

ESR で調べる野生動物の外部被ばく線量

日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター 岡 壽崇*
東北大学病院 高橋 温

The article depicts how to estimate the external exposure dose for wild animals using electron spin resonance (ESR) spectroscopy. The relationship between the CO_2 radical intensity and the absorbed dose, that is, dose response curve of tooth enamel of Japanese macaque was observed, and the detection limit of our method was estimated. The estimated detection limit of 33.5 mGy is comparable to the previously reported detection limit for human molar teeth. The external exposure dose for seven wild Japanese macaques captured in Fukushima prefecture were examined using this dose response curve. The estimated external exposure dose was ranged from 45 mGy to 300 mGy.

Keywords: electron spin resonance, electron paramagnetic resonance, teeth, animal, Fukushima Daiichi Nuclear Plant accident

1 ESR を用いた外部被ばく線量推定

ESR (electron spin resonance, 電子スピン共鳴) あるいは EPR (electron paramagnetic resonance, 電子常磁性共鳴) を用いた線量計測法は、池谷 元伺先生によって広島原爆被ばく者の放射線量の推定に初めて用いられた¹⁾、その後、チェルノブイリ事故^{2,3)}、原爆実験や原子力発電所作業員⁴⁻⁷⁾ など、主にヒトの被ばく線量推定に利用されてきた。

ESR 線量計測は、歯の中に生成する炭酸ラジカルを測定することで行う。歯が放射線を浴びると、 10^7 年

以上の寿命を持つ炭酸ラジカル (CO_2 ラジカル) が生成する⁸⁾。歯の中に被ばく歴として残るこの寿命の長い炭酸ラジカルを測定して、個体の被ばく線量を推定するのである。

ESR 線量計測については、IAEA の TEC-DOC をはじめとする優れた文献^{8,9)}があり、豊田 新先生が日本語で書かれた解説記事¹⁰⁾もわかりやすい。また、著者 (岡) が前職の東北大学において ESR を用いた線量計測を始めることを検討し始めたとき、最初に (改めて) 読んだのは、岩崎 みどり先生が本誌第 80 号に執筆された「個人の生涯線量計としての歯の検討」¹¹⁾ だった。英語の論文もたくさんあるが、テクニカルな内容についての日本語の解説記事や論文があったことは、ゼロから ESR 線量計測を始める人間にとっては非常に助けになったし、岩崎先生の記事は今でもバイブルのように思っている。

2 なぜ野生動物を対象とするのか

2011 年 3 月 11 日に東日本大震災が発生し、引き続いて東京電力・福島第一原子力発電所 (以下、1F) の事故が起こり、環境中に多量の放射性核種が拡散した。これらの放射性核種は環境や生体に長期間にわたって影響を与えることが予想され、さまざまな方法でその影響が調べられている。

国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 放射線リスク・防護研究基盤準備委員会の報告書によれば、

- 現行の放射線防護の基礎にあるリスク評価は原爆被爆者の疫学調査を基礎にしたものである
- 疫学研究の成果だけでは 100 mGy 以下の低線量リスクを定量的に評価することは難しい
- 放射線生物影響研究においても、ヒトの低線量・低線量率放射線被ばくによるリスク評価に結びつくような成果は十分に得られていない

である¹²⁾。このような状況の中、1F 事故が起きたこと

External dose estimation for wild animals using ESR spectroscopy
Toshitaka OKA* (Sector of Nuclear Science Research, Japan Atomic Energy Agency), Atsushi TAKAHASHI (Tohoku University Hospital),
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4
TEL: 029-282-6367, E-mail: oka.toshitaka@jaea.go.jp

になる。これらの課題の解決には、ヒトの放射線影響を調べることが必要だが、同時に、動物の放射線影響を調べ、それをヒトのモデルとして利用する取り組みが行われている。

東北大学では、東日本大震災後に「被災動物の包括的線量評価事業」を立ち上げ、東北大学の加齢医学研究所・理学部・歯学部・農学部・高等教育開発推進センター（現 高度教養教育・学生支援機構）、新潟大学、弘前大学などが連携して、放射線の生物・人体影響の調査・研究、試料・資料の次世代へ継承などを行うことにした。その中で、たとえば、ニホンザルの酸化ストレスと、土壌の線量率などから計算で推定した被ばく線量率との相関があまりよくないというような結果が得られている¹³⁾。詳細は省くが、土壌の線量率から個体の被ばく線量率を計算する場合、さまざまな仮定、たとえばニホンザルの場合は1日のうち何時間は地上で何時間は樹上で生活するのか、といったことを考慮する必要がある¹⁴⁾。そのほかにもたくさんの仮定が入るので、正確な線量率が計算できていない可能性がある。そのため、計算から求めた線量率ではなく、個体が生涯被ばくした総線量を実測し、それを横軸にして生物影響を調べるといった方法を検討する必要があった。

IF 事故に関連した野生動物の ESR 線量計測は、イノシシ¹⁵⁾ やウシ¹⁶⁾ に関しての報告がある。また、我々のグループではニホンザル¹⁷⁾ やアライグマ¹⁸⁾、アカネズミなどの線量計測に取り込んでいる。本稿では、ニホンザルを例にとり、実際にどのように野生動物の被ばく線量を推定したかについて解説する。

3 ESR 線量計測を行う上での注意点

3.1 どこの歯を使うのか

炭酸ラジカルは放射線が歯に当たれば生成するので、たとえば、ヒトの場合は頭部の X 線撮影や CT 撮影を行うと炭酸ラジカルができる。動物の場合は環境中の放射性核種からの放射線によって炭酸ラジカルが生成する。また、紫外線による炭酸ラジカル生成の影響も昔から議論の対象になっており、歯は頬側と舌側で分割し、歯が紫外線に曝された影響を考慮すべきだという報告もある。そのような中、我々は紫外線に最も曝される可能性のある前歯ではなく、なるべく臼歯（奥歯）を利用することにしていく。ヒトやニホンザルの前歯は小さく薄いことが多いために試料量の確保が難しく、大きな臼歯を使う方が測定に適しているからである。

3.2 歯のどこを使うか

歯は主にエナメル質と象牙質からできている。エナメル質は、無機物（96%、ほとんどがハイドロキシアパタイト ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$)), 水分（3%）、そして有機物（1%）で構成されている。一方、象牙質は、無機物（70%）と水分・有機物（30%）で構成されている⁸⁾。放射線によって生成するラジカルは炭酸ラジカルと有機物由来のラジカルであるが、有機物ラジカルは炭酸ラジカルを調べる際の妨害シグナルになるため、有機物を多く含む象牙質を除去し、エナメル質だけを抽出する必要がある。

ヒトの歯のエナメル質の抽出は、従来、歯科用ドリルで象牙質を削って除去、あるいは KOH 水溶液や NaOH 水溶液に浸漬して象牙質を溶解除去する方法で行われてきた。前者はオペレーターの熟練度に多少左右される抽出方法であり、削り出すのに時間もかかる。後者は熟練度には全く左右されずに、測定に必要な象牙質を取り除くことができる。両者の共通点は、どちらも基本的には象牙質を捨ててエナメル質を抽出する方法ということである。

我々のグループでは、エナメル質を用いた外部被ばく線量評価だけでなく、放射性核種分析による内部被ばく線量評価¹⁹⁻²¹⁾を行うことで、同一歯を用いて外部被ばく/内部被ばくを包括的に推定したいと考えている。そのためには、象牙質に含まれている放射性核種も調べる必要があり、象牙質を捨ててしまう抽出方法は採用できない。放射性セシウムは高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いて ESR 測定前に丸ごとの歯のまま測定可能だが、放射性ストロンチウム測定には化学分離が必要なため、ESR 測定が終わった後に改めてエナメル質と象牙質を混ぜてから測定する必要がある。そこで、象牙質を失うことなくエナメル質を抽出できる方法を検討した。

3.3 線量推定はどのように行うか

ESR 線量計測法には2通りの方法がある。1つは検量線法と呼ばれ (Fig. 1(a)), あらかじめ炭酸ラジカルと放射線（主に ^{60}Co ガンマ線）の関係（いわゆる検量線）を作成しておき、未知試料の炭酸ラジカル測定を行って外部被ばく線量（矢印）を推定する方法である。この場合、検量線作成に使用する試料は、可能な限り被ばくのない試料にする必要があるため、あらかじめ ESR 測定を行い、被ばくが少ない歯を選ぶことになる。もう1つは付加線量法と呼ばれ (Fig. 1(b)), 線量推定したい試料に ^{60}Co ガンマ線を照射し、炭酸ラ

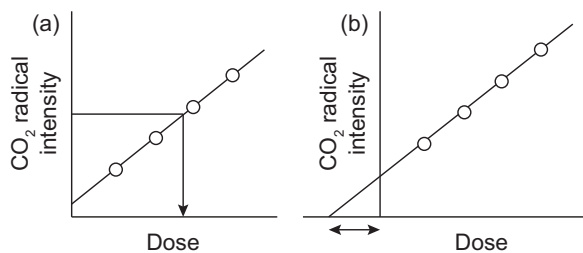


Figure 1. (a) The dose calibration curve and (b) the additive dose methods. Arrows show the estimated external exposure doses.

ジカルを測定，さらにガンマ線を照射し測定，を繰り返す，得られた直線から X 切片を外挿して外部被ばく線量（矢印）を推定する方法である。

どちらの方法でも線量推定可能だが，共通していえることは，炭酸ラジカル強度と吸収線量の関係が直線であることが大前提である（歯種ごとに直線の傾きが違う可能性はあるが¹⁶⁾）。つまり，野生動物の線量推定を行う際に，まずは線量応答が直線かどうかを調べる必要がある。その際，被ばくの少ない歯を用いて線量応答を調べれば，それが検量線になる。本稿では，検量線法で外部被ばく線量の推定を行った例を紹介する。

3.4 線量推定した値は正しいのか

ESR 線量計測法で推定した被ばく線量は本当に正しいのか？という質問をよく受ける。これに回答するのは非常に難しい。というのも，ヒトですら被ばく線量を実測するすべがないため，曖昧な記憶に頼った行動調査でしか被ばく線量の推定ができないのが現状である。そのため，野生動物の場合は空間線量率を用いて計算で被ばく線量を推定するほかない。しかし，ニホンザルの被ばく線量推定においては計算では被ばく線量がきちんと推定できていない可能性がある。一方，ウシの被ばく線量推定においては，震災直後に放出されたヨウ素やテルルなどの減衰を考慮し，空間線量率からウシの被ばく線量を計算したら ESR の結果とおおむね一致したという報告がある¹⁶⁾。

この質問にどのように回答しよう，ESR 線量計測法が信頼できるということを示したらいいかと悩んだ末，我々は歯と線量計を福島県の高空間線量率地域に放置して，約 2 年間にわたる曝露実験を行った。曝露した歯を回収して ESR で線量を推定したところ，線量計から読み取った線量と非常によく一致

を示したことから，環境からの被ばくの推定において ESR 線量計測法の有効性が確かめられた。

4 動物歯の調製法・照射・測定

4.1 歯の収集

検量線作成に使用する歯は，被ばくが少ない歯を用いる必要がある。本研究では，奄美大島のニホンザルの歯を利用した。また，野生ニホンザルは福島県浪江町で捕獲した個体を利用した。

4.2 エナメル質調製

象牙質を失うことなくエナメル質を抽出するため，我々はエナメル質と象牙質の比重の差に注目した。エナメル質の比重は 2.8 g/cm^3 – 3.0 g/cm^3 ，象牙質の比重は 2.0 g/cm^3 – 2.1 g/cm^3 なので，エナメル質と象牙質の中間の比重の重液を混ぜて遠心分離すれば，きれいに分離ができるのである。この方法はヒトの歯から精度・効率よくエナメル質を抽出するために採用したのだが，ニホンザルの歯にも適用できることがわかった。ニホンザルの歯は小さく硬いため削ることがほぼ不可能で，溶解処理するしかないと考えていたが，本手法によって象牙質を失わずにエナメル質を分離できるようになった。

歯の表面に付着している汚れを取り除いた後に歯を粉々に砕き，エナメル質を遠心分離法で抽出，蒸留水で洗浄の上， 40°C のオーブンで乾燥した。乾燥後，ESR 測定用の石英試料管（外径 5 mm，内径 4 mm）に 100 mg ずつ充填した。ESR 測定においてはエナメル質の粒径も重要とされており²²⁾，砕いた後にふるいにかけて，直径 0.425 mm–1.0 mm のものだけを使用した。

野生動物の場合，歯の表面にさまざまなものが付着していることがあり，ESR 測定を行うと，炭酸ラジカル・有機物ラジカル以外のシグナルが得られることがある。その際には Titriplex III（エチレンジニトリロ四酢酸二ナトリウム塩・二水和物）水溶液や NaOH 溶液，酢酸による化学処理が必要になる^{17,23)}。

4.3 検量線作成のための ^{60}Co ガンマ線照射

石英管に充填した試料は，量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所の食品照射ガンマ線照射棟第 1 照射室でガンマ線照射を行った。線量率は 130 mGy/h ($\pm 1.4\%$)²⁴⁾ で，50 mGy ずつ合計 200 mGy まで室温で照射した。照射に当たっては 3 mm 厚の PMMA シートを前面に設置し，2 次電子平衡をとった¹¹⁾。

4.4 ESR 測定

ESR 測定は日本電子製 JES-RE2X, JES-X330, Magnetech 社製 (ドイツ) MS-400 などの X-band の ESR 装置で行った。ESR 測定条件は推奨値^{6,8,17,25)}が報告されているので、それらを参考にして、マイクロ波出力 2 mW, 掃引幅 ± 5 mT (もしくは ± 5.5 mT), 1 スペクトルあたりのデータ数 4096 ポイント, 変調磁場幅 0.2 mT, 時定数 0.03 s, 掃引時間 30 s, 積算回数 120 回とした。測定は照射前 (未照射) と, 50 mGy ずつ照射したあとの合計 5 水準の線量において行った。3 本の試料はそれぞれの線量において 7 回ずつ繰り返し測定した。

4.5 炭酸ラジカル強度の抽出

ESR スペクトルからの炭酸ラジカル強度の抽出には, EPR Dosimetry²⁶⁾ プログラムを利用した。得られた ESR スペクトルをこのソフトに読み込み, 炭酸ラジカルや有機ラジカル, バックグラウンドなど複数のスペクトルでフィッティングを行って, 炭酸ラジカル強度を求める。このプログラムのほかに New ER²⁷⁾ という分離プログラムもあり, どちらかのプログラムを使用することが de facto standard になっているようである。

5 ESR 測定結果

Figure 2 にエナメル質の ESR スペクトルの例を示す。赤で示したスペクトルが測定した ESR スペクトルである。これらを EPR dosimetry でデコンボリューションし, 炭酸ラジカル (青) と有機ラジカル (緑) のスペクトルを得る。黒線がフィッティングしたスペクトルである。この図を見てわかるように, 炭酸ラジカルと有機ラジカルは非常に近い場所に現れるため, 前述のように有機ラジカルの成分は除去しなければならない。

野生動物のエナメル質の ESR 測定を行うと, Fig. 3 に示すような, 金属由来と予想される幅広な ESR シグナルが得られることがある。図中の 6 本の鋭いピークは Mn マーカーのシグナルである。このような幅広なシグナルが得られると, Fig. 2 の赤いシグナルが右下がりになり (バックグラウンドが大きく変動), EPR Dosimetry での解析ができなくなる。この場合は 4.2 にあるような化学処理を行うと改善することが多い。このほかにも, 解析を阻害する 3 本に分裂するようなシグナルが得られることもあるが, これは酢酸処理に

よって消すことができる¹⁷⁾。

本研究で作成した検量線を Fig. 4 に示す。実線は最小二乗法でフィッティングした直線, エラーバーは同一試料の繰り返し測定の標準偏差である。破線は 90% 予測区間^{23,28-31)}を示している。炭酸ラジカル強度が吸収線量に対して直線的に増加したことから, この直線をニホンザルのエナメル質測定による外部被ばく線量推定のための検量線として利用できることがわかった。また, この図から検出限界 (D) を評価すると 33.5 mGy となった。

ESR 線量計測法の検出限界は, ヒト永久歯を用い

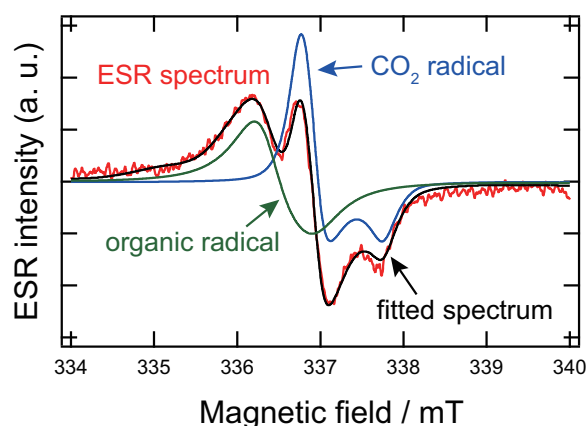


Figure 2. Typical ESR spectrum (red) of tooth enamel, deconvoluted CO_2^- radical (blue), deconvoluted organic radical (green), and fitted spectrum (black).

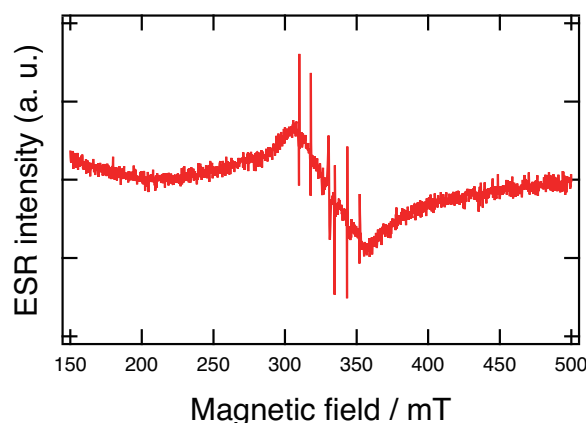


Figure 3. Broad ESR signal observed for tooth enamel of wild animal.

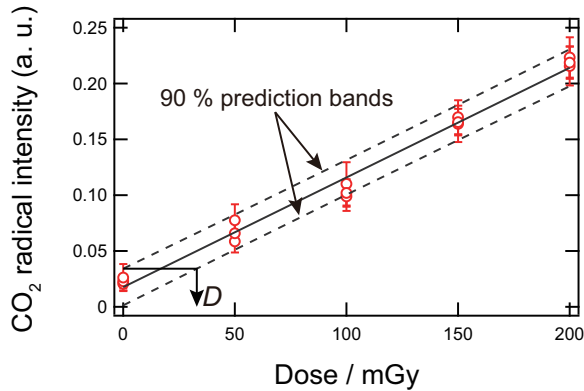


Figure 4. Dose response curve for enamel sample from the Japanese macaque from 0 mGy to 200 mGy. The solid line represents the result of the linear least-squares fit. Dashed lines represent the 90 % upper and lower prediction bands. *D* represents the detection limit. Reprinted from Ref. [17], Copyright (2020), with permission from Elsevier.

Table 1. Estimated external exposure dose for wild Japanese macaques captured in Namie-machi, Fukushima prefecture¹⁷⁾.

Place	External exposure dose / mGy
Tatsuno	44.9
Suenomori	81.4
Obori	65.5
Obori	132.9
Obori	229.2
Hirusone	204.4
Hirusone	297.0

た先行研究において 56 mGy³¹⁾ や 67 mGy⁷⁾ という報告がある。どちらも当該論文における最もよい値であり、たとえば前者の論文では、複数のグループで測定したところ検出限界は 56 mGy–605 mGy という広い範囲でばらついており、平均は 205 mGy である。ほかの文献を見ても、100 mGy–200 mGy といったところである。我々は別のニホンザルと ESR 装置の組み合わせでも ~40 mGy という値を得ており、これまでのヒト永久歯を用いた報告値と同じか少しよい検出限界を得ることができた。

6 外部被ばく線量推定

このように作成した検量線を利用し、実際に福島県浪江町で捕獲した野生ニホンザルの外部被ばく線量の推定を行った結果を Table 1 に示す。7 頭のニホンザルを調べたところ、45 mGy から 300 mGy の被ばくをしていると推定された。これまで検出することが困難であった 100 mGy 以下の被ばくを検出することができた。さらに被ばく線量推定を行う検体を増やし、生物影響との相関を調べることで、特に慢性的な低線量被ばく影響が今後明らかになると期待される。

7 今後の展開

2019 年のほぼ同時期に ESR 線量計測の国際比較試験/国内比較試験が開始された。比較試験では、既知線量を照射した試料を測定して検量線を作成し、未知線量を照射したブラインド試料の炭酸ラジカル強度から線量を推定する。我々は線量計測業界においては新参者なので、これらの活動を通して我々の ESR 線量計測技術がどのレベルにあるのかを知りたいと思っている。ESR 線量計測は古い ESR 装置でも測定には何の支障もない。これらの比較試験が、あらたに ESR 線量計測を開始するグループが増えることにつながり、ヒトの低線量・低線量率放射線被ばくによるリスク評価に資する研究・データが得られるようになることを期待している。

野生動物の被ばく線量推定においては、試料前処理法に改善の余地があると考えている。野生動物の歯には金属由来の成分が入っていることがあり (Fig. 3)、それをうまく除去しないと解析が進まない。アライグマの歯から妨害元素を除去するには苦労したが、最近ようやく福島県で捕獲したアライグマの被ばくを推定できるようになった¹⁸⁾。さらに効率よく測定を行うには、異なる動物歯の構成元素を誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) や誘導結合プラズマ発光分析 (ICP-OES) などで精密に調べ、もし、測定を妨害する元素が動物ごとに違うのであれば、動物ごとに最適化した妨害元素除去法を検討する必要があると考えている。

また、我々は福島県歯科医師会と連携し、福島県を中心に全国から約 7000 本のヒト乳歯を収集している (2020 年 3 月現在)。乳歯は抜けるまで待っているのではなく、最近では歯科医院で抜歯してもらうことが多いそうだ。その際に趣旨説明を行い、同意書とともに乳歯を提供してもらっている。これらの歯の測定を行

えば乳幼児の被ばく線量評価が可能となる。前述のように、我々は同一の歯を用いて外部被ばく/内部被ばくを包括的に推定したいと考えており、現在はイメージングプレートを用いて、内部被ばくを引き起こすと考えられる放射性核種が歯中に取り込まれているかを調べている³²⁾。その結果を精査し、ESR 測定や放射性核種分析を優先的に行うべき歯を抽出していく予定である。

〈謝 辞〉

ESR による線量計測は、篠田 壽先生（東北大学大学院 歯学研究科 名誉教授、現、同研究科 環境歯学センター）や福本 学先生（東北大学 加齢医学研究所 名誉教授、現、理研 革新知能統合研究センター）のサポートで開始しました。中村 典博士（放射線影響研究所）には ESR 線量計測の国際比較試験などを過去に主宰された Albrecht Wieser 博士（Helmholtz Zentrum München）をご紹介いただき、EPR Dosimetry プログラムを使用するきっかけを作っていただきました。豊田 新先生（岡山理科大学 理学部）とは、Wieser 博士の研究室と一緒に訪問し、約 1 週間の滞在中に試料調製や測定のアドバイスをいただきました。丑田 公規先生（北里大学）には「歯のことは岩崎みどり先生（元 奥羽大学 歯学部）に相談するように」と岩崎先生をご紹介いただき、岩崎先生には、お電話や研究会でお会いしたときにいろいろとアドバイスをいただきました。皆様のお力添えとアドバイスがなければこの研究は進展しませんでした。大変感謝しております。

動物サンプルの収集・解剖・各種測定は、小荒井 一真博士（東北大学大学院 理学研究科、現 日本原子力研究開発機構 福島環境安全センター）、木野 康志先生（東北大学大学院 理学研究科）、関根 勉先生（東北大学 高度教養教育・学生支援機構）および木野研・関根研の学生諸氏、清水 良央先生、千葉 美麗先生、鈴木 敏彦先生、小坂 健先生、佐々木啓一先生（東北大学大学院 歯学研究科）、漆原 祐介先生（東北大学大学院 医学研究科）、鈴木 正敏先生（東北大学 災害科学国際研究所）、三浦 富智先生（弘前大学 被ばく医療総合研究所）および三浦研究室の学生諸氏、山城 秀昭先生（新潟大学 農学部）、中田 章史先生（北海道科学大学 薬学部）、石庭 寛子先生（福島大学 環境放射能研究所）などにお世話になりました。誌面を借りて、皆様にお礼申し上げます。

本研究の一部は、平成 26 年度 国家課題対応型研究開発推進事業 原子力基礎基盤戦略研究イニシア

ティブ、英知を結集した原子力科学技術・人材育成事業 (281302, JPMX 17S17942991, JPJA 19B19207322)、環境省委託事業 平成 28 年度 放射線健康管理・健康不安対策事業 (放射線の健康影響に係る研究調査事業)、科研費 26253022, 26463155, 26670898, 15H05055, 16K15849, 18K09906, 19K10458, 東北大学 被災動物の包括的放射線量評価事業などの助成を受けたものです。

〈参 考 文 献〉

- 1) M. Ikeya, J. Miyajima, S. Okajima, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 - Lett.*, 23 (1984) L697.
- 2) V. G. Skvortsov, A. I. Ivannikov, V. F. Stepanenko, A. F. Tsyb, L. G. Khamidova, A. E. Kondrashov, D. D. Tikunov, *Appl. Radiat. Isot.*, 52 (2000) 1275.
- 3) G. Gualtieri, S. Colacicchi, R. Sgattoni, M. Giannoni, *Appl. Radiat. Isot.*, 55 (2001) 71.
- 4) A. A. Romanyukha, E. A. Ignatiev, D. V. Ivanov, A. G. Vasilyev, *Radiat. Prot. Dosim.*, 86 (1999) 53.
- 5) M. Iwasaki, C. Miyazawa, T. Chida, F. Takahashi, Y. Onai, *Health Phys.*, 83 (2002) 534.
- 6) K. Zhumadilov, A. Ivannikov, K. N. Psalikov, Z. Zhumadilov, S. Toyoda, D. Zharlyganova, E. Tieliewuhan, S. Endo, K. Tanaka, C. Miyazawa, T. Okamoto, M. Hoshi, *J. Radiat. Res.*, 47 (2006) A47.
- 7) A. Güttler, A. Wieser, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) 819.
- 8) IAEA-TECDOC-1331, Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment, IAEA, Vienna, Austria, 2002.
- 9) P. Fattibene, F. Callens, *Appl. Radiat. Isot.*, 68 (2010) 2033.
- 10) 豊田 新, *日本電子ニュース*, 42 (2010) 14.
- 11) 岩崎 みどり, *放射線化学*, 80 (2005) 28.
- 12) 国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構 放射線医学総合研究所 放射線リスク・防護研究基盤準備委員会, *放射線リスク・防護研究基盤準備委員会報告書* (2018).
- 13) 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, M. Fukumoto, *PLoS One*, 11 (2016) 13.
- 14) S. Endo, K. Ishii, M. Suzuki, T. Kajimoto, K. Tanaka, M. Fukumoto, *Dose Estimation of External and Internal Exposure in Japanese Macaques After the*

- Fukushima Nuclear Power Plant Accident, in: M. Fukumoto (Ed.) *Low-Dose Radiation Effects on Animals and Ecosystems*, Springer, Singapore, 2020, pp. 179–191.
- 15) A. Harshman, S. Toyoda, T. Johnson, *Radiat. Meas.*, 116 (2018) 46.
 - 16) S. Toyoda, M. Murahashi, M. Natsuhori, S. Ito, A. Ivannikov, A. Todaka, *Radiat. Prot. Dosim.*, 186 (2019) 48.
 - 17) 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, M. Fukumoto, *Radiat. Meas.*, 134 (2020) 106315.
 - 18) 光安 優典, 岡 壽崇, 高橋 温, 小荒井 一真, 木野 康志, 奥津 賢一, 関根 勉, 山下 琢磨, 清水 良央, 千葉 美麗, 鈴木 敏彦, 小坂 健, 佐々木 啓一, 藤嶋 洋平, Valerie Swee Ting Goh, 有吉 健太郎, 中田 章史, 山城 秀昭, 篠田 壽, 三浦 富智, *KEK Proc. 20th Workshop on Environmental Radioactivity* (in press).
 - 19) T. Fukuda, Y. Kino, Y. Abe, H. Yamashiro, Y. Kuwahara, H. Nihei, Y. Sano, A. Irisawa, T. Shimura, M. Fukumoto, H. Shinoda, Y. Obata, S. Saigusa, T. Sekine, E. Isogai, M. Fukumoto, *PLoS One*, 8 (2013) 7.
 - 20) 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, H. Shinoda, *Sci. Rep.*, 6 (2016) 9.
 - 21) 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, H. Shinoda, *J. Environ. Radioact.*, 183 (2018) 1.
 - 22) M. Iwasaki, C. Miyazawa, T. Uesawa, K. Niwa, *Radioisotopes*, 42 (1993) 470.
 - 23) A. Wieser, P. Fattibene, E. A. Shishkina, D. V. Ivanov, V. De Coste, A. Guttler, S. Onori, *Radiat. Meas.*, 43 (2008) 731.
 - 24) T. Kojima, H. Tachibana, N. Haneda, I. Kawashima, P. H. G. Sharpe, *Radiat. Phys. Chem.*, 54 (1999) 619.
 - 25) A. I. Ivannikov, F. Trompier, E. Gaillard-Lecanu, V. G. Skvortsov, V. F. Stepanenko, *Radiat. Prot. Dosim.*, 101 (2002) 531.
 - 26) A. A. Koshta, A. Wieser, E. A. Ignatiev, S. Bayankin, A. A. Romanyukha, M. O. Degteva, *Appl. Radiat. Isot.*, 52 (2000)
 - 27) A. I. Ivannikov, V. G. Skvortsov, V. F. Stepanenko, D. D. Tikunov, J. Takada, M. Hoshi, *Health Phys.*, 81 (2001) 124.
 - 28) L. A. Currie, *Pure Appl. Chem.*, 67 (1995) 1699.
 - 29) ISO, *Capability of detection Part 1: Terms and definitions*, ISO 11843-1:1997.
 - 30) ISO, *Capability of detection Part 2: Methodology in the linear calibration case*, ISO 11843-2:2000.
 - 31) P. Fattibene, A. Wieser, E. Adolffsson, L. A. Benevides, M. Brai, F. Callens, V. Chumak, B. Ciesielski, S. Della Monaca, K. Emerich, H. Gustafsson, Y. Hirai, M. Hoshi, A. Israelsson, A. Ivannikov, D. Ivanov, J. Kaminska, W. Ke, E. Lund, M. Marrale, L. Martens, C. Miyazawa, N. Nakamura, W. Panzer, S. Pivovarov, R. A. Reyes, M. Rodzi, A. A. Romanyukha, A. Rukhin, S. Sholom, V. Skvortsov, V. Stepanenko, M. A. Tarpan, H. Thierens, S. Toyoda, F. Trompier, E. Verdi, K. Zhumadilov, *Radiat. Meas.*, 46 (2011) 765.
 - 32) A. Takahashi, M. Chiba, A. Tanahara, J. Aida, Y. Shimizu, T. Suzuki, S. Murakami, K. Koarai, T. Oka, J. Ikeyama, O. Kaneko, M. Unno, K. Hirose, T. Ohno, Y. Kino, T. Sekine, K. Osaka, K. Sasaki, H. Shinoda (論文投稿中) .

〈著者略歴〉

岡 壽崇：2003年 早稲田大学大学院理工学研究科単位取得退学，博士（理学）。早稲田大学，産業技術総合研究所，千葉大学，日本原子力研究開発機構，早稲田大学，大阪大学，東北大学を経て，現在，日本原子力研究開発機構 任期付研究員 研究副主幹。専門：分析化学，放射線生物影響，陽電子科学。趣味：ウィンタースポーツ，ラグビー観戦ほか。

高橋 温：2001年 東北大学大学院歯学研究科修了，博士（歯学）。障害のある患者を対象とした歯科臨床を行いながら硬組織薬理学の研究を継続し，東日本大震災を契機に，歯を用いて福島第一原発事故の生体への影響を検討する研究プロジェクトに参画し現在にいたる。趣味：湧水探訪。