

ガンマ線照射によって歯中に生成する炭酸ラジカルの測定

Measurement of carbonate radicals in teeth induced
by gamma-ray irradiation

山下 琢磨¹⁾

Takuma YAMASHITA

¹⁾ 東北大学

(概要)

2011年の福島第一原子力発電所事故後、被災区域での被ばくや、廃炉作業を含む放射線業務従事者の「低線量率での慢性的な被ばく」に対する社会的関心が高まっている。これまでの放射線生物学研究は主として高線量率での被ばくに厚く、低線量率での慢性的な被ばくに対する知見は不足している。我々は、被災区域で捕獲された野生動物について生物への放射線影響を調査する上で、各個体の正確な被ばく線量推定は重要な課題である。

歯のエナメル質では、放射線によって生じる炭酸ラジカルが長期間安定に存在し、これを指標として外部被ばく線量の積算値を決定することができる。この方法は原爆被曝者の被ばく線量評価などに適用例があるが、数十 mGy 程度の被ばく線量評価を可能にするため、試料の調製方法・測定方法・解析方法を含めた種々の改良を進めてきた。

本研究では、野生のニホンザルの歯エナメル質を粉体に砕いた試料に放射線標準施設 (FRS) ⁶⁰Co 照射装置でガンマ線を照射し、電子スピン共鳴 (ESR) 法によって炭酸ラジカルを定量した。測定精度向上のための測定条件を検討し、野生動物の被ばく線量推定のための精密な検量線を作成した。

キーワード：被ばく線量推定、ガンマ線、電子スピン共鳴法、炭酸ラジカル

1. 目的

2011年の福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故により、環境中に放射性物質が放出された。この事故に関係する地域での被ばくは、低線量率ではあるが長期間の慢性的な被ばくという特徴があり、これまでの放射線生物学研究で主に研究されてきた短期間・高線量率とは異なる条件である。我々は、FDNPP 事故の旧警戒区域付近で害獣駆除されたニホンザルについて、各個体の生体組織の放射線影響と被ばく線量推定を進めている [1-7]。歯のエナメル質の主成分であるヒドロキシアパタイト ($\text{Ca}_{10}(\text{OH})_2(\text{PO}_4)_6$) には不純物として微量の炭酸イオンが含まれ、これが放射線の暴露を受けると吸収線量に比例して長寿命 (10^7 年) の炭酸ラジカルに変化することが知られている [8]。炭酸ラジカルの量は、電子スピン共鳴 (ESR) 測定で定量でき、被ばく線量の推定法となる (以下、ESR 線量測定法と呼称する)。ESR 線量測定法は、行動範囲が不明な野生動物各個体の累積の被ばく線量を推定する上で有力な方法である。

これまで、ESR 線量測定法は原爆の被曝者等の高線量被ばくの事例 [9-12] に適用されてきた。本研究で対象とする低線量被ばくでは、歯に生来存在する有機ラジカルの成分と競合し、定量が難しかったが、試料調製法の改良などにより検出限界を利用可能なレベルまで改善してきた [13-15]。本研究では、炭酸ラジカル成分を効率よく定量するための条件を検討するため、FDNPP 事故の影響が小さい地域で捕獲されたニホンザルの歯エナメル質にガンマ線を照射した照射した試料を作成し、ESR 測定条件を調べた。

2. 方法

ニホンザルの歯を砕き、重液分離によってエナメル質と象牙質を分ける。これを洗浄・乾燥後、プラスチックのマイクロチューブに封入し、試料とした。また、有機物を含まない比較試料として、歯科治療のインプラント材に使用される人工骨材料（アパセラムデンタル、HOYA 製）を粉体に砕いた試料を同様のマイクロチューブに封入し、試料とした。

複数の試料に均一にガンマ線照射を行うため、アクリル製の試料ホルダー内に試料を配置し、300 mGy/h で最大 7 時間、放射線標準施設の ^{60}Co 照射装置による照射を行った。

照射後の試料は石英管に移し、ESR 装置（日本電子株式会社 (JEOL Ltd.) 製 JES-X320）で測定を行った。ESR 測定のマクロ波パワーを 0.2 から 50 mW まで変更しながら行い、各ラジカルのシグナル強度のマクロ波パワーへの応答挙動を調べた。

3. 結果及び考察

ESR スペクトルは 331 mT から 341 mT の範囲で磁束密度 H を掃引しながら測定した。ESR 測定において、マイクロ波の共鳴吸収は $g\beta H = h\nu$ の条件が満たされるときに起こる。ここで、 g はラジカル固有の g 因子、 β はボーア磁子、 H は磁場（磁束密度）、 h はプランク定数、 ν はマイクロ波の周波数である。ESR の測定時は、 ν を固定して H を掃引するが、測定ごとに ν はわずかに変動する。共鳴吸収の式は ν と H に依存するため、 H の代わりに無次元量 $h\nu/\beta H$ を横軸に取ると、異なる測定間の比較に都合がよい。

図 1（左）に、ガンマ線を 2000 mGy 照射したエナメル質試料の ESR スペクトルを、ガンマ線を照射していない試料（以下、0 mGy と表記する）の ESR スペクトルと比較した。マイクロ波パワーは 2 mW とした。両者の差分を青線で示した。ガンマ線の照射によってスペクトル構造は複雑になる一方、信号強度の最在地は小さくなっている。これは、ESR スペクトルがマイクロ波吸収スペクトルの 1 次微分形で得られること、生来の有機ラジカルの成分を打ち消す位置に炭酸ラジカルの成分が現れることに由来している。

炭酸ラジカルの g 因子は非等方的で $g_1 = 2.0023$, $g_2 = 2.0036$, $g_3 = 1.9975$ と知られている[16,17]。2000 mGy 照射試料と未照射試料の差分を見ると、これらの成分の他、2.005 付近にも構造が見られ、炭酸ラジカル以外の成分がわずかに誘起されたものと考えられる。

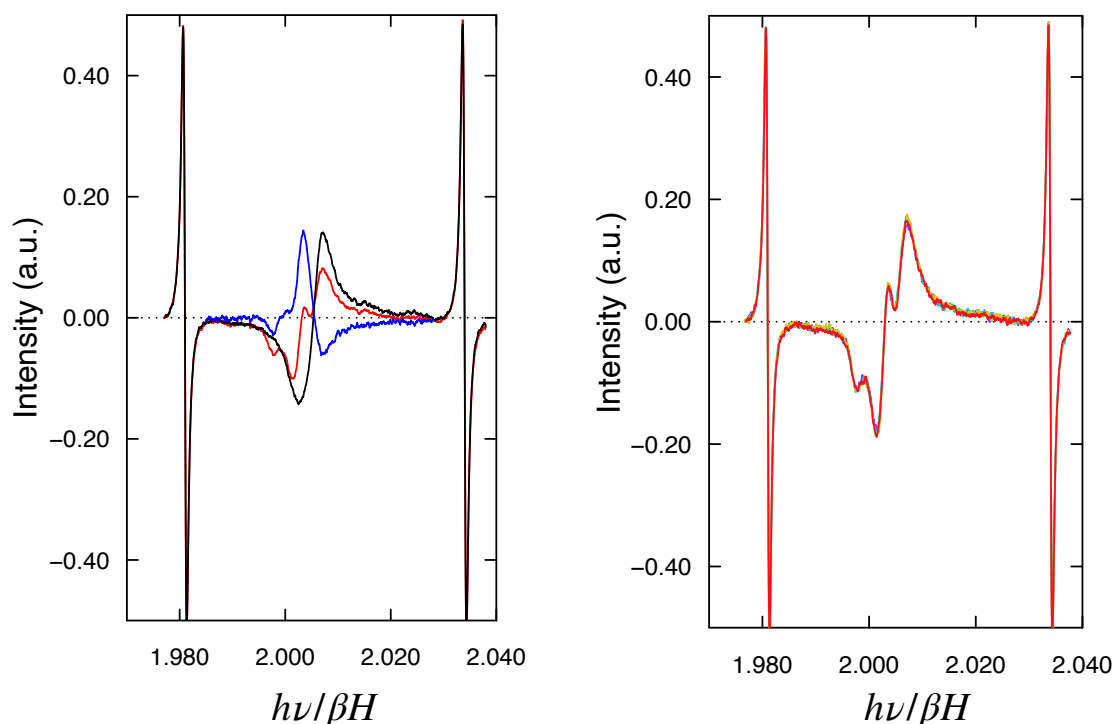


図 1（左）2000 mGy 照射したエナメル質の ESR スペクトル（赤線）、未照射試料のスペクトル（黒線）、両者の差分（青線）。（右）90 度ずつ試料を回転させて測定した結果。

エナメル質試料は1 mm以下の粒径であるが、必ずしも粉体とはいえないため、ESR測定時の試料設置角度に対するスペクトルの依存性を調べた。図1(右)に、2000 mGy照射した試料を90度ずつ回転させて測定した結果を示す。どの角度においてもほとんど同一のスペクトルが得られたことから、本研究で調製した試料の配向依存性は考慮する必要が無く、粉末スペクトルとして解析可能であることが示された。

マイクロ波を吸収したラジカルは、スピン-格子緩和およびスピン-スピン緩和によって脱励起する。マイクロ波パワーを大きくすると、吸収量も増加し、ESRスペクトルの振幅も大きくなるが、ある程度大きなマイクロ波強度ではESRスペクトルの振幅は飽和し、やがて減衰することが知られている[18,19]。本研究では、マイクロ波パワーを掃引し、有機ラジカルと炭酸ラジカルの振幅の飽和挙動を調べた。

2000 mGy照射試料を用いて測定すると、有機ラジカルはピーク高さが $P=1$ mW程度で極大を持ち、その後減衰した。一方、炭酸ラジカルは16 mW程度まで緩やかにピーク高さが増加し、その後減衰した。有機ラジカルに対する炭酸ラジカルのピーク高さの比は、マイクロ波パワーに対して単調に増加したことから、マイクロ波パワーを増加すると炭酸ラジカル成分をより検出しやすくなることが期待される。信号強度の飽和はラジカル量が少ないほど小さい P で起こるため、定量においてはシグナル強度が $P^{1/2}$ に比例する領域で行うことが望ましい[20]。本研究で用いたESR装置においてニホンザルの歯を用いたESR線量測定法では3-4 mW程度が適切であると判明した。

現在、最適化した測定条件での検量線作成を進めており、結果の一部はすでに第25回「環境放射能」研究会にて報告した。

4. 引用(参照)文献等

- [1] K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *Scientific Reports* **6**,24077, 2016.
- [2] Y. Urushihara, K. Kawasumi, S. Endo, K. Tanaka, Y. Hirakawa, G. Hayashi, T. Sekine, Y. Kino, Y. Kuwahara, M. Suzuki, M. Fukumoto, H. Yamashiro, Y. Abe, T. Fukuda, H. Shinoda, E. Isogai, T. Arai, and M. Fukumoto, *PLOS ONE* **11**, 1, 2016.
- [3] M. Morimoto, A. Kato, J. Kobayashi, K. Okuda, Y. Kuwahara, Y. Kino, Y. Abe, T. Sekine, T. Fukuda, E. Isogai, and M. Fukumoto, *BMC Veterinary Research* **13**, 337, 2017.
- [4] K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, Y. Urushihara, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *Journal of Environmental Radioactivity* **183**, 1, 2018.
- [5] Y. Urushihara, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Ohtaki, Y. Kuwahara, M. Suzuki, T. Uno, S. Fujita, A. Saito, H. Yamashiro, Y. Kino, T. Sekine, H. Shinoda, and M. Fukumoto. *Scientific Reports* **8**, 16748, 2018.
- [6] T. Ohdaira, K. Meguro, K. Komatsu, R. Syoji, Y. Fujishima, V. S. T. Goh, K. Kasai, K. Ariyoshi, A. Nakata, Y. Urushihara, K. Koarai, Y. Kino, T. Sekine, M. Suzuki, A. Takahashi, Y. Shimizu, H. Shinoda, M. A. Yoshida, M. Fukumoto, H. Yamashiro, and T. Miura, "Ionizing and Non-ionizing Radiation", Cahp. 9. IntechOpen, Rijeka, 2019.
- [7] M. Morimoto, J. Kobayashi, and Y. Kino, *Scientific Reports* **12**, 18653, 2022.
- [8] H.P. Schwarcz. *Nuclear Tracks and Radiation Measurement* **10**, 865, 1985.
- [9] M. Ikeya, J. Miyajima, and S. Okajima, *Japanese Journal of Applied Physics* **23**, L697, 1984.
- [10] A.A. Romanyukha, E.A. Ignatiev, D.V. Ivanov, and A.G. Vasilyev, *Radiation Protection Dosimetry* **86**, 53, 1999.
- [11] V.G Skvortsov, A.I Ivannikov, V.F Stepanenko, A.F Tsyb, L.G Khamidova, A.E Kondrashov, and D.D Tikunov, *Applied Radiation and Isotopes* **52**, 1275, 2000.
- [12] Y. Hirai, Y. Kodama, H. M. Cullings, C. Miyazawa, and N. Nakamura, *Journal of Radiation Research* **52**, 600, 2011.
- [13] T. Oka, A. Takahashi, K. Koarai, Y. Mitsuyasu, Y. Kino, T. Sekine, Y. Shimizu, M. Chiba, T. Suzuki, K. Osaka, K. Sasaki, Y. Urushihara, S. Endo, M. Suzuki, H. Shinoda, and M. Fukumoto, *Radiation Measurements* **134**, 106315, 2020.
- [14] T. Oka, A. Takahashi, K. Koarai, Y. Kino, T. Sekine, Y. Shimizu, M. Chiba, T. Suzuki, K. Osaka, K. Sasaki, and H. Shinoda, *Journal of Radiation Research* **63**, 609, 2022.
- [15] Y. Mitsuyasu, T. Oka, A. Takahashi, Y. Kino, K. Okutsu, T. Sekine, T. Yamashita, Y. Shimizu, M. Chiba, T. Suzuki, K. Osaka, K. Sasaki, M. Suzuki, M. Fukumoto, and H. Shinoda, *Radiation Protection Dosimetry* **199**, 1620, 2023.
- [16] M. Ikeya, "New Applications of Electron Spin Resonance", WORLD SCIENTIFIC, 1993.
- [17] P. Fattibene and F. Callens, *Applied Radiation and Isotopes*, **68**, 2033, 2010.

- [18] C. P. Poole. “*Electron spin resonance*”, Dover Publications, Mineola, 1996.
- [19] E. Giamello and M. Brustolon (Eds.), “*Electron Paramagnetic Resonance: A Practitioner’s Toolkit*”, Wiley, 2008.
- [20] 大矢博昭, 山内淳, 「電子スピン共鳴：素材のマイクロキャラクタリゼーション」, 講談社サイエンティフィック, 1989.