The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	歯牙の電子スピン共鳴(ESR)を用いた放射線技師の被曝線量の推定
Author(s)	巽, 純子; 奥村, 寛; 岡島, 俊三 他
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1987, 47(3), p. 524-530
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/17277
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

日本医放会誌：47（3），524—530，1987（昭62）

歯牙の電子スピン共鳴（ESR）を用いた放射線技師の被曝線量の推定

長崎大学医学部原爆後障害研究施設
放射線生物物理学部門
巽　純子　奥村　寛
放射線影響研究所
岡島　俊三
神奈川県立成人病センター放射線部
山本　洋一

（昭和61年6月23日受付）
（昭和61年9月26日最終原稿受付）

Dose Estimation by Electron Spin Resonance (ESR) from Tooth Enamel for Radiologic Technologists

Junko Tatsumi-Miyajima*, Yutaka Okumura*, Shunzo Okajima** and Youichi Yamamoto***
*Department of Radiation Biophysics, Atomic Disease Institute, Nagasaki University School of Medicine
**Radiation Effects Research Foundation
***Department of Radiology, Kanagawa Center for Adult Diseases

Research Code No.: 203.9

Key Words: Electron spin resonance, Radiologic technologists, Dosimetry, Tooth enamel

An individual absorbed dose for radiologic technologists has been estimated using a new personal dosimetry. This dosimetry is based on the electron spin resonance (ESR) spectroscopy of the CO_3^{3-} radicals, which are produced in technologists' teeth by radiation. The stable ESR signals increased linearly with the radiation dose, and depended on the photon energy. The absorbed doses of 42 cases of radiologic technologists were determined by considering the radiation quality. The absorbed doses estimated using the ESR dosimetry agreed with ones calculated using the information on the occupational history and conditions. It is concluded that the ESR dosimetry was useful and suitable to estimate the cumulative doses of radiologic technologists under the complex configurations of long term irradiation without any dosimeters.

I. はじめに

放射線被曝とその生物学的効果の関係を知るために，放射線技師集団を対象として疫学的調査が行われている[1]．その際，個々の放射線技師の被曝線量を正確に知ることが必要であるが，1960年以前にはフィルムバッジによる被曝線量のモニタリングが一般的でないため，古くから放射線作業に従事している放射線技師の被曝線量の推定は難しい．従来，放射線技師の被曝線量は年代別に平均的な作業環境や作業量を求め，計算によって推定されてきたが[2)~3)]，個々の放射線技師の作業環境，作業量に不確定な点があり，正確な被曝線量をこの方法で評価することは難しかった．

我々は，生体の一部である抜歯試料の電子スピン共鳴（ESR）信号から，原爆被爆者の被曝線量を推定できることを報告してきた[4)~8)]．本研究で

は，この方法を用いて放射線技師の被曝線量を推定することを試みた．

II. 原　理

歯はハイドロキシアパタイト($Ca_{10}(PO_4)_6(OH)_2$)の無機微細結晶で構成されている．この結晶内に不純物として含有されるCO_3^{2-}が，PO_4^{2-}の位置に置換したものが，電離電子の捕獲中心となり，放射線照射を受けると不対電子を持つCO_3^{3-}ラジカルを形成する[9)~11)]．ハイドロキシアパタイト結晶を磁場下に置くと，CO_3^{3-}ラジカル中の不対電子はその自転と公転によって合成された磁気モーメントに対応したエネルギー準位に分離する．分離したエルギー準位の差ΔEは，

$$\Delta E = g\beta H \qquad (1)$$

で表される．ただし，Hは外部磁場，gは電子の磁場モーメントに関係した定数(g値)，βはボーア磁子である．ハイドロキシアパタイトのCO_3^{3-}ラジカルのESRスペクトは，結晶の主軸に平行な$g=2.002$と垂直な$g=1.997$の二つに分離した形で観測される[9)~11)]．

磁場下に置かれている不対電子に電磁波（マイクロ波）を供給すると，電磁波の光子エネルギーが分離エネルギーΔEに等しい時，不対電子は電磁波を吸収する．吸収される電磁波の総エネルギーは，不対電子の数に比例する．この現象を電子スピン共鳴(ESR)と呼ぶ[12)]．電磁波の吸収エネルギーを測定すれば，不対電子数，すなわちラジカル量が相対的にわかる．

III. 方　法

1. ESR装置

用いたESR装置（JES-FEXIG：日本電子製）はマイクロ波領域のXバンド（約9GHz）専用のESRスペクトロメータである．磁場の強さは約336mTであり，交流磁場の変調は100kHz，0.32 mTを用いた．スペクトルは1次微分形で記録した．マイクロ波吸収の大きさが違ってもその曲線の形が同じであれば，マイクロ波吸収の大きさは，ESRスペクトル（1次微分曲線）の振幅（最大値と最小値の差）に比例する[13)]．この解析ではESRスペクトルの振幅をESR信号強度とした．なお，試料は常温中で測定した．

2. 放射線照射装置

治療用^{60}Co-γ線照射装置（RI-107-2型：東芝製），治療用X線発生装置(KXC-19-7型：東芝製)および診断用X線発生装置（ID-150L-2型：島津製)を用いた．X線については，電圧，電流，フィルター条件を変え，26keVから110keVまでの実効エネルギー[14)]の6種類の線質を用いた．

3. 試料

放射線に対して信号強度が大きく現れるエナメル部分のみを抜歯試料から分離した．磁場方向と歯エナメルの結晶軸方向の間の角度によってCO_3^{3-}ラジカルのESR信号強度が変化する[11)]．より再現性が保たれるように，試料を直径1mm以下に粉砕することによって試料を均一化し，方向依存性をなくした．1個の歯について100～400mgのエナメル部分を採取し，これを，内径5mmの石英ガラス試料管内に入れて測定した．

4. 測定手順

CO_3^{3-}ラジカルのESR信号強度は，各歯牙に含有されている電子の捕獲中心であるCO_3^{2-}量に依存する．したがって，歯牙ごとに放射線感度（単位線量あたりの信号強度の増加量)が異なるので，その点を考慮した．すなわち，試料の初期信号を測定した後，^{60}Co-γ線の既知線量を照射し，ESR信号を測定した．この照射とESR測定を交互に4～5回繰り返した．測定した初期ESR信号強度と照射によって得られたESR信号強度を外挿することにより歯牙の被曝線量を求めた（Fig. 4)．最小二乗法により，信号強度Iと照射線量Dの関係は次式で与えられる．

$$I = a \cdot D + b \qquad (2)$$

ここで，aは単位線量あたりの信号強度増の増加量，bは照射する前の初期ESR信号強度である．^{60}Co-γ線を照射する以前に被曝していた歯牙の被曝線量D_0は，$I=0$のときのDの値，$-b/a$で与えられる．ただし，線量は^{60}Co-γ線相当である．

測定試料を得るための処理とESR信号測定は，Fig. 1に示す手順[7)8)]で行った．歯牙はエナメル部分を分離し，粉砕した．粉砕の機械的刺激により生ずるラジカルの消滅を約1週間待ち，初期ESR測定を行った．その後，^{60}Co-γ線の照射およ

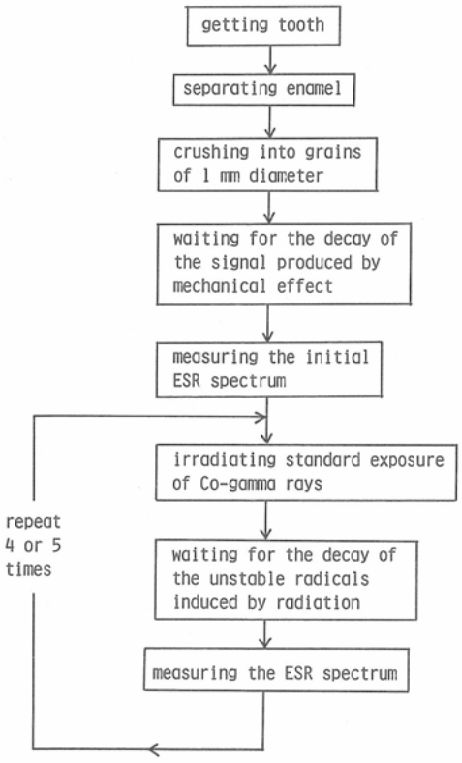

Fig. 1　The measurement procedure for electron spin resonance (ESR) signal.

びESR測定を4～5回交互に繰り返した．放射線照射により形成された不安定なラジカルが消滅する照射2～3時間後，ESR測定を行った．

5．組織吸収線量の評価法

(2) 式を用いて求められる被曝線量D_0は，^{60}Co-γ線相当の照射線量であるので，次の式によって組織吸収線量Aに変換した．

$$A = r \cdot f \cdot D_0 \qquad (3)$$

ただし，rはESR信号強度の光子エネルギー依存を示す感度補正係数であり，^{60}Co-γ線に対する放射線技師が受けたX線の感度比の逆数である．また，fは照射線量から吸収線量への変換係数である．

6．計算による被曝線量の推定

放射線作業務歴から被曝線量を推定するため，放射線技師にアンケート調査を実施した．アンケート項目は，1960年以前では，従事した病院の名称および所在地，放射線作業の従事期間，1日平均撮影件数，1カ月平均作業日数，防護状態，X線室の広さ，使用したX線装置，使用管球，使用増感紙，使用フィルム，カメラ，胸部の直接撮影条件，および業務従事期間のうち被曝が多かった時期についてである．また，1960年以後ではフィルムバッジによる被曝線量である．アンケート項目の結果をコード化し，点数を与える技師会方式[3]によって被曝線量を推定した．この方法は放射線作業内容および作業量を大学病院，一般病院そして保健所に区分し，当時のX線室の散乱線分布を参考にして，年代別の放射線技師の被曝線量を推定する方法である．アンケートが回収された27名に対して，被曝線量を推定した．

IV．結　　果

1．線量評価のための基礎実験

(1) マイクロ波強度のによるESRスペクトル変化

非被曝者の測定試料に，^{60}Co-γ線照射（7.74×10^{-2}C/kg）を行った後，マイクロ波の強度を1mWから80mWまで変えてESRスペクトルを測定した．その結果をFig. 2に示す．信号A, B, Cはそれぞれ$g=2.006$, 2.002, 1.997に対応するものである．信号Aは機械的刺激により生ずるものであった[7)8)]．信号BおよびCは，放射線照射によって生じたCO_3^{3-}ラジカルによるもので，歯エナメルの結晶構造に依存して分離して観測された．信号AおよびCは信号Bに影響を受け，正確な振幅の測定ができないので，信号が現れていない平らな部分をベースラインとして，そこからの信号の高さを強度として測定した．マイクロ波強度に対する信号A, BおよびCの強度の変化をFig. 3に示す．信号Aの強度は，マイクロ波強度と共に減少した．信号Bの強度はマイクロ波の強度と共に増大したが，信号Cの強度はマイクロ波強度が30mWまで増大し，それ以上では飽和した．信号Cが飽和を示すと，本来はっきり分離している信号Bと信号Cの境界（Fig. 2における1～30mW）が，はっきりしなくなった．その影響を受け，信号Bはその形（横軸方向への広がり）が変化しないものとみなして振幅の大きさを信号強度として用いているこの方法では正確な信号強度の評価ができ

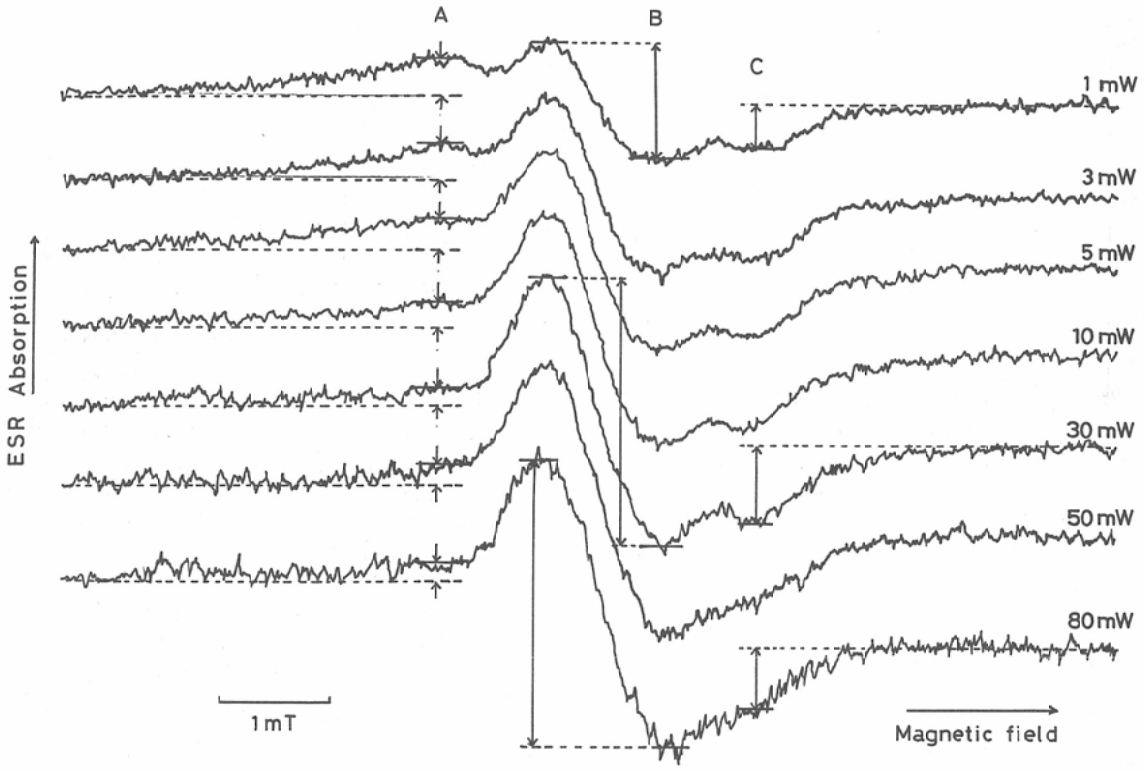

Fig. 2 The spectra of microwave absorption by ESR at various microwave power level. The magnetic field increases from left to right. Signal A is from mechanical stimulation, and signals B and C are from the CO_3^{3-} radical induced by irradiation.

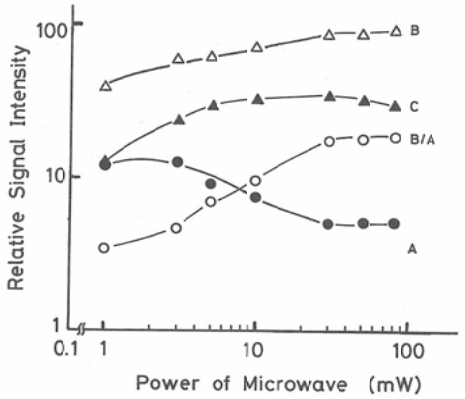

Fig. 3 The intensity of signals A, B and C, and the ratio of the signal B to A, as a function of the microwave power.

ない．また，機械的刺激により生じる信号Aに対する放射線照射によって生ずる信号Bとの比（Fig. 3中 B/A で示す）は，30mW 以上で飽和した．以上のことから，線量測定には，より信号が大きく現れ，振幅の測定が容易である信号Bを用い，信号Cは用いなかった．また，信号Bの形が崩れない範囲で比 B/A が最も大きな値を示すマイクロ波の強度，30mW で測定した結度を用いた．

（2）ESR 信号強度の直線性および線質依存性

Fig. 4 に，1個の歯牙から採った測定試料に対し，^{60}Co-γ 線と実効エネルギー26keV のX線を照射したときの照射線量に対する ESR 信号強度の変化を示す．γ 線，X線とも，線量と信号強度の間に良い直線関係が見られた．照射線量に対する信号強度は^{60}Co-γ 線よりX線の方が大きかった．

Fig. 5には，^{60}Co-γ 線に対する種々の実効エネルギーのX線の信号感度の比を示す．各測定値は非被曝者から得た4測定試料の平均値と標準偏差を示す．感度比は実効エネルギーの減少と共に増

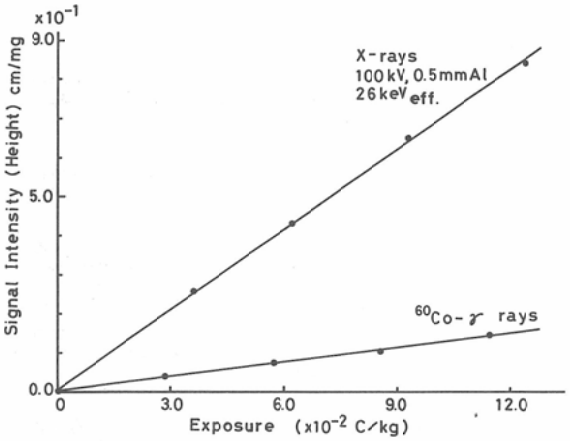

Fig. 4 The increase of ESR signal of tooth enamel exposed with ^{60}Co-gamma rays and 26 keV X-rays.

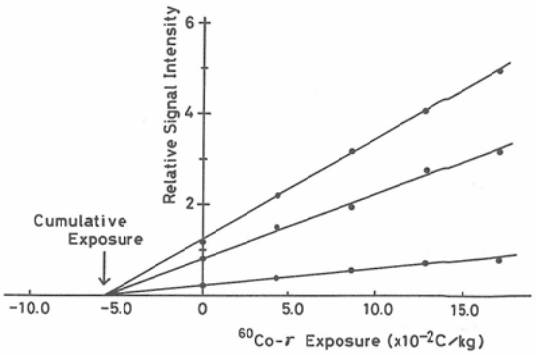

Fig. 6 An example of the estimation of personal dose. Three samples of teeth were supplied from an individual person who had worked for 35 years as a radiologic technologist. Three sets of data correspond to each tooth. Radiation dose is estimated by the back extrapolation of the signal intensity.

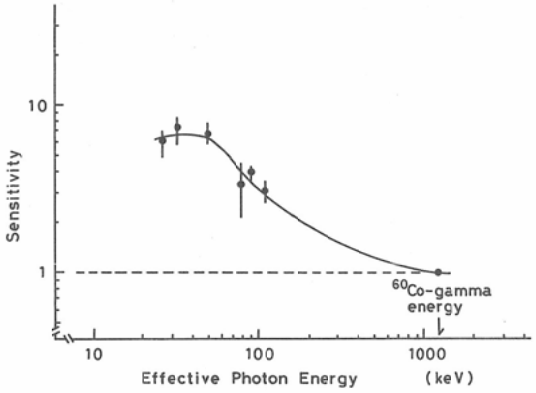

Fig. 5 Sensitivity of ESR signal for various energy of X-rays against to Co-gamma rays.

大し，50keV 以下26keV まででは 6 から 7 となった．これは，ハイドロキシアパタイトを構成する主元素である Ca の原子番号が空気の平均原子番号の 3 倍程度大きいためである．光子と Ca の作用断面積(主に光電効果をによる)が低エネルギーで増大し，形成される CO_3^{3-} ラジカル量が増加するためと考えられる．

2. ESR 法による被曝線量の推定

Fig. 6は，1950年から1985年までの35年間放射線技師として従事した 1 人の人から得た 3 本の抜歯試料の ESR 測定の結果である．3 本の歯牙の放射線に対する感度は一様ではなかったが，ESR 信号の強度と照射した^{60}Co-γ 線量の関係から最小二乗法によって求めた線量(^{60}Co-γ 線相当)は，各々5.78×10^{-2}C/kg，5.60×10^{-2}C/kg，5.96×10^{-2}C/kg であり，7％以内で一致した．

1960年以前の診療用 X 線装置の電圧は約50kb から70kV であり，その実効エネルギーは約25 keV から 35 keV と考えられた[3]．Fig. 5より，^{60}Co-γ 線に対するこのエネルギー範囲の X 線の感度比は6.5であるので，この逆数0.15を（3）式における感度補正係数 r とした．変換係数 f は，C/kg-Gy 変換係数となり，35.5の値（光子エネルギー30keV における筋肉の R-rad 変換係数 0.915[15]を C/kg-Gy 変換係数にした値）をとった．これらの値を（3）式に入れて，3 本の抜歯試料の ESR 測定値を組織吸収線量に変換すると，各々30.8cGy, 29.8cGy, 31.7cGy であった．

42名の放射線技師について，1985年に抜歯した試料から被曝線量を推定した．Fig. 7に放射線作業に従事し始めた時から抜歯した時までの期間が明確であった39名について放射線作業従事期間と被曝線量との比較を示す．相関係数は0.73であり，危険率 1 ％以下で有意に相関が認められた．放射線作業従事期間の増加に伴い，被曝線量が増加した．特に，1985年現在で放射線作業従事期間が30年を超えた者の中に，50cGy 以上の被曝線量が見

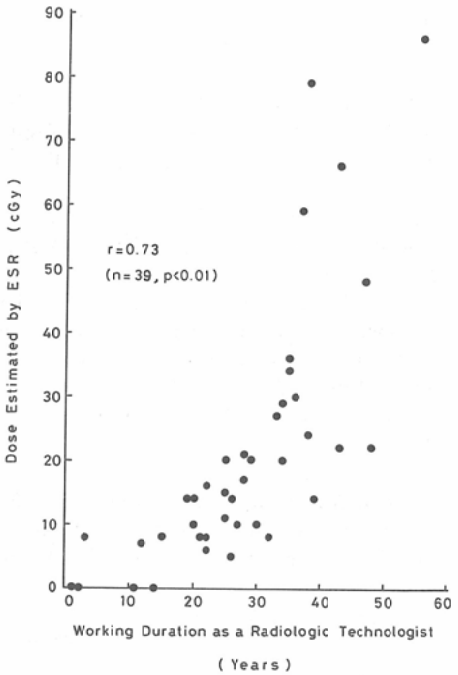

Fig. 7 Correlation between the working duration as a radiologic technologist and the dose esthimated by the ESR method.

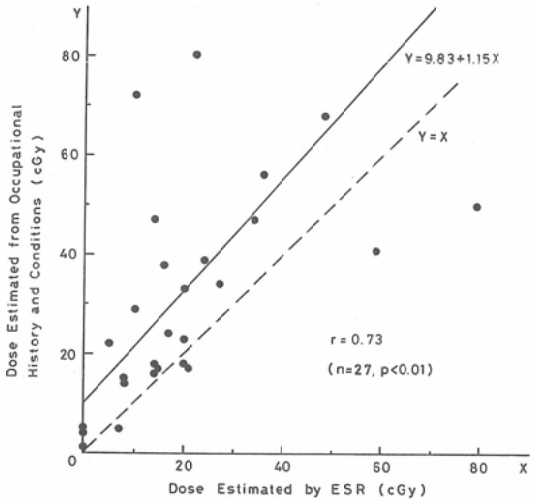

Fig. 8 Correlation between the dose estimated from the information on the occupational history and conditions (Y), and the dose estimated by the ESR method (X).

られた．1985年から30年前である1955年以前では，作業状態がかなり悪かったことが示唆された．

3. アンケート調査による被曝線量の推定

アンケート調査に基づく技師会方式によって推定した被曝線量とESR法で推定された被曝線量とを比較した．その結果をFig. 8に示す．技師会方式による被曝線量を Y，ESR法による被曝線量を X とし，回帰直線を求めると，

$$Y=1.15X+9.83 \qquad (4)$$

であった．相関係数は0.73であり，1％以下の危険率で相関は有意であった．回帰式の傾斜は，ほぼ1であるので，技師会法とESR法による推定値は良く対応関係があることが示された．しかし，技師会法による推定値はESR法による推定値に比べ9.83cGy高い値を示した．

V. 議　論

(1) ESR法による線量測定は熱ルミネッセンス線量計と同様に，放射線照射によって生ずる電離電子を物質内の捕獲中心に捕獲することを利用している．熱ルミネッセンス線量計は外部から熱エネルギーを与え，捕獲した電子を開放させるので1度しか測定できない．これに対して，ESR法は外部から与えるマイクロ波のエネルギー量が小さいので電子は開放されず，繰り返し測定が可能である．その点，ESR法は優れている．

(2) 池谷ら[16]は，CO_3^{3-}ラジカルが10^6～10^7年の長期間にわたって安定に存在することを示している．したがって，ESR信号のフェーディングは無視できる．

(3) 自然放射線線量を年間1mGyとすれば[17]，長期間放射線作業に従事している放射線技師の自然放射線による被曝線量は50mGy程度となる．ESR法による被曝線量推定の誤差ほぼ4～8cGyであった．したがって，自然放射線量は測定誤差に含まれる．

(4) 歯牙試料を用いて低エネルギーX線の被曝による吸収線量の評価を行う時には，歯牙自身の減衰を考えなければならない．30keVのX線の場合，大臼歯のように1cmの厚みがあると，歯牙全体がエナメル質であると仮定し，減衰率は88％となり，歯牙の頬側と舌（内）側では12％の線量差がある．本研究では，歯牙を頬側と舌側とに分けず，1つの測定試料としたため，線量評価は過小評価されていると考えられる．また，歯牙の被曝

線量から全身の被曝線量あるいは各臓器の被曝線量を推定することも必要である．今後，放射線技師の過去の作業環境に合わせた放射線場でのファントム実験を加えた．より詳細な解析をしなければならない．

(5) 歯科診療のX線撮影での被曝は，1回につき，ほぼ5mGyと見積られるが[17]，撮影回数が不明の場合が多く，歯科診療を受けた放射線技師については，被曝線量を過大に評価していると考えられる．

VI. 結　論

(1) 放射線被曝に由来する歯エナメルのCO_3^{3-}ラジカルのESR信号を測定するにはマイクロ波強度が30mWのときに，最も感度の良いことが示された．

(2) 歯エナメルの照射線量とESR信号強度との間に良い直線的関係があった．

(3) ESR信号強度は光子エネルギーに依存し，50keV以下では^{60}Co-γ線エネルギーに対して6～7倍の感度を持った．

(4) ESR法による推定線量と技師会方式の計算による推定線量との間に良い相関が得られた．

(5) ESR法による歯を用いた個人線量評価法は，試料を直接，生体から得るので，線量計による線量モニタリングをしていない放射線事故時の被曝量や長期間にわたる蓄積線量の推定に役立つ．

本研究を行うに当たって，快く抜歯試料を提供して頂いた放射線技師の皆様に感謝致します．試料収集およびアンケート調査に御協力頂いた日本放射線技師会事務局ならびに中村實会長に深く感謝の意を表します．また，ESR装置の使用の便宜を計って下さった長崎大学工学部岩本正和助教授に感謝致します．更に，貴重な議論をして頂いた本研究の初期の共同研究者である山口大学工業短大部の池谷元伺教授に感謝致します．本研究は科学技術庁原子力平和利用研究委託費「放射線リスク評価のための低線量反復被曝集団の疫学調査研究」(昭和56年～60年)の一部で行われた．

文　献

1) 昭和56年度—60年度科学技術庁原子力平和利用研究委託費「放射線リスク評価のための低線量反復被曝集団の疫学調査研究」成果報告書，菅原　努編，1982，1983，1984，1985，東京
2) 北畠　隆，岡島俊三：往時における本邦のX線従業員の被曝線量の推定．日本医学放射線学会誌，23(10)：1151—1158，1964
3) 山本洋一：診療放射線技師の被曝線量調査．菅原努編：昭和56年度科学技術庁原子力平和利用研究委託費「放射線リスク評価のための低線量反復被曝集団の疫学調査研究」成果報告書，40—45，1982，東京
4) 池谷元伺，宮島純子，岡島俊三：ESRによる原曝放射線の人体被曝線量評価．日本原子力学会誌，26(10)：878—879，1984
5) Ikeya, M., Miyajima, J., Okajima, S.: ESR dosimetry for atomic bomb survivors using shell buttons and tooth enamel. Jap. J. Appl. Phys., 23(9): 697—699, 1984
6) 宮島純子，岡島俊三，池谷元伺：ESR法による原曝放射線量測定．長崎医学会誌，59(特)：309—315，1984
7) Tatsumi-Miyajima, J. and Okajima, S.: ESR dosimetry using human tooth enamel, Ikeya Med: ESR Dating and Dosimetry 397—405, 1985, Ionics, Tokyo
8) 巽　純子，陳　金娣，島崎達也，岡島俊三：原曝被爆者におけるESR線量測定法の詳細な検討．広島医学，39(3)：418—422，1986
9) Doi, Y., Aoba, T., Takahashi, J., Okazaki, M., Moriwaki, M.: Radiogenic free radicals as molecular probes in bone Calcif. Tiss. Res., 25: 37—43, 1978
10) Martens, L.C., Verbeech, R.M.H., Matthys, P.F. A. and Driessens, F.C.M.: The use of electron spin resonance on human tooth enamel in relation to cariessusceptibility. J. Biol. Buccale, 12: 27—36, 1984
11) Sato, K.: Study of an asymmetric ESR signal in X-irradiated human tooth enamel. Calcif. Tiss. Int., 29: 95—99, 1979
12) 栗田雄喜生：電子スピン共鳴入門．5—22，1974，講談社，東京
13) 桑田敬治，伊藤公一：電子スピン共鳴入門．98—99，1980，南江堂，東京
14) Wachsmann, F. and Dimotsis, A.: Graphs and Tables for radiology, 36—43, 1957, Hirzel, S., Verlag, Stuttgart
15) Radiation Dosimetry: X rays generated at potentials of 5 to 150 KV: International Commission on Radiation Units and Measurements ed: ICRU Report 17, 28, 1970, Washington D.C.
16) Ikeya, M.: A decade of ESR dating from speleology at Akiyoshi-do cave. J. Speleol. Soc. Jpn., 9: 36—57, 1984
17) Ionizing Radiation: Source and biological effects: Unated Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation ed: UNSCEAR 1982 Report, 1982, Unated Nations, New York