり、非対称的で動原体のある部分と動原体の無い部分が入れ替わると2動原体と断片とが出来る。どちらの交換になるかは理論的に同じ確立となるため、転座と2動原体は同じ割合で形成されることになる。リンパ球を照射した実験によっても転座と2動原体が同じ割合で生じることが確かめられている<sup>5)</sup>。転座は化学物質や活性酸素などの代謝因子に由来するDNA単鎖の損傷からも形成される。従って、転座は採血時までその人が曝された様々な変異原を合計した影響の指標となる。

## IV. 中国高自然放射線地域住民のリンパ球の染色体研究

リンパ球染色体標本の作成には原子力基盤技術クロスオーバー研究で開発した低線量被曝影響検出用の染色体標本作成法を用いた<sup>6)</sup>。中国高自然放射線地域および対象地域住民の末梢血リンパ球に検出された不安定型染色体異常(2動原体と環状染色体)と安定型染色体異常(転座)の頻度と蓄積被曝線量との関係を図1と図2に示す。

図1から明らかなように不安定型染色体異常は線量の増加に伴い頻度が上昇する。これはこのような極低レベルの線量率被曝であっても放射線損傷は100%正常に修復されることはないことを示す。しかし、図2に示すように安定型異常の頻度においては線量効果は見られず、個人差が大であり、また、コントロール群であっても転座の頻度が高く放射線による異常は放射線以外の要因により誘発される異常の多さの中に埋もれてしまい、放射線の影響が見えなくなっている。日中共同で実施しているガンや白血病や先天性異常の頻度に緘する疫学調査の結果でも、この高自然放射線地域とコントロール地域の住民の間には有意な差が認められていない<sup>7)</sup>。



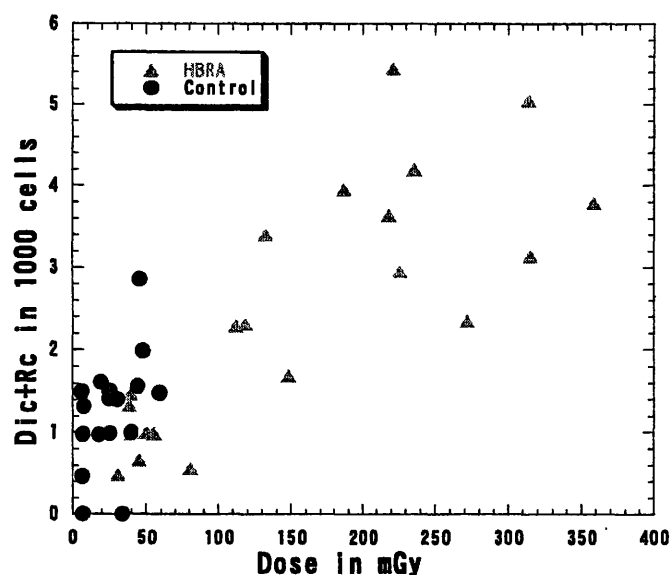


図1. 中国高自然放射線地域と対象地域の住民の末梢血リンパ球中の2動原体と環状染色体の出現頻度

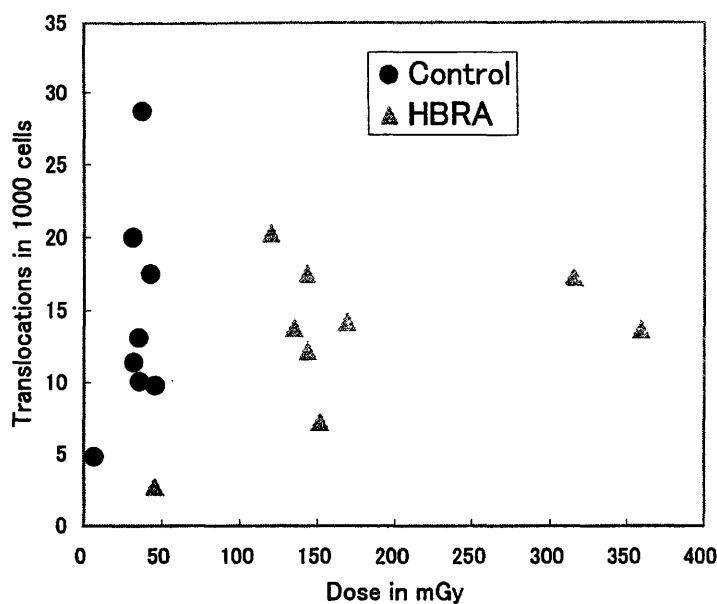


図2. 中国高自然放射線地域と対象地域の住民の末梢血リンパ球中の転座の出現頻度

### V. 普通の生活をしていて蓄積される染色体異常への放射線の影響分

図1に示される不安定型染色体異常のほとんどのものは2動原体である。Lloydら<sup>8)</sup>の実験的解析によって低線量域の $\gamma$ 線による2動原体の誘発頻度はcGy当り約3個/1万細胞で、線量効果関係は直線的であるとされている。従って、国連レポート<sup>9)</sup>にあるように一般健常人の年間平均被曝線量(医療被曝を除く)を0.24cSvとすると60歳では約16cGy( $60 \times 0.24 \text{cSv} \div 0.876$ )となり、転座は理論的には1,000細胞当

り約4.8個の割合で検出されることになる。米国のRamseyら<sup>10)</sup>はコントロール集団における安定型染色体異常(転座と挿入)の100細胞中の頻度は $0.297 + 8.06 \times 10^{-6} \times \text{年齢}$  3 となると報告している。この式から60歳時の転座頻度を計算すると1000細胞中約20( $> 4.8 \times 4$ )個となる。転座の頻度は挿入の頻度よりずっと高いためこの値はほぼ転座の頻度とみなせる。従って、自然放射線の4倍の線量率で64cGyを被曝しても、60歳の時点では化学物質などの非放射線による染色体異常の数は放射線によるものより多いことになる。

## VI. 結論

今回の調査対象となった中国広東省の高自然放射線地域の線量率では細胞核が数ヶ月に1回の割合で $\gamma$ 線を浴びる程度である。このレベルの放射線で2動原体染色体異常の頻度の上昇が見られたことは、染色体異常を誘発する放射線量には閾値が無いことを示唆している。

しかしながら、健康への影響の可能性が示唆される安定型染色体異常である転座の頻度の解析から、染色体異常の誘発には放射線以外の自然変異原要因の影響が大であり、平均的自然放射線量の3倍の慢性放射線被曝状態であっても、放射線の影響は放射線以外の環境変異原や代謝要因の影響が大きいため、その中に埋れてしまい見えなくなっていた。自然放射線の少なくとも3倍程度までの慢性被曝では放射線の健康への影響は評価出来ない程の少なさであると考えられる。

## 参考文献

- 1) M. Morishima, T. Koga, K. Tatsumi, S. Nakai, T. Sugahara, Y. Yuan, Q. Sun, and L. Wei : Study of the indirect method of personal dose assessment for the inhabitants in HBRA of China. In "*High Levels of Natural Radiation. Radiation Dose and Health Effects*" eds. By L. Wei, T. Sugahara, and Z. Tao. Elsevier, Amsterdam, pp 235-240. (1997)
- 2) T. Jiang, I. Hayata, C. Wang, S. Nakai, S. Yao, Y. Yuan, L. Dai, Q. Liu, D. Chen, L. Wei and T. Sugahara : Dose-effect relationship of dicentric and ring chromosomes in lymphocytes of individuals living in high background radiation area in China. *J.Radiat Res.*, **41**, in press (2000)
- 3) I. Hayata, C. Wang, W. Zhang, D. Chen, M. Minamihisamatsu, H. Morishima, Y. Yuan, L. Wei and T. Sugahara : Chromosome Translocation in the Residents in High Background Radiation Area, the Southern China. *J.Radiat Res.*, **41**, in press (2000)
- 4) S. Nakai, T. Jiang, D. Chen, I. Hayata, Y. Yuan, H. Morishima, S. Fujita, T. Sugahara and L. Wei : Effect of low dose rates on the production of chromosome aberration under lifetime exposure to high background radiation. In "*High Levels of Natural Radiation. Radiation Dose and Health Effects*" eds. By L. Wei, T. Sugahara, and Z. Tao. Elsevier, Amsterdam, pp 2307-315 (1997)
- 5) R. Kanda and I. Hayata : Comparison of the yields of translocations and dicentrics measured using conventional Giemsa staining and chromosome painting. *Int. J. Radiat. Biol.*, **69**(6), 701-705 (1996)
- 6) I. Hayata, H. Tabuchi, A. Furukawa, N. Okabe, M. Yamamoto and K. Sato : Robotic system for preparing lymphocyte chromosome. *J. Radiat. Res.*, **33**, suppl. 231-241 (1992)
- 7) Z. Tao, H. Kato, Y. Zha, S. Akiba, Q. Sun, H. He, Z. Lin, J. Zou, S. Zhang, Y. Liu, T. Sugahara and L. Wei : Study

- on cancer mortality among the residents in high background radiation area of Yangjiang, China. In "*High Levels of Natural Radiation. Radiation Dose and Health Effects*" eds. By L. Wei, T. Sugahara, and Z. Tao. Elsevier, Amsterdam, pp 249-254 (1997)
- 8) D. C. Lloyd, A. A. Edwards, A. Leonard, G. L. Deknudt, L. Verschaeve, A. T. Natarajan, F. Darroudi, G. Obe, F. Palitti, C. Tanzarella and E. J. Tawn : Chromosomal aberrations in human lymphocytes induced in vitro by very low doses of X-rays. *Int. J. Radiat. Biol.*, **61** (3), 335-343 (1992)
- 9) UNSCEAR 1988 Report : Sources, Effects and risks of ionizing radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1988. Report to the General assembly with annexes. United Nations sales publication E88. IX.7. United Nations, New York (1988)
- 10) M. J. Ramsey, D. H. Moor II, J. F. Briner, D. A. Lee, L. A. Olsen, J. R. Senft and J. D. Tucker : The effect of age and lifestyle factors on the accumulation of cytogenetic damage as measured by chromosome painting. *Mutation Res.*, **338** (1-6), 95-106 (1995)

## 動物実験の現状

緒方 裕光

国立公衆衛生院 放射線衛生学部

### A Review of Experimental Animal Studies

Hiromitsu OGATA

National Institute of Public Health

4-6-1, Shirokanedai, Minato-ku, Tokyo 108-8638, Japan

#### Abstract

The risk of radon-induced lung cancer has been estimated from epidemiological data of underground miners exposed to radon progeny. However large uncertainties affect risk estimates derived from these data especially at low dose exposures. Animal experiments conducted under a variety of exposure condition can complement epidemiological studies and provide valuable information on the carcinogenicity of radon exposures for humans. Moreover, numerical analysis of experimental data is particularly useful for estimating quantitative risks, such as the dose-response relationship, the interaction of combined factors, or the effect of fractionation or protraction of the dose. Numerical estimates of carcinogenic risk of human radon exposure require extrapolations from data observed in animal experiments, and it is necessary to use of some mathematical methods. Animal data for risk assessment of radon were obtained mainly in France and USA, and they provided many important findings on the dose or time dependences of tumor rate and the influence of other factors. In this paper, animal experimental studies are reviewed in the perspective of quantitative risk assessment, with emphasis on the method of extrapolation of experimental data from animal to human.

#### I. はじめに

人間の健康に対するラドンのリスク評価において、その数量的根拠の多くは疫学研究と動物実験研究に基づいている。疫学については、従来から主にウランその他の地下鉱山労働者に関するコホート調査が行われており、これらの多くの疫学研究から、ラドンとその子孫核種(以下、ラドンと略)への長期曝露により肺がんが誘発されることが明らかになっている。直接人間を対象としたこれらの疫学データが、ラドンのリスク推定における重要な情報源となっていることはいうまでもない。しかしながら、疫学調査のデータからリスクを正確に数量化するにあたっては、曝露量や他要因との交互作用などに関する不確実性、標本数の不足、コホート期間中の曝露条件の変化など多くの問題を伴い、これらの問題が結果としてリスク推定値に大きな幅を生じさせている。このような疫学研究の限界や欠点を補うアプローチ

として、一般に曝露条件やその他の要因を十分に制御した動物実験研究が行われている。動物実験研究における主な課題としては、ラドンの吸入モデルやドジメトリーの検討、生体影響のメカニズムの解明などが挙げられるが、とくに数量的なリスク評価や疫学データとの直接的比較などの点からは、多数の動物個体を用いたラドンの長期曝露実験が重要である。これらの実験では、ラドンに曝露させたラットやイヌなどの死亡時における肺がん発生の有無を調べ、線量反応関係、線量率効果、他要因との複合効果などの解析を行うことが中心的テーマとなっている。このような長期曝露実験は主にフランス、アメリカ、イギリスなどで行われている。これまでに行われたラドン曝露に関する動物実験の概要はCross、Monchauxらにより詳しく紹介されている<sup>1,2,3,4)</sup>。本報告では、数量的なリスク評価という観点から動物実験の現状を概観し、さらに動物実験データのヒト集団におけるリスク評価への応用などについて考察する。

## II. 動物実験の概要

現在、ラドン影響に関する大規模な長期曝露動物実験は、主にフランスの原子力庁(Commissariat à l'Énergie Atomique、CEA)および核燃料公社(Compagnie Générale des Matières Nucléaires、COGEMA)、アメリカのPacific Northwest National Laboratory(PNNL)、イギリスのAEA Technologyなどで行われているが(Table 1)、実験の規模やデータの集積量などの点から、CEA-COGEMA(共同研究)とPNNLの動物実験データが最も重要な情報源となっている。いずれも動物としては主にラット(CEA-COGEMAではspecific-pathogen-free(SPF)Sprague-Dawley、PNNLではSPF Wistar)が用いられており、PNNLではその他にビーグル犬やハムスターなども用いられている。ラットの個体数からいえばCEA-COGEMAの実験が最も大規模であり、この一連の研究では、総数15,000匹以上のラットについて、ラドンとその娘核種を吸入曝露させた後死亡時に病理解剖が行われている。その他、タバコ、ディーゼル排気ガス、鉍物ダストなどの同時曝露実験も行われている。以下では主にCEA-COGEMAの実験データについて、ラドン曝露による肺がんリスクの数量的な影響評価という観点から、線量反応関係、線量率効果、他要因との交互効果などを中心にその概要を述べる。

Table 1 Main animal experiments of radon-induced lung cancer.

Laboratory	Animal	Number of animals	Cumulative exposure(WLM)
CEA-COGEMA(France)	Rat	15000	25~10000
PNNL (USA)	Beagle dog	100	80~10000
	Hamster	800	
	Rat	6000	
AEA Technology(UK)	Rat	2000	100~3000

## 1. 線量反応関係

ラドンを吸入したラットに発生する肺がんは主に扁平上皮癌(squamous cell carcinoma)、腺癌(adenocarcinoma)、細気管支肺胞上皮癌(bronchiolo-alveolar carcinoma)であり<sup>3)</sup>、これらの肺がん発生率は、蓄積曝露量25～3000WLM\*の範囲で、曝露量に比例して増加(約2%～35%)している<sup>3,4,5)</sup>。これらの直線的な線量反応関係は、疫学データ(蓄積曝露量120～360WLM)とも近似していることが指摘されている<sup>4,5)</sup>。さらに高い曝露量3000～10000WLMの範囲では、ラットに著しい寿命短縮が見られたため、肺がん発生率の低下が見られている<sup>3,4,5)</sup>。いずれにしても、蓄積曝露量25～3000WLMの範囲ではとくに直線的な線量反応関係を否定する材料はない。

## 2. 線量率効果

蓄積曝露量200WLM以上の実験では、吸入室内のラドン濃度は1200～3500WLで、線量率効果は必ずしも系統的に考慮されていない。そのため、肺がん発生率には線量率に応じて変動が見られる。例えば、蓄積曝露量3000WLMの場合でも曝露条件によって肺がん発生率は25%から80%までの幅があり、このような高線量の場合、同じ蓄積曝露量でも線量率が低く、かつ長期間にわたる曝露の方が、肺がん発生率が増加する傾向が認められている<sup>2,4,5)</sup>。一方、低線量(蓄積曝露量25WLM)の場合、同じ蓄積曝露量で、高濃度(100WL)曝露の方が低濃度(2WL)に比べて肺がん発生率が増加している<sup>6,7)</sup>。これらの傾向は生物物理学的なアプローチによっても見られ、高曝露量域ではいわゆる逆線量率効果が認められるものの、比較的低い曝露量ではそのような効果がないことが示唆されている<sup>8,9)</sup>。

## 3. 他要因との複合効果

ラドンの肺がん誘発に関する修飾要因として、タバコ、鉱物ダスト、ディーゼル排気などの環境中諸因子の影響についても曝露実験が行われている<sup>5,10,11,12,13,14)</sup>。CEA-COGEMAの実験では、これらの修飾要因のうち、ラドンとタバコの複合効果が最も顕著で、とくにラドン曝露(1600WLM)後に喫煙成分を約350時間吸入した場合に肺がん(主に扁平上皮癌)発生が明らかに増加している<sup>5)</sup>。ただし、喫煙後にラドンに曝露した場合はリスクの増加は見られていない。PNNLでもビーグル犬を用いてラドンとタバコの複合効果が調べられているが、明確なリスク増加は認められていない<sup>15)</sup>。その他、ディーゼルやオゾンなどについても肺がんリスクを増加させる傾向が認められているものの、いずれも統計的有意差は検出されておらず、確実な結論を得るには至っていない。

## Ⅲ. 動物実験データを用いたリスク評価

数量的なモデルを用いて動物実験データを解析することによってリスク係数(リスクの増加を何らかの数量として表現した値)を算出することができ、その値によって疫学データとの比較や複数の動物実験データ間の比較などが可能となる。このような数量的モデルには一般に2種類考えられる。1つは疫学データを解析する場合に用いられる統計学的モデルであり、もう1つは生体反応のメカニズムに基づく生物学的モデルである。

\*Working Level Month の略。慣例でラドン娘核種の濃度はWorking Level(WL)で測られる。 $1WL = 20.8 \times 10^{-6} \text{J/m}^3$ 、 $1WLK = 3.5 \times 10^{-3} \text{Jh/m}^3$

## 1. 統計学的モデル

ラドン曝露動物実験データの解析においては、まず、様々な条件下でラドン等の要因に曝露することによって肺がん発生率が有意に増加するかどうかを統計学的に検討している。この最初のアプローチは通常の統計的検定などの手法が用いられている。

一方、これらの動物実験では一般に個体が死亡するまでの時間が観察されており、この生存時間データを用いてリスクを推定する方法も従来から多く用いられている。通常の実験では、死亡時間  $t$  にがん発生の有無を観測したとしても、時間  $t$  以前のどの時点で発生したかはわからない。このようなデータに関しては、ハザード関数などを使ったモデルが考えられる。実際に、Lafumaらは累積ハザード関数にいくつかの形を仮定し、実験データから最尤法によりパラメータを求め、ラドンおよび中性子線曝露による肺ガン発生について比較解析を行っている<sup>16,17,18,19)</sup>。その結果、1mGyあたり1~3WLMという変換係数が適当であることを示唆している。ただし、これらの値は実験によって異なりWLMから吸収線量(Gy)への変換係数を求めることは、実験的研究において重要な課題の一つであるといえる。また、Monchauxらは、鉍物ダストによるラット中皮腫の発生に関する実験において、曝露から腫瘍発生までの時間を考慮して、腫瘍発生率につき、3パラメータのワイブル分布を仮定している<sup>20)</sup>。Pikeらは、この分布を、細胞ががん化するまでの時間をモデル化したものと考えている<sup>21)</sup>。被曝からがん発生までの潜伏期間や、がん発生までの段階数などのパラメータを検討するためには、一般に、生存時間に何らかの分布を仮定した方がよいと思われる。筆者らは、累積ハザード関数に共変量をとり入れたモデルを適用して、ラドンとその他の修飾要因の影響などについて検討している<sup>22,23)</sup>。さらに、PNNLのデータを用いたGilbertらの最近の研究では、線量率を考慮したモデルが適用され、蓄積曝露量1000WLM以下で腺扁平上皮癌の発生に関して逆線量率効果があることが示唆されている<sup>25)</sup>。その他統計学的モデルを用いた解析から、WLM単位あたりのラットにおける肺がん発生のリスク係数(相加モデルを仮定した場合の生涯にわたるリスクの増加)は実験によって変動が大きいものの、およそ $1 \times 10^{-4} \sim 9 \times 10^{-4}$ であり、疫学データと比較的近いことが示唆されている(Table 2)。このような統計学的モデルを用いた解析では、生物学的メカニズムは厳密には考慮されていない。したがって、モデルの選択にあたっては単に実際のデータとの適合度が問題となることが多い。

Table 2 Risk factor of lung cancer throughout the life span per cumulative exposure.

Animal	Range of cumulative exposure (WLM) in which lung cancer risk increased	Risk factor (WLM <sup>-1</sup> )
Rat	25~3000	$1 \sim 9 \times 10^{-4}$
Dog	13000~15000	$0.3 \sim 2 \times 10^{-5}$
Human	100~1000	$1 \sim 4 \times 10^{-4}$

## 2. 生物学的モデル

生物学的な発がんのメカニズムを考慮したモデルとして変異細胞の増殖過程を表わす2段階発がんモデル(MVK\*モデル)が知られており、ラットにおけるラドン曝露による肺がん発生についてもこのモデルあるいはその修正モデルが実際のPNNLのデータによくあてはまることが示されている<sup>25,26)</sup>。これらの解析の結果、1段階目の変異率がラドンの線量率に強く依存することが示唆されている。ラドンの生体影響に関しては、現在のところ、このモデル以外に実際のデータを十分に説明し得る生物学的モデルは提案されていない。

## IV. 考察

これまでに行われたラドン影響に関する動物実験では、肺がん増加が認められている最低の蓄積曝露量は25WLMである。この量は近年のウラン鉱山労働者の生涯曝露量に相当すると考えられている。ヒトの居住環境では曝露量はさらにこの100分の1から1000分の1というオーダーである。また、動物実験で設定されている空気中ラドン濃度は最低で2WLであるが、ウラン鉱山での濃度は一般に0.1WL以下である。しかもラットの実験では、蓄積曝露量25WLM、濃度2WLの条件下で有意な肺がん発生増加は認められていない。したがって、ヒトへの健康影響を考える際に25WLM以上の曝露量で推定されたリスクがそれ以下の曝露量へ適用できるかどうかということが問題となってくる。しかし、このような低曝露量における疫学データが存在しない以上、動物実験データからリスクを推測するしか方法はない。その際、a) 個体数を増やして低曝露量における統計的検出力を大きくする、または、b) 数量的なモデルの精度を上げて高曝露量のデータから低曝露量へ外挿する、という2種類のアプローチが考えられる。前者については、単に蓄積曝露量だけでなく曝露時間、濃度、曝露時年齢、その他の修飾要因など条件が多岐にわたるため、効率的な実験デザインを計画しなければ膨大な個体数が必要になってくるであろう。一方、後者については、前述のとおり統計学的モデルと生物学的モデルの2つが考えられるが、いずれにも利点と欠点があるように思われる。例えば、統計学的モデルは、生物のメカニズムを厳密に考慮せず、主にデータとの適合度を基準にしてモデルを選択するため、合理的に説明できない不確実な部分を常に多く残している。しかしながら、疫学研究とは多くの指標を共有するので実際のヒトのデータとの比較が容易である。また、統計学的モデルに関する動物実験と疫学との相違は、前者の方に既知のパラメータ(実験条件としてあらかじめ設定してある)が多いという点である。一方、生物学的モデルについては、最新の分子生物学的あるいは遺伝学的知見をモデル化することにより、生物現象を合理的に説明することができる。しかし、発がんの有無や死亡という現象は個体レベルでの反応であり、分子や細胞レベルの反応からさらに複雑な過程を経ていると考えられる。したがって、疫学データとの比較において、結局は実際のデータとの適合度でそのモデルの選択の可否を決定することになりがちである。いずれにしても、最新の生物学的知見を考慮しつつ両者のモデルが互いに接近するかまたは補完しあうことによってモデルの精度が上がると考えられる。

低曝露量での疫学データは、一般に変動が大きく正確な結論を得ることが難しい。したがって、諸条件を十分に制御した動物実験によってこの疫学データを補うことができる。しかし、ヒトと実験動物との間にはいうまでもなく生物種差が存在し、実験動物での反応がそのままヒトにおける現象を反映して

\*発案者のMoolgavkar, Venzon, Knudsonの頭文字。



いるとは限らない。ただし、いくつかの条件を考慮することにより、動物実験データをヒトの反応の近似、すなわちモデルとして考えることができ、その近似の程度を良くすることが動物実験において重要な課題であると思われる。そのためのアプローチとしては、まず生物としての感受性に関する種差を定量的に把握するなどの方法がある<sup>27)</sup>。例えば、ラドンによる発がん影響において年齢要因が重要であればラットとヒトとの比較の際に、そのリスクを年齢で補正する必要がある。ラドンのリスク評価のためのモデルとしてはラットが最も多く用いられており、その根拠は、年齢に依存する自然発生の発がんのパターンがヒトと類似していること、とくに肺がんに関しては好発時期や悪化の速度が似ており、とくにラットの肺がんの中で最も頻度の高い扁平上皮癌についてはその組織像がヒトの場合ときわめて類似していること、その他、個体数をそろえやすいこと、寿命が数年であること、大きさが適当であること、などである。さらに、ラットを用いた実験データの正確性を高めるためには、ラドン娘核種の気道への吸着メカニズムや、WLM単位の線量としての精度、WLMから吸収線量(Gy)への変換係数、線量率の影響など、解明すべき点は多い。また、呼吸気道における被曝量は、環境要因と生物側の要因とが互いに密接に関連するため、生物学と物理学あるいは工学などの各分野の協力が必須であると考えられる。これらの問題は当然ラドン吸入による発がんのメカニズムと強く関係し、その解明が動物実験のヒトへの適用において重要な根拠になるであろう。

## V. 結論

動物実験は、ヒトにおける反応を厳密に再現するものではないが、疫学研究では得られない様々な情報を提供しており、ラドンのリスク評価全体の精度を高めるために、きわめて重要な役割を担っている。しかし動物実験データをヒト集団のリスク評価へ適用するためには、一般に2種類の外挿の問題がある。第1は高線量のデータから低線量への外挿であり、第2は実験動物のデータからヒトへの外挿である。前者については、低線量域でのデータが得られない場合には、データへの適合度が高くかつ生物学的メカニズムを合理的に説明しうる数値的モデルを当てはめて外挿するほかない。後者については、ヒトと実験動物との種差による感受性の差異(類似性)を定量的に把握して補正を行うなどのアプローチが考えられる。さらに、リスク評価を行う上では、いずれの外挿においても、実験から得られる様々な定量的情報(例えば生存時間など)を有効に利用すべきである。

ラットを用いた動物実験がヒトのラドンに対する反応をどの程度正確に近似しているかについては、今のところその精度を測る決定的な方法はない。しかし、実験動物の選択については、現時点ではラットが最も適切であると考えられている。ラドンのリスク評価におけるヒトのモデルとしての動物実験には、なお改善の余地が多いものの、線量率効果や複合効果など既に多くの重要な知見が得られており、ヒトの反応について多くの示唆を与えている。さらに動物実験データを十分に活用するためには、ドジメトリーや生物学的メカニズムの解明などが今後大きな課題になってくると考えられる。

## 参考文献

- 1) 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. In "Indoor Radon Exposure and Its Health Consequences", J. Inaba, H. Yonehara and M. Doi ed., Kodansya Scientific, Tokyo, 85-105(1999)

- 2) F. T. Cross : Radon Inhalation Studies in Animals—Radon literature survey series. DOE/ER-0396(1988)
- 3) COGEMA : Radon—Trente ans de recherches sur ses effets biologique à doses élevées. COGEMA, Vélizy-Villacoublay(1994)
- 4) G. Monchaux and P. Duport : Health effects of inhaled radon progeny. *Radioprotection*, **32**, C1-351-358(1997)
- 5) G. Monchaux, J. P. Morlier, M. Morin, J. Chameaud, J. Lafuma and R. Masse : Carcinogenic and cocarcinogenic effects of radon and radon daughters in rats. *Environ. Health Perspectives*, **102**(1), 64-73(1994)
- 6) J. P. Morlier, M. Morin, G. Monchaux, P. Fritsch, J. F. Pineau, J. Chameaud, J. Lafuma and R. Masse : Lung cancer incidence after exposure of rats to low doses of radon : influence of dose rate. *Radiat. Protect. Dosim.*, **56**,93-97(1994)
- 7) G. Monchaux, J. P. Morlier, S. Altmeyer, M. Debroche and M. Morin : Influence of exposure rate on lung cancer induction in rats exposed to radon progeny. *Radiat. Res.*, **152**, S137-S140(1999)
- 8) D. J. Brenner and E. J. Hall : The inverse dose-rate effect for oncogenic transformation by neutrons and charged particles. A plausible interpretation consistent with published data. *Int. J. Radiat. Biol.*, **58**, 745-758(1990)
- 9) D. J. Brenner : The significance of dose rate in assessing the hazards of domestic radon exposure. *Health Phys.*, **67**, 76-79(1994)
- 10) J. Bignon, G. Monchaux, J. Chameaud, M. C. Jaurand, J. Lafuma and R. Masse : Incidence of various types of thoracic malignancy induced in rats by intrapleural injection of 2mg of various mineral dusts after inhalation of <sup>222</sup>Rn. *Carcinogenesis*, **4**, 621-628(1983)
- 11) W. E. Michell, J. S. Jackson and B. Heinmiller : Inhaled uranium ore dust and lung cancer risk in rats. *Health Phys.*, **76**, 145-155(1999)
- 12) G. Monchaux, J. P. Morlier, J. Trédaniel, P. Rochefort, M. Morin and R. Maximilien : Cocarcinogenic effects in rats of combined exposure to radon and ozone. *Environ. Int.* **22**, Suppl. 1, S909-S915(1996)
- 13) G. Monchaux, J. P. Morlier, P. Fritsch, P. Rochefort, E. Douriez, M. Morin and R. Maximilien : Cocarcinogenic effects of various agents in rats following exposure to radon and radon daughters. *Environ. Int.* **22**, Suppl. 1, S917-S925(1996)
- 14) G. Monchaux, J. P. Morlier, M. Morin, R. Zalma, H. Ogata, H. Pézerat and R. Masse : Carcinogenic effects on rats of exposure to different minerals from metallic mine ores, radon and radon daughters. In "*Cellular and Molecular Effects of Mineral and Synthetic Dusts and Fibres*", NATO ASI Series, Vol. H85, J. M. G. Davis and M. C. ed. Jaurand, Springer-Verlag, Berlin pp 159-164(1994)
- 15) F.T. Cross, R.F. Palmer, R. E. Filipy, G.E. Dagle and B. O. Stuart : Carcinogenic effects of radon daughters, uranium ore dust and cigarette smoke in beagle dogs. *Health Phys.*, **42**, 33-52(1982)
- 16) D. Chmelevsky, A. M. Kellerer, J. Lafuma and J. Chameaud : Maximum likelihood estimation of the prevalence of nonlethal neoplasms. —An application to radon-daughter inhalation studies. *Radiat. Res.*, **91**, 589-614(1982)
- 17) D. Chmelevsky, A. M. Kellerer, J. Lafuma, M. Morin and R. Masse : Comparison of the induction of pulmonary neoplasms in Sprague-Dawley rats by fission neutrons and radon daughters. *Radiat. Res.*, **98**, 519-535(1984)
- 18) J. Lafuma, D. Chmelevsky, J. Chameaud, M. Morin, R. Masse and A. M. Kellerer : Lung carcinomas in Sprague-Dawley rats after exposure to low doses of radon daughters, fission neutrons or  $\gamma$  rays. *Radiat. Res.*, **118**,

230-245(1989)

- 19) D. Chmelevsky and M. Morin : Mathematical methods in the analysis of animal experiments. *Radiat. Environ. Biophys.*, **30**, 253-257(1991)
- 20) G. Monchaux, J. Bignon, M. C. Jaurand, J. Lafuma, P. Sébastien, R. Masse, A. Hirsch and J. Goni : Mesotheliomas in rats following inoculation with acid-leached chrysotile asbestos and other mineral fibres. *Carcinogenesis*, **2**, 229-236(1981)
- 21) M. C. Pike : A method of analysis of a certain class of experiments in carcinogenesis. *Biometrics*, **22**, 142-161(1966)
- 22) H. Ogata and G. Monchaux : Weibull distributions for radiation risk analysis in animal experiments. *Jap. J. Risk Analysis*, **6**, 74-78(1994)
- 23) H. Ogata, J. P. Morlier and G. Monchaux : Survival models in the analysis of radiation carcinogenesis experiments. Abstracts of the 34th Annual Meeting of Japan Health Physics Society, Ohita, 22(1999)
- 24) E. S. Gilbert, F. T. Cross and G. E. Dagle : Analysis of lung tumor risks in rats exposed to radon. *Radiat. Res.*, **145**, 350-360(1996)
- 25) S. H. Moolgavkar, F. T. Cross, E. G. Luebeck and G. E. Dagle : A two-mutation model for radon-induced lung tumors in rats. *Radiat. Res.*, **121**, 28-37(1990)
- 26) W. F. Heidenreich, P. Jacob, H. G. Paretzke, F. T. Cross and G. E. Dagle : Two-step model for the risk of fatal and incidental lung tumors in rats exposed to radon. *Radiat. Res.*, **151**, 209-217(1999)
- 27) 緒方裕光 : 動物実験のヒトへの外挿. *保健物理*, **34**(2), 142-145(1999)

第27回放医研環境セミナープログラム  
「ラドン、その人間への影響まで」

主催：放射線医学総合研究所

共催：日本保健物理学会

開催日：平成11年12月2日（木）・3日（金） 場所：放射線医学総合研究所大会議室

第1日目 平成11年12月2日（木）

10:00~10:05 開会の辞 佐々木康人（放医研所長）  
10:05~10:10 共催学会長挨拶 石黒 秀治（保健物理学会長）  
10:10~10:15 経緯と目的 下 道國（放医研）

■セッションⅠ ラドン計測技術

座長：西川 嗣雄（福井大）

10:15~10:40 測定法の現状 演者：児島 紘（東理大）  
10:40~11:05 測定値の品質保証 演者：山崎 敬三（京大）  
11:05~11:30 これからのラドン計測 演者：床次 眞司（放医研）  
11:30~11:45 セッション討論

■特別講演Ⅰ

座長：中村 清（放医研）

11:45~12:35 水文学におけるラドン 講師：堀内 公子（大妻女子大）

■セッションⅡ わが国のラドン濃度

座長：小村 和久（金沢大）

13:35~14:00 屋内ラドン濃度の全国調査 演者：真田 哲也（分析セ）  
14:00~14:25 屋内ラドン濃度の地域特性 演者：藤元 憲三（放医研）  
14:25~14:50 職業環境におけるラドン濃度 演者：服部 隆利（電中研）  
14:50~15:15 屋外ラドン濃度の地域特性 演者：古田 定昭（サイクル機構）  
15:15~15:30 セッション討論

■セッションⅢ 最近の話題

座長：坂下 哲哉（放医研）

15:40~16:00 地震とラドン 演者：安岡 由美（神薬大）  
16:00~16:20 台風とラドン 演者：H. Climent（放医研）

-Correlation analysis applied to indoor radon concentration and meteorological parameters-

16:20~16:40 水とラドン 演者：田阪 茂樹（岐阜大）  
16:40~17:00 送電線とラドン 演者：三枝 純（原研）  
17:00~17:15 セッション討論

第2日目 平成11年12月3日(金)

- セッションⅣ トロン問題  
座長：飯田 孝夫(名大)  
9:30~9:55 環境中のトロン濃度と性状・挙動 演者：山崎 直(中部電)  
9:55~10:20 トロンによる線量寄与 演者：米原 英典(放医研)  
10:20~10:30 セッション討論
- セッションⅤ 被曝線量評価  
座長：甲斐 倫明(大分看護大)  
10:30~10:55 線量評価法 演者：下 道國(放医研)  
10:55~11:20 わが国の線量評価値 演者：飯本 武志(東大)  
11:20~11:45 線量評価と生物学的パラメータ 演者：石樽 信人(放医研)  
11:45~12:00 セッション討論
- 特別講演Ⅱ  
座長：小木曾洋一(放医研)  
13:00~13:50 ラドン吸入曝露による肺がんと  
喫煙等複合因子並びに低線量率  
による修飾  
講師：G. Monchaux (CEA)  
-Radon-induced lung cancers in rats : influence of dose-rate  
and of combined exposure to tobacco smoke and other agents-
- セッションⅥ 被曝影響  
座長：酒井 一夫(電中研)  
13:50~14:15 BEIRⅥにみるラドン影響の考え方 演者：土居 雅広(放医研)  
14:15~14:40 三朝地区における疫学調査 演者：祖父江友孝(国立がんセ)  
14:40~15:05 環境放射線による染色体異常 演者：早田 勇(放医研)  
15:05~15:30 動物実験の現状 演者：緒方 裕光(公衛院)  
15:30~15:45 セッション討論
- 総合討論  
座長：下 道國、藤元 憲三(放医研)  
15:55~16:45 コメンテーター：早川 博信(福井監セ)、秋葉 澄伯(鹿大)  
石川 雄一(癌研究会)、山田 裕司(放医研)  
16:45~16:55 総括 下 道國(放医研)  
16:55~17:00 閉会の辞 河内 清光(放医研)

## 平成11年度放医研環境セミナー実行委員会

委員長	下 道國	内部被ばく・防護研究部長
委員	早田 勇	障害基盤研究部長
ク	小泉 彰	内部被ばく・防護研究部第1研究室長
ク	石樽 信人	内部被ばく・防護研究部第2研究室長
ク	小木曾洋一	内部被ばく・防護研究部第3研究室長
ク	山田 裕司	内部被ばく・防護研究部第4研究室長
ク	藤元 憲三	人間環境研究部長
ク	床次 眞司	人間環境研究部第一研究室
ク	土居 雅広	第4研究グループ主任研究官
ク	藤高 和信	国際宇宙放射線医学研究センター総合研究官
ク	中原 元和	那珂湊放射生態学研究センター主任研究官

放医研環境セミナーシリーズ No.27

ラドン、その人間への影響まで

---

平成12年11月発行

編 集 下 道國・山田 裕司

---

放射線医学総合研究所

〒263-8555 千葉県稲毛区穴川4-9-1

電話 043-251-2111