

図8-9 カエルの脛骨 骨髓除去
下から、0, 0.05, 0.1, 1, 3, 5kGy の照射量

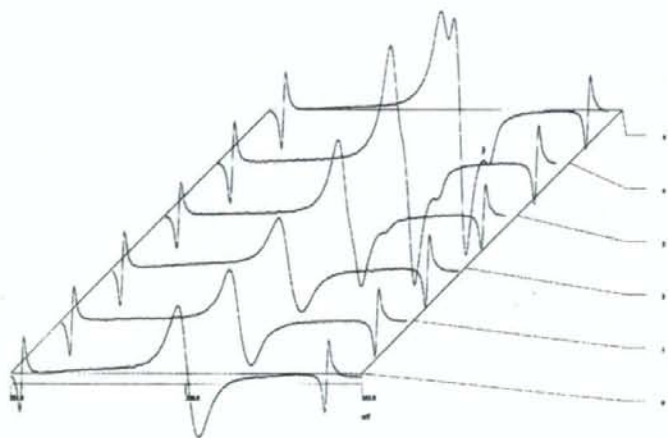


図8-10 カエルの脛骨 骨髓除去せず（有り）
下から、0, 0.05, 0.1, 1, 3, 5kGy の照射量

骨髓があると、照射量に依存してカーボンラジカルのシグナル強度が変化し、ハイドロキシアパタイトのシグナルと重なってしまった。この4つの図から非照射と0.05kGyのスペクトルから照射・未照射が確認できるか、あるいは、0.

0.5kGyと0.1kGyの照射の確認は可能と判断される。そこで、これらのスペクトルを用いて、照射判定の要素を検討した。まず、スペクトルのg値及びその間隔（mT）をスペクトルに示す。

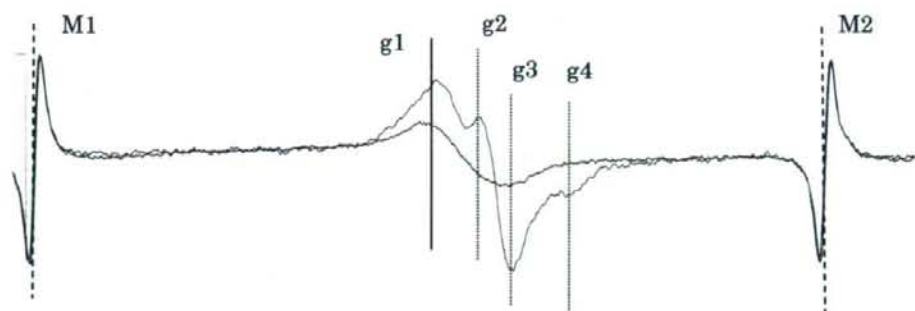


図8-1.1 未照射および1 k Gy照射のカエル大腿骨（骨髓除去）のESRスペクトル

| | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
|----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 磁場 (m T) | 331.125 | 339.802 | 335.499 | 335.991 | 336.350 | 336.975 |
| g 値 | 2.03290 | 1.9810 | 2.0064 | 2.0033 | 2.0013 | 1.9977 |
| 間隔 | M1-M2 | | g2-g3 | g3-g4 | g2-g4 | |
| 磁場 (m T) | 8.677 | | 0.359 | 0.625 | 0.984 | |

図8-1.2 未照射および1 k Gy照射のカエルの大腿骨のESRスペクトルにおける指定した各共鳴磁場およびg値

| 磁場 (mT) | | | | | | |
|-----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| No. | | | | | | |
| 0 kGy | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
| 1 | 331.413 | 340.089 | 335.853 | ** | ** | ** |
| 2 | 331.286 | 339.962 | 335.752 | ** | ** | ** |
| 0.05 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.223 | 339.899 | 335.653 | 336.033 | 336.359 | 336.947 |
| 2 | 331.321 | 339.998 | 335.736 | 336.044 | 336.402 | 336.885 |
| 3 | 331.262 | 339.939 | 335.729 | 335.984 | 336.323 | 336.826 |
| 4 | 331.242 | 339.919 | 335.67 | 335.925 | 336.395 | 336.766 |
| 5 | ----- | ----- | ----- | ----- | ----- | ----- |
| 0.1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.367 | 340.045 | 335.808 | 336.106 | 336.475 | 336.705 |
| 2 | 331.233 | 339.909 | 335.725 | 336.042 | 336.287 | 336.64 |
| 3 | 331.318 | 339.995 | 335.769 | 335.982 | 336.405 | 336.581 |
| 4 | 331.401 | 340.077 | 335.862 | 336.18 | 336.498 | 337.093 |
| 5 | 331.423 | 340.1 | 335.903 | 336.164 | 336.628 | 337.086 |
| 1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.2 | 339.876 | 335.697 | 336.109 | 336.393 | 337.031 |
| 2 | 331.287 | 339.963 | 335.647 | 336.193 | 336.552 | 337.197 |
| 3 | 331.361 | 340.039 | 335.834 | 336.142 | 336.552 | 337.28 |
| 3 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.336 | 340.013 | 335.818 | 336.167 | 336.557 | 337.225 |
| 2 | 331.377 | 340.053 | 335.853 | 336.242 | 336.611 | 337.257 |
| 3 | 331.374 | 340.05 | 335.85 | 336.219 | 336.609 | 337.244 |
| 5 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.306 | 339.982 | 335.782 | 336.213 | 336.571 | 337.191 |
| 2 | 331.341 | 340.018 | 335.803 | 336.254 | 336.603 | 337.229 |
| 3 | 331.164 | 339.841 | 335.61 | 336.071 | 336.409 | 337.054 |
| 4 | 331.422 | 340.099 | 335.873 | 336.325 | 336.673 | 337.309 |
| 5 | 331.333 | 340.011 | 335.836 | 336.224 | 336.583 | 337.217 |
| 6 | 331.177 | 339.854 | 335.674 | 336.063 | 336.412 | 337.078 |

図8-13 カエルの大腿骨（骨髄なし）から得られた ESR シグナルの磁場の値

* シグナルの“ピーク”と判別が難しいもの 照射量：0～0.1 k Gy のすべて
g 2 g 4 の位置のシグナル

| g 値 | | | | | | |
|-----------|---------|---------|---------|---------|----------|----------|
| No. | | | | | | |
| 0kGy | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
| 1 | 2.03287 | 1.981 | 2.00599 | | | |
| 2 | 2.03288 | 1.981 | 2.00584 | | | |
| 0.05 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03289 | 1.981 | 2.00606 | 2.00379 | 2.00185 | 1.99835 |
| 2 | 2.03288 | 1.981 | 2.00615 | 2.00431 | 2.00217 | 1.99931 |
| 3 | 2.03289 | 1.981 | 2.00584 | 2.00431 | 2.0023 | 1.99931 |
| 4 | 2.03289 | 1.981 | 2.00608 | 2.00455 | 2.00175 | 1.99954 |
| 0.1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03289 | 1.981 | 2.00566 | 2.0032 | 2.00151 | 1.99772 |
| 2 | 2.03288 | 1.981 | 2.00647 | 2.00321 | 2.00108 | 1.99725 |
| 3 | 2.03288 | 1.981 | 2.00581 | 2.00397 | 2.00153 | 1.99721 |
| 1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03289 | 1.981 | 2.00566 | 2.0032 | 2.00151 | 1.99772 |
| 2 | 2.03288 | 1.981 | 2.00647 | 2.00321 | 2.00108 | 1.99725 |
| 3 | 2.03288 | 1.981 | 2.00581 | 2.00397 | 2.00153 | 1.99721 |
| 3 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03288 | 1.981 | 2.00575 | 2.00367 | 2.00135 | 1.99738 |
| 2 | 2.03287 | 1.981 | 2.00577 | 2.00345 | 2.00126 | 1.99743 |
| 3 | 2.03287 | 1.981 | 2.00577 | 2.00357 | 2.00126 | 1.99749 |
| 5 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03288 | 1.981 | 2.00578 | 2.00321 | 2.00108 | 1.9974 |
| 2 | 2.03288 | 1.981 | 2.00587 | 2.00318 | 2.0011 | 1.99739 |
| 3 | 2.0329 | 1.981 | 2.00597 | 2.00322 | 2.00121 | 1.99738 |
| 4 | 2.03287 | 1.98101 | 2.00593 | 2.00324 | 2.00117 | 1.99739 |
| 5 | 2.03288 | 1.981 | 2.00563 | 2.00331 | 2.00118 | 1.99741 |
| 6 | 2.0329 | 1.981 | 2.00566 | 2.00334 | 2.00127 | 1.99731 |
| 平均 | 2.03288 | 1.98100 | 2.00588 | 2.00373 | 2.001575 | 1.998310 |
| SD | 0.00008 | 0 | 0.00019 | 0.00050 | 0.00045 | 0.00125 |

図 8-14 カエル大腿骨（骨髄なし）から求められた ESR シグナルの磁場の g 値

0.1kGy以上の照射した試料では、明らかにg1のシグナルの位置(共鳴磁場・g値)が未照射の試料と異なっていた。

以上のような結果からスペクトル上の各位置(g値)は、平均値がより正しいg値であると考えられるが、実用範囲を想定して、次のような大まかなg値を設定する。

$$M1 = 2.032 \pm 0.001, M2 = 1.981 \pm 0.001,$$

$$g1 = 2.007 \pm 0.002, g2 = 2.003 \pm 0.001,$$

$$g3 = 2.002 \pm 0.001,$$

$$g4 = 1.997 \pm 0.001,$$

このさらに、実用的なシグナルの幅(間隔)は、

$$M1-M2 = 8.68 \pm 0.01 \text{ mT},$$

$$g2-g3 = 0.36 \pm 0.01 \text{ mT},$$

$$g3-g4 = 0.63 \pm 0.01 \text{ mT}$$

$$g2-g4 = 0.98 \pm 0.01 \text{ mT}$$

と、設定する。

シグナル強度と照射量の関係を求める。図8-15に示すようにカーボンラジカルとヒドロキシラジカルが照射量に応じてそれぞれ独立しシグナル強度が変化することを考慮すると、区別して強度を求めることはできない。差スペクトルを求めるとその可能性は否定できないが、判定基準に未照射を証明された試料を用いることはできないので、試料のシグナルを区別せずに一つのシグナルとして強度を求めた。

図8-17から確認できるように、照射量に応じて2つのラジカル、すなわちカーボンラジカルとヒドロキシアパタイトのシグナルは照射量に依存して強くなっていることが確認できた。照射量に応じて2種類の異なる成分が同じシグナル増加をしているので、グラフから未照射・照射の区別を

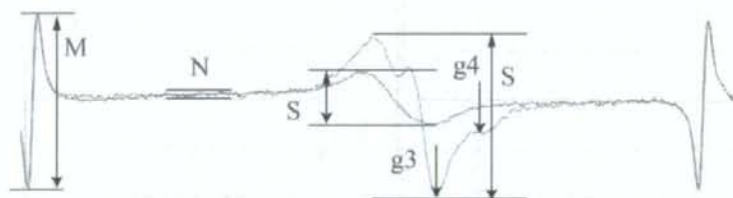


図8-15 カエル大腿骨のシグナル強度のESRシグナル強度

M: マンガンマーカ N: ノイズ S: 試料のシグナル

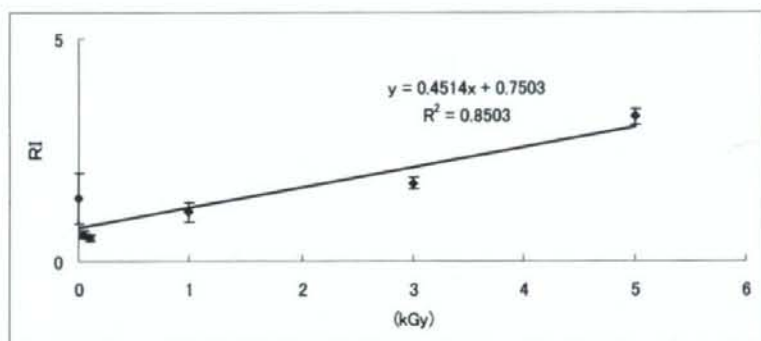


図8-16 カエル大腿骨(骨髄なし)のESRシグナル強度(S/M)

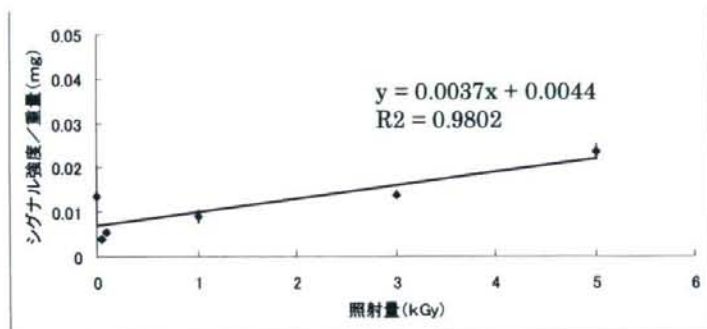


図8-17 カエルの大腿骨のシグナル強度値を各骨の重量で規格化した結果

つけることは難しい。図中のg4の位置のシグナルが出現するのは、1kGy以上の照射で確認できる。

カエルの大腿骨において照射・未照射の区別の方法は、

- ①シグナルの位置、g 2、g 3、g 4が判別できること。
- ②カーボンラジカルのピークの位置、すなわち、g 1の位置はほとんど変化しない。
- ③g 1、g 2が確認でき、g 2からのピークからベースラインにもどる線にg 4の一あたりに小さなシグナルを見つけた場合は、照射した可能性がある。

照射量：未照射スペクトルについて

シグナル強度とノイズレベル：S/N = 50 / 27 = 1.85

マンガンマーカとの比較：S/M = 470 / 1760 = 0.267

照射量：1 kGy スペクトルについて

シグナル強度とノイズレベル：S/N = 1084 /

44 = 24.63

マンガンマーカとの比較：S/M = 1084 / 1587 = 0.683

0.01kGy照射においては、g2, g3, g4のシグナルは判別できなかった。上記の数字を見ると、0.5kGyであれば約S/Nは12.32と推測される。

カエルの放射線照射の検知の為の下限值：1 k Gy (場合によって、0.5 k Gy)

9. サバ

9.1 サバの骨の条件設定

(1) ESRの測定条件

キャビティの内標準物質であるマンガンマーカの6本のシグナルのうち、3番目と4番目の間に照射後のシグナルが検出できることから、これらのESRシグナルが現在の装置で問題なく測定可能である条件を設定した。なお、照射強度によりシグナル変化から、シグナル強度は照射量に依存し、また、複数のシグナルが重なっていると判

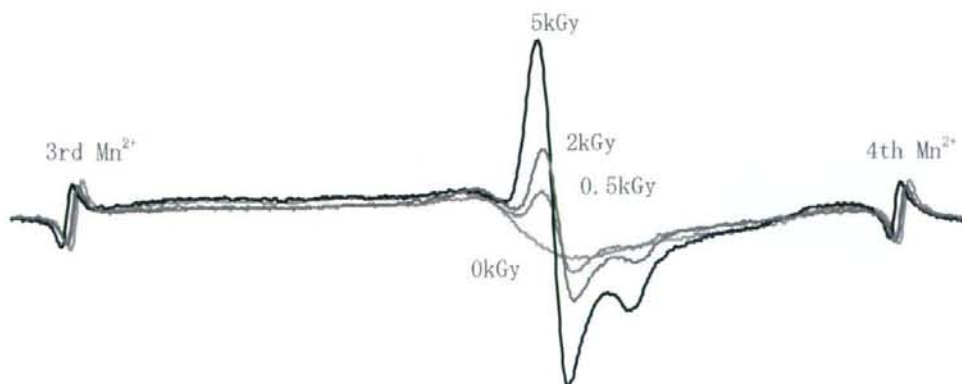


図9-1 照射量依存性を示すサバの骨のESRスペクトル

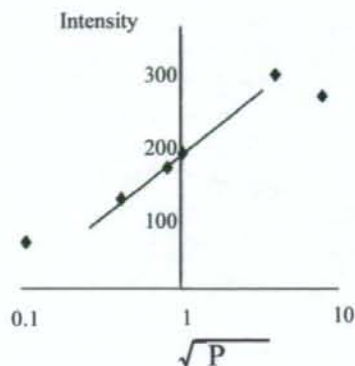


図9-2 サバの骨(照射量5kGy)とマイクロ波出力値の関係

断されたため、5kGyの照射した試料のシグナルをもとに磁場変調においては、スペクトル全体がゆがまず、かつ、最大信号強度付近になる値を設定した。

この値は磁場変調周波数100kHz/0.2mTである。また、マイクロ波出力においては、信号強度と平方根(出力値)の関係が直線になる値を求めた。その結果、2mWと決定した。

サバの骨のESR条件(例)

Microwave: 9427.944 MHz / 2mW *
 Field: 335.700 ± 5mT *
 modulation: 100kHz / 0.2mT
 TC: 0.1sec, Sweep Time: 2min *
 AMP: × 500 *
 マーカーの値: 600~800 *

*マイクロ波周波数は、サンプルの試料の大きさ・形状(曲がり・直線性など)によって、また、若干の水分含量などによって共鳴周波数の値は変動する。

*共鳴磁場は、上記の共鳴周波数によって決定するため(操作上の優先順位のため)、マンガンマーカーを含めた全体のシグナルが低磁場側あるいは高磁場側へ若干ずれることがある。この場合は、左右のマンガンマーカーのシグナルが10mTの磁場掃引幅に入るように設定する。

*時定数(Time Constant: TC)と掃引時間は、

磁場掃引幅とS/N比の関係から、最適値があるためこの値とした

*AMP(拡大・縮小)においては、今回使用した日本電子製のESR装置(FAシリーズではダイナミックレンジが広く取られている)がデジタル信号処理され、スペクトル表示される。よって、標準表示で提供される幅の中でこの値を決定した。

(2) ESR測定条件 2

マンガンマーカーのキャピティへの挿入値は、試料の0.5kGy照射したものを参考にして、決定した。ただし、ロットによってマンガンマーカーは、同一条件下において線幅および信号強度にばらつきが生じる可能性がある。600~800の値とした。

(3) ESR差スペクトル

照射した骨のスペクトルから非照射の骨のスペクトルを差し引くことにより、差スペクトルを作成した。この操作により、非照射の骨にはバックグラウンドのシグナルが認められ、放射線を照射することにより、照射特有のシグナルがサバの骨(小骨・側骨)には認められた。図9-3の(a)のスペクトルがずれているのは、小骨を小さく切断(長いものは湾曲して試料管に入らない)し、試料管の高さを22.0~25.5mmにそろえているが、異なる充填率、タンパク組織の含有量、微量の金属含有量などで各試料の共鳴周波数・共鳴磁場に違いが現れたと推定する。

差スペクトルを作成する場合、照射試料のスペクトルをそのまま、マンガンマーカーの3本目のシグナルを基準にし、非照射試料(0kGy)のスペクトルのマーカーを併せて処理を行った。

試料の高さ(長さ)は、21.0~25.5mm、重量は110~131mgで行った。小骨を1~2mmに切断後、試料管に充填しており、ここでの目的がESRの測定条件であるため、照射試料のラジカル量に与える影響は微小と考え補正は行わなかった。

差スペクトルの算出したスペクトルは図9-3(b)である。(b)のスペクトルがずれているのは、元のスペクトルの共鳴周波数・磁場がずれているため、一見、g値がずれているように見える

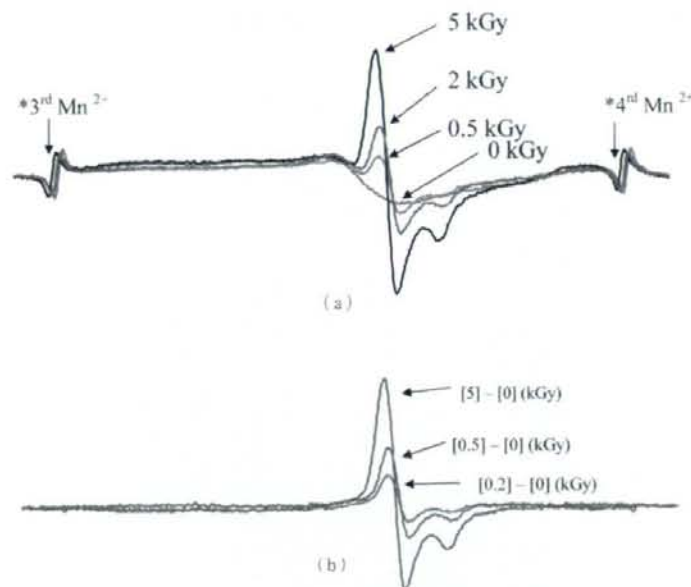


図9-3 サバのESRスペクトル (a) 照射量0~5 kGy (b) 差スペクトル

が、同じ値を示した。よって、スペクトルのパターンおよびg値より差スペクトルで観測される放射線照射量依存性のあるスペクトルは、ヒドロキシアパタイトが骨の組織に含有された状態で観測された物と判断した。照射していない骨と照射した骨の差スペクトルをとり、g値の計算を行った。その結果、低磁場側の照射していない骨においても確認されるシグナルのg値は2.004、差スペクトルから得られたg値は、2.0022および1.981であった。このことから、非照射においてあるいは照射後にも確認される低磁場側のシグナルは、カーボンあるいは有機ラジカルと推定され、一方、照射量に依存してシグナル強度が大きくなる物は、骨の構成成分であるヒドロキシアパタイトが骨組織に内包されてラジカル化されているものと判断した。

g値の算出には、マンガンマーカのg値とそのマーカースIGNALの間隔から、試料スペクトルに記した矢印のg値を算出した。これには日本電子製のFAシリーズの機能である周波数によるマンガンマーカのg値補正プログラム(標準装備)で行った。

9.2 試料の大きさ

サバなどの魚介類の場合、どの部分の骨を用いるかは重要な点である。今回は、これまでの報告に従って背骨と小骨を利用し、小骨についての実験を行った。小骨については、長いものもあれば短い物もあり、内径4mmの試料管に挿入する場合、その充填率でシグナルの強度が変わってくる。そのため10・20・30・40mmの高さでどのようにスペクトルが変化するかを確認した。しかしながら、取り出した小骨の大きさにばらつきがあり、また、重量にも影響を与えていることが判明したため、この実験を中止した。すでに、ハマグリでの貝殻を粉末にし、重量による(粒径をそろえているので高さも比例する)シグナル強度しらべているので、これを参考に、約20~40mmの長さで試料を整え測定を行った。

すでに未照射のサバの試料においてもカーボンラジカルは確認できた。照射に応じて、カーボンラジカルは大きくなり、0.1kGyあたりの照射量のESRスペクトルから、カーボンラジカルと重なっているところがシフトしているように見えるが、判断機器順としてつける要因ではない。1kGyではヒドロキシアパタイトのラジカルシグナルが確認できる。しかしながら、カーボン

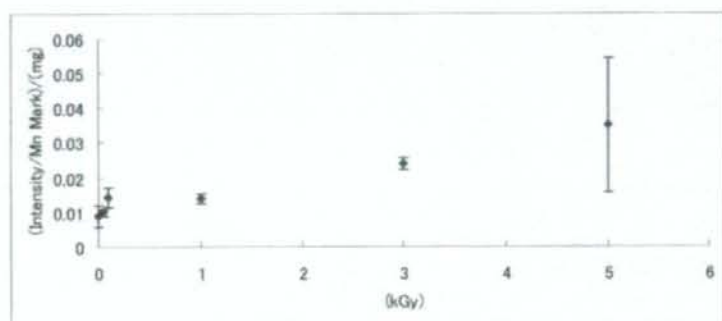


図9-4 照射量とサバの小骨のESRシグナル強度の関係 (n = 3 ~ 8)

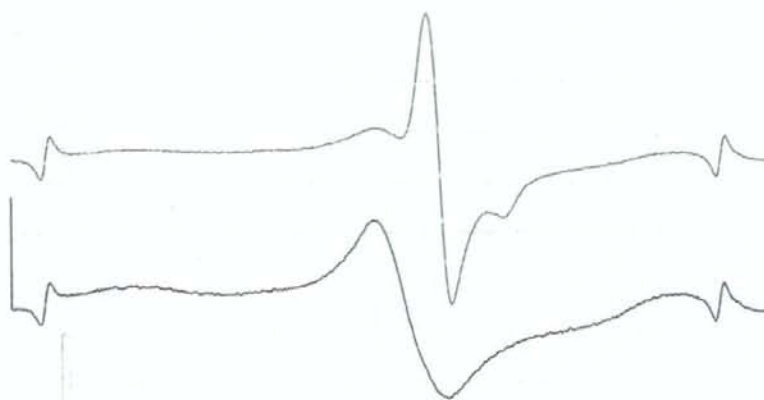


図9-5 サバの骨のESRスペクトル (上: 5 kGy, 下0.1 kGy)

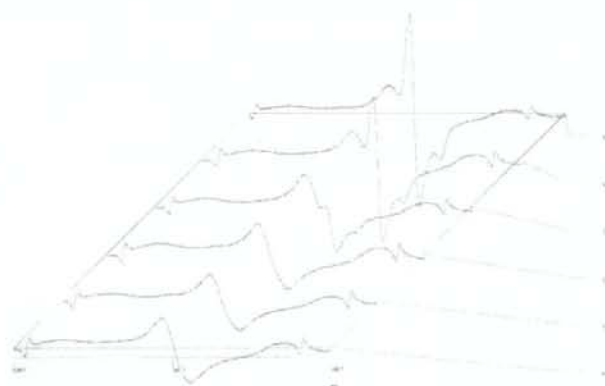


図9-6 サバの小骨のESRスペクトル (下から照射量 0, 0.01, 0.05, 0.1, 1, 3, 5 kGy)

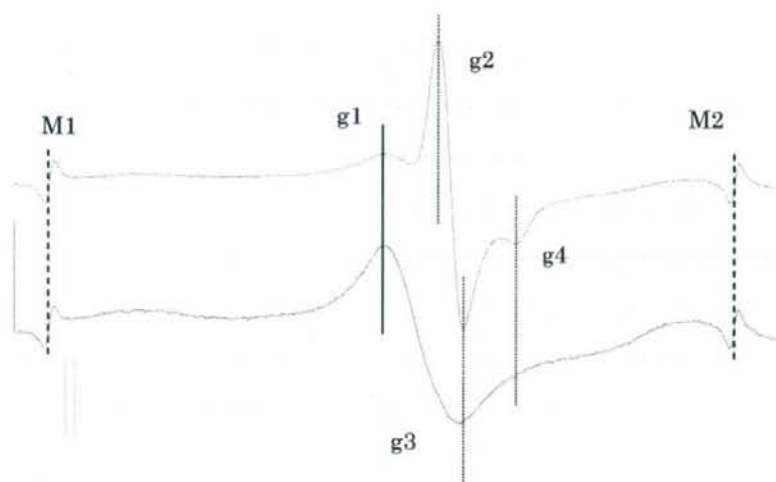
ラジカルより大きくなることはなく、それ以下の信号強度である。3 kGy でやっ、カーボンラジカルの信号強度と同等かそれ以上になった。図9-6にそれを示す。シグナル強度では判別するのはむずかしい。カエルの場合と同様に、スペクトルパターンとその位置から割り出す方法がよいと考えられる。

9-3 サバの骨のESRパターンとその検知のた

めの要素

照射した試料であることを確認するためのシグナルの位置をg1~g2までを指定し、その確認を行った。未照射では、g1・g3が検出され、照射量が多くなるとg2およびg4が確認できた。低線量の時は、g4の位置のシグナルを確認することで照射であると、判定してよいと考えられる。

以上のような結果からスペクトル上の各位置



(a)

| | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 磁場 (mT) | 331.655 | 340.331 | 335.911 | 336.547 | 336.875 | 337.562 |
| g 値 | 2.03284 | 1.9810 | 2.0071 | 2.0033 | 2.0013 | 1.9973 |
| 間隔 | M1-M2 | | g2-g3 | g3-g4 | g2-g4 | |
| 磁場 (mT) | 8.676 | | 0.328 | 0.687 | 0.687 | |

(b)

図9-7 サバの骨のESRパターンとそのg値 (a) スペクトルとそのg値の位置、(b) 各g値とその距離 (mT)

| 磁場 (mT) | | | | | | |
|-----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| No. | | | | | | |
| 0 kGv | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
| 1 | 331.41 | 340.046 | 335.631 | | 336.564 | |
| 2 | 331.286 | 339.962 | 335.752 | | 336.479 | |
| 3 | 31.369 | 340.046 | 335.827 | | 336.528 | |
| 4 | 331.393 | 340.068 | 335.612 | | 336.557 | |
| 5 | 331.153 | 339.829 | 335.368 | | 336.291 | |
| 6 | 331.161 | 339.837 | 335.402 | | 336.272 | |
| 7 | 331.391 | 340.066 | 335.606 | | 336.498 | |
| 0.05 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.274 | 339.951 | 335.489 | | 336.454 | |
| 2 | 331.385 | 340.06 | 335.589 | | 336.543 | |
| 3 | 331.154 | 339.83 | 335.405 | | 336.337 | |
| 4 | 331.092 | 339.77 | 335.354 | | 336.285 | |
| 5 | ----- | ----- | ----- | ----- | ----- | ----- |
| 0.1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.063 | 339.74 | 335.324 | | 336.255 | |
| 2 | 331.124 | 339.801 | 335.423 | | 336.376 | |
| 3 | 331.063 | 339.74 | 335.275 | | 336.207 | |
| 1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.195 | 339.87 | 335.427 | 336.08 | 336.449 | 337.115 |
| 2 | 331.148 | 339.824 | 335.381 | 336.034 | 336.402 | 337.068 |
| 3 | 331.148 | 339.824 | 335.381 | 336.034 | 336.402 | 337.068 |
| 3 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.334 | 340.011 | 335.585 | 336.241 | 336.579 | 337.224 |
| 2 | 331.235 | 339.911 | 335.465 | 336.042 | 336.38 | 337.046 |
| 3 | 331.179 | 339.857 | 335.451 | 336.086 | 336.424 | 337.09 |
| 5 k Gy | | | | | | |
| 1 | 331.503 | 340.179 | 335.795 | 336.418 | 336.725 | 337.42 |
| 2 | 331.503 | 340.179 | 335.748 | 336.415 | 336.743 | 337.375 |
| 3 | 331.355 | 340.033 | 335.596 | 336.263 | 336.601 | 337.256 |
| 4 | 331.24 | 339.918 | 335.502 | 336.156 | 336.5 | 337.121 |
| 5 | 330.845 | 339.521 | 335.137 | 335.76 | 336.067 | 336.762 |

図9-8 サバの小骨から得られた ESR シグナルの磁場の値

* シグナルの“ピーク”と判別が難しいもの 照射量: 0~0.1 k Gy
 のすべて g 2 g 4 の位置のシグナル

| 磁場 (mT) | | | | | | |
|-----------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|
| No. | | | | | | |
| 0 kGv | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 |
| 1 | 2.0325 | 1.981 | 2.0040 | / | 2.0014 | / |
| 2 | 2.0329 | 1.981 | 2.0071 | | 2.0018 | |
| 3 | 2.0329 | 1.981 | 2.0073 | | 2.0017 | |
| 4 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0073 | | 2.0017 | |
| 5 | 2.0329 | 1.981 | 2.0074 | | 2.0018 | |
| 6 | 2.0329 | 1.981 | 2.0072 | | 2.002 | |
| 7 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0073 | | 2.0020 | |
| 0.05 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.0329 | 1.981 | 2.0074 | / | 2.0016 | / |
| 2 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0074 | | 2.0017 | |
| 3 | 2.0329 | 1.981 | 2.0071 | | 2.0016 | |
| 4 | 2.0329 | 1.981 | 2.0071 | | 2.0015 | |
| 5 | ----- | ----- | ----- | | ----- | |
| 0.1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0071 | / | 2.0015 | / |
| 2 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0068 | | 2.0011 | |
| 3 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0074 | | 2.0018 | |
| 1 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.0329 | 1.981 | 2.0072 | 2.0033 | 2.0011 | 1.9972 |
| 2 | 2.0329 | 1.981 | 2.0072 | 2.0033 | 2.0012 | 1.9972 |
| 3 | 2.0329 | 1.981 | 2.0072 | 2.0033 | 2.0012 | 1.9972 |
| 3 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03289 | 1.981 | 2.0072 | 2.0033 | 2.0011 | 1.9972 |
| 2 | 2.03289 | 1.981 | 2.0073 | 2.0038 | 2.0018 | 1.9978 |
| 3 | 2.03262 | 1.9807 | 2.0067 | 2.0029 | 2.0009 | 1.9970 |
| 5 k Gy | | | | | | |
| 1 | 2.03286 | 1.9810 | 2.0069 | 2.0032 | 2.0013 | 1.9972 |
| 2 | 2.03286 | 1.9810 | 2.0072 | 2.0032 | 2.0012 | 1.9975 |
| 3 | 2.03288 | 1.981 | 2.0072 | 2.0032 | 2.0032 | 1.9973 |
| 4 | 2.03259 | 1.9807 | 2.0068 | 2.0029 | 2.0008 | 1.9971 |
| 5 | 2.03293 | 1.9810 | 2.0069 | 2.0032 | 2.0013 | 1.9972 |

図9-9 サバの小骨から得られた ESR シグナルの g 値

(g 値) は、平均値がより正しい g 値であると考えられるが、実用範囲を想定して、次のような大まかな g 値を設定する。

$$M1 = 2.032 \pm 0.001, M2 = 1.981 \pm 0.001,$$

$$g1 = 2.007 \pm 0.002, g2 = 2.003 \pm 0.001,$$

$$g3 = 2.001 \pm 0.001,$$

$$g4 = 1.997 \pm 0.001,$$

このさらに、実用的なシグナルの幅 (間隔) は、

$$M1-M2 = 8.68 \pm 0.01 \text{ mT},$$

$$g2-g3 = 0.33 \pm 0.01 \text{ mT},$$

$$g3-g4 = 0.67 \pm 0.01 \text{ mT}$$

$$g2-g4 = 0.67 \pm 0.01 \text{ mT}$$

と、設定する。

シグナル強度と照射量の関係を求める。図 9-6 に示すようにカーボンラジカルとヒドロキシラジカルが照射量に応じてそれぞれ独立しシグナ

ル強度が変化することを考慮すると、区別して強度を求めることはできない。差スペクトルを求めるとその可能性は否定できないが、判定基準に未照射を証明された試料を用いることはできないので、試料のシグナルを区別せずに一つのシグナルとして強度を求めた。

ESRを用いた限界値は、本実験においては 1 kGy が限界値と思われる。

10. ハマグリ

10.1 ハマグリ (貝殻) の条件設定

(1) ESRの測定条件

キャビティの内標準物質であるマンガンマーカ-の6本のシグナルのうち、3番目と4番目の

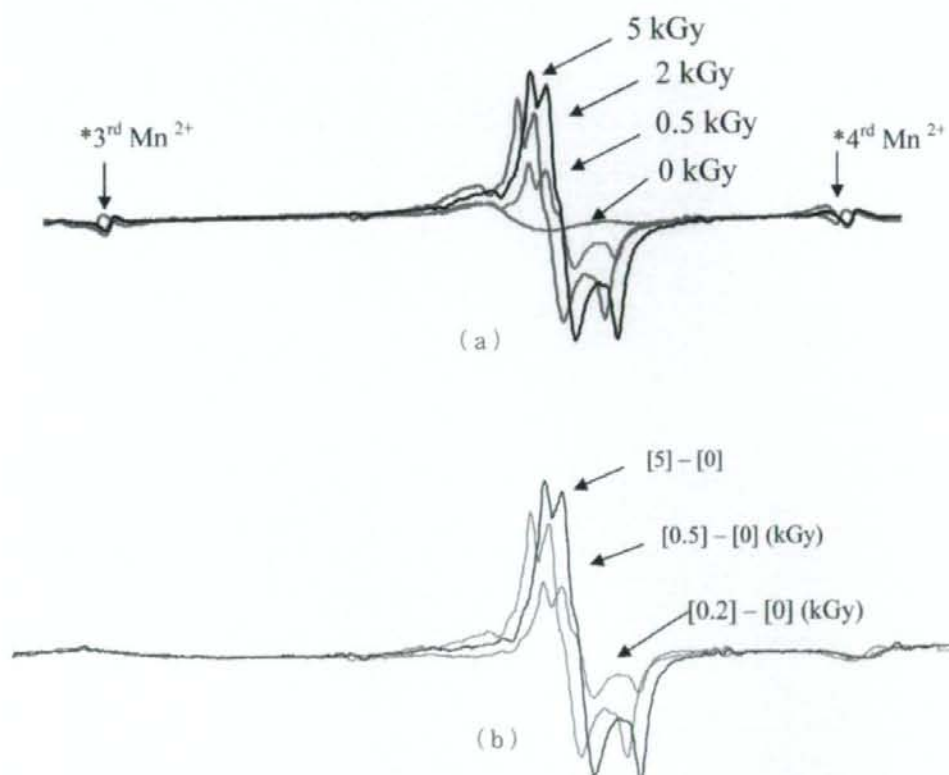


図 10-1 照射量依存性を示すハマグリ (貝殻) の ESR スペクトル

(a) 照射量依存的なスペクトル (b) 0 kGy を元に各照射量の試料のスペクトルより差スペクトルを求めた結果。

間に照射後のシグナルが検出できることから、これらのESRシグナルが現在の装置で問題なく測定可能である条件を設定した。なお、照射強度によりシグナル変化から、シグナル強度は照射量に依存し、また、複数のシグナルが重なっていると判断されたため、5 k Gyの照射した試料のシグナルをもとに磁場変調においては、スペクトル全体がゆがまず、かつ、最大信号強度付近になる値を設定した。

この値は磁場変調周波数100 kHz / 0.1 mTである。また、マイクロ波出力においては、信号強度と平方根（出力値）の関係が直線になる値を求めた。その結果、0.4 mWと決定した。

試料量は、各照射によって個体差が生じたデータとなるため、試料の高さ（長さ）を20.4 ~ 22.5 mmに調整、その結果、試料重量は220 ~ 249 mgとなった。高さおよび重量は共にCV (%) が約5%となった。ここでの目的がESRの測定条件であるため、照射試料のラジカル量に与える影響は微小と考え補正は行わなかった。

ハマグリ（貝殻）のESR条件（例）

Microwave: 9426.519 MHz / 0.4mW *

Field: 335.709 ± 5mT *

modulation: 100kHz / 0.1 mT

TC: 0.1sec, Sweep Time: 2min *

AMP: × 200 *

マーカーの値: 600 ~ 800 *

*マイクロ波周波数は、サンプルの試料の大きさ・

形状（曲がり・直線性など）によって、また、若干の水分含量などによって共鳴周波数の値は変動する。

*共鳴磁場は、上記の共鳴周波数によって決定するため（操作上の優先順位のため）、マンガンマーカーを含めた全体のシグナルが低磁場側あるいは高磁場側へ若干ずれることがある。この場合は、左右のマンガンマーカーのシグナルが10 mTの磁場掃引幅に入るように設定する。

*時定数（Time Constant: TC）と掃引時間は、磁場掃引幅とS/N比の関係から、最適値があるためこの値とした

*AMP（拡大・縮小）においては、今回使用した日本電子製のESR装置（FAシリーズではダイナミックレンジが広く取られている）がデジタル信号処理され、スペクトル表示される。よって、標準表示で提供される幅の中でこの値を決定した。

(2) ESR測定条件 2

マンガンマーカーのキャピティへの挿入値は、試料の0.5 k Gy照射したものを参考にして、決定した。ただし、ロットによってマンガンマーカーは、同一条件下において線幅および信号強度にばらつきが生じる可能性がある。600 ~ 800の値とした。

(3) ハマグリ（貝殻）の試料管に詰める量の検討

市販されているESR試料管の長さは30 cmほどあり、取り扱いが面倒である。また、試料作成においても、測定に十分な量が確保できれば前処理も簡易になると考えられる。そこで、ESRの測定部およびラジカルの検出方法を考慮して、試料管に充填するハマグリ（貝殻）の粉末の量（重量）を検討した。すでに、アラニンペレットの検討した結果を考慮し、粉末の高さを2種類、10 mmと20 mmで検討した。結果は以下のテーブルに示すとおり。

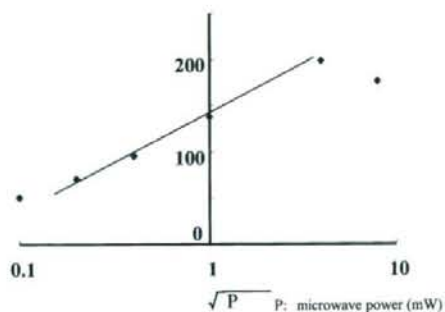


図10-2 ハマグリ（貝殻：照射量5 k Gy）のシグナル強度とマイクロ波出力値の関係

| 高さ (mm) | (kGy) | シグナル強度 |
|---------|-------|--------|
| 20 | 0.5 | 5428 |
| | 2 | 7977 |
| | 5 | 12138 |
| 10 | 0.5 | 2208 |
| | 2 | 4677 |
| | 5 | 5637 |

10mmでは5kGyでシグナル強度が頭打ちになっていることから、すでに、この量ではマイクロ波の飽和現象が生じている可能性がある。そこで、今回は、試料を20mm以上に設定することにした。ただし、測定部のキャピティの大きさ(高さ)は測定に用いるマイクロ波の波長に併せて設計され、そのマイクロ波の磁界の分布が大きく影響を与えていると推測される。よって、測定部における充填率(粒子の大きさ・形状・粒子のばらつきなどの影響)が測定に影響を与えると考えられるため、約20~40mmの範囲で測定を行うことにした。

(4) ESRスペクトルの同定

差スペクトルの算出したスペクトルは図10-3(b)である。(b)のスペクトルがずれているのは、元のスペクトルの共鳴周波数・磁場がずれているため、一見、g値がずれているように見えるが、同じ値を示した。よって、スペクトルのパターンおよびg値より差スペクトルで観測される放射線照射量依存性のあるスペクトルはハイドロキシアパタイトが骨の組織に含有された状態で観測された物と判断した。照射していない骨と照射した骨の差スペクトルをとり、g値の計算

を行った。その結果、低磁場側の照射していない骨においても確認されるシグナルのg値は2.004、差スペクトルから得られたg値は、2.0016および1.9985であった。このことから、非照射においてあるいは照射後にも確認される低磁場側のシグナルは、カーボンあるいは有機ラジカルと推定され、一方、照射量に依存してシグナル強度が大きくなる物は、骨の構成成分であるハイドロキシアパタイトが骨組織に内包されてラジカル化されているものと判断した。

g値の算出には、マンガンマーカのg値とそのマーカ信号の間隔から、試料スペクトルに記した矢印のg値を算出した。これには日本電子製のFAシリーズの機能である周波数によるマンガンマーカのg値補正プログラム(標準装備)で行った。

(5) ハマグリ(貝殻)のESRシグナル照射量依存性の確認

コバルト60による照射量は、0.05・0.1・1・3・5 kGyである。0kGyは本研究室で保管した物を用いた。各照射量に対して個体数5個以上、照射後、凍結保存し、解凍後メノー乳鉢で粉末後、ふるいで粒子の大きさを一定以下にし、実験に用いた。(3.3 ハマグリのプロトコル参照)

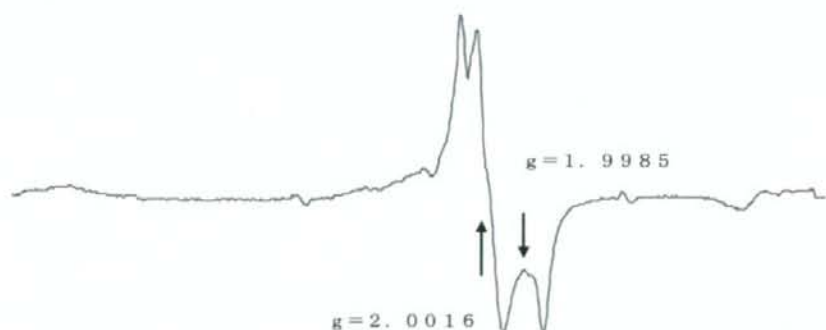


図10-3 ハマグリ(貝殻)の差スペクトル

| NO | 照射量 (kGy) | | | | | |
|----|-----------|------|-----|-----|-----|-----|
| | 0 | 0.05 | 0.1 | 1 | 3 | 5 |
| 1 | 484 | 586 | 501 | 519 | 574 | 548 |
| 2 | 582 | 561 | 558 | 536 | 692 | 545 |
| 3 | 548 | 499 | 662 | 571 | 546 | 568 |
| 4 | 418 | 486 | 581 | 491 | 558 | 577 |
| 5 | 508 | 503 | 675 | 624 | 633 | 496 |

図10-4 ハマグリ（貝殻）の測定に用いた粉末量 (mg)

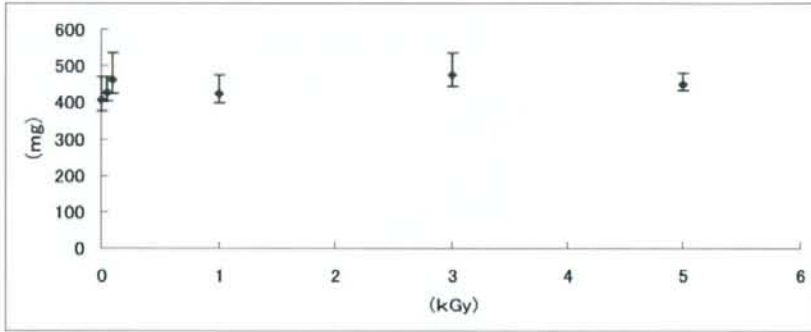


図10-5 ハマグリ（貝殻）の測定に用いた粉末量 (mg) と照射量の関係
各照射プロットのバーは平均重量の標準偏差を示す。

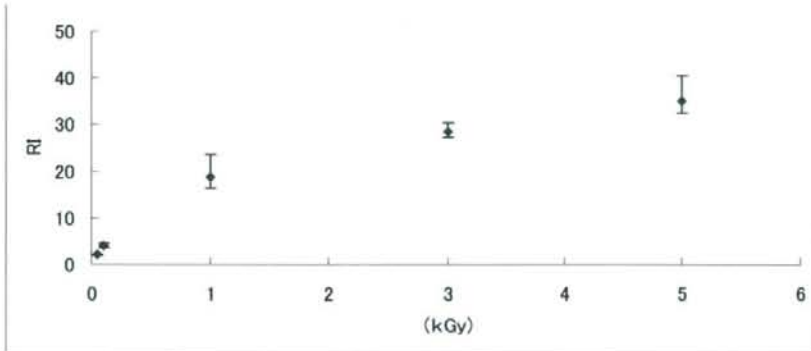


図10-6 ハマグリ（貝殻）のESRシグナル強度（マンガンマーカ－との相対強度比）と照射量の関係：各照射プロットのバーは平均シグナル強度の標準偏差を示す

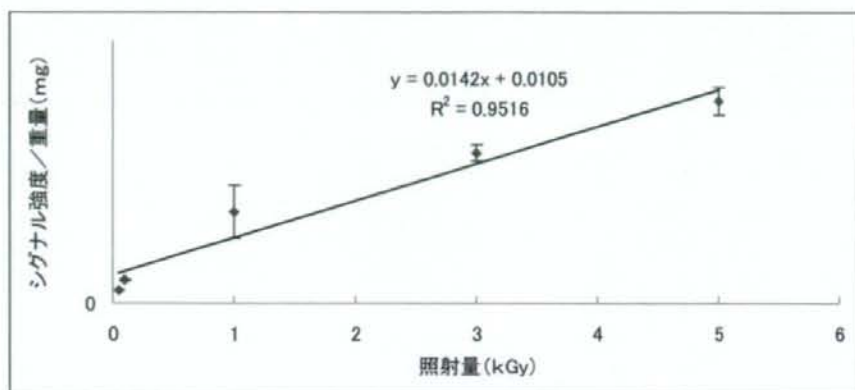


図10-7 ハマグリ（貝殻）のESRシグナル強度を各試料の重量で規格した値と各照射量との関係：各照射プロットのバーは平均面積値の標準偏差を示す

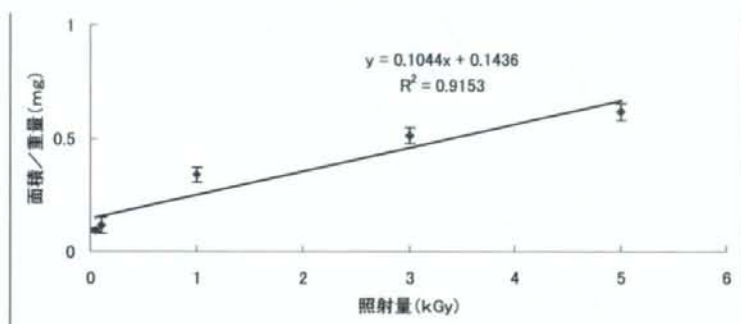


図10-8 ハマグリ（貝殻）のESRスペクトル面積と照射量の関係
各照射プロットのバーは平均面積値の標準偏差を示す。

以上のように、各照射量について、ESRシグナル強度（マンガンマーカによる相対強度比）・各試料の重量によるESRシグナル強度の規格化、さらに差スペクトル（0 kGyのシグナルを差し引く操作）においてシグナルの面積を求め各試料の重量で規格化を行った。なお、図7-1においては0 kGyの試料の重量がデータに含まれているが、図10-7、8においてはシグナルのパターンが明らかに異なるため、データには含まれていない。また、差スペクトルにおいて差し引くための非照射の試料は、便宜上、図10-3の0 kGy・No. 1の試料を使用し、マンガンマーカで共鳴磁場を併せ算出した。各照射試料のスペクトルを図に示す。図10-9から照射依存的に変化していることが確認でき

る。

以上の図およびスペクトルから今回の照射量範囲におけるESRスペクトルの照射量依存性は確認できた。

10.2 ハマグリ（貝殻）のESRパターンとその検知のための要素

各低照射量 0・0.05・0.1 kGyのスペクトルを図に示す。

この3つの図から照射していることが明らかである。そこで、これらのスペクトルを用いて、照射判定の要素を検討した。まず、スペクトルのg値及びその間隔（mT）をスペクトルに示す。

上記、図10-14の値が、測定した値と一致するか検討を行った。なお、照射量0 kGyの試

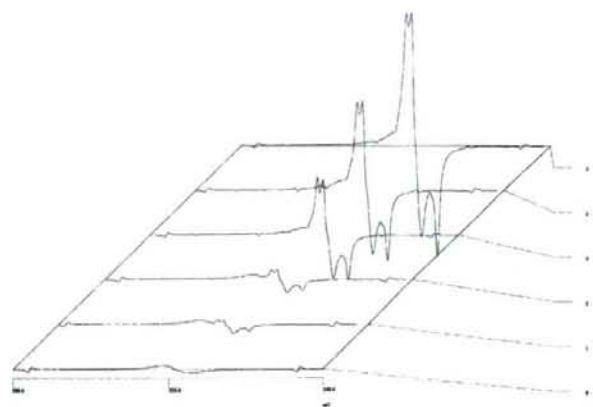


図10-9 ハマグリ（貝殻）の放射線量依存的なESRスペクトルの変化
 下より0（非照射）・0.05・0.1・1・3・5 kGyの照射量である。各スペクトルの両端のシグナルはマンガンマーカ（3本めと4本目）である。

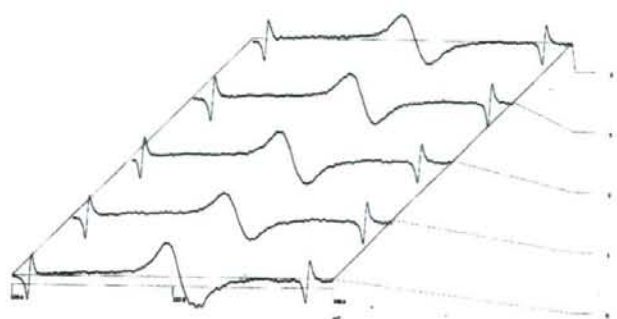


図10-10 ハマグリ（貝殻）の非照射試料のESRスペクトル



図10-11 0.05 kGy照射したハマグリ（貝殻）のESRスペクトル

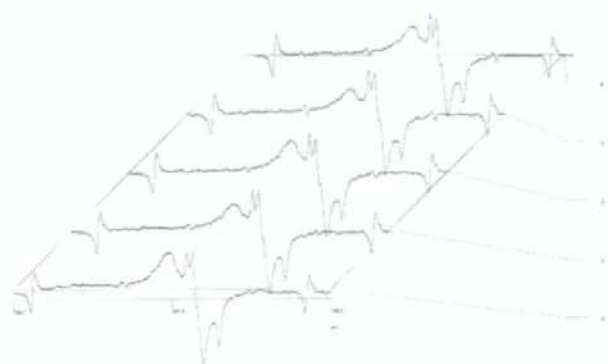


図10-12 0.1 kGy照射したハマグリ（貝殻）のESRスペクトル

料においては、図中のg2～g5までの“くさび形”のスペクトルパターンは見られないため、こ
 れらのデータは除外した。

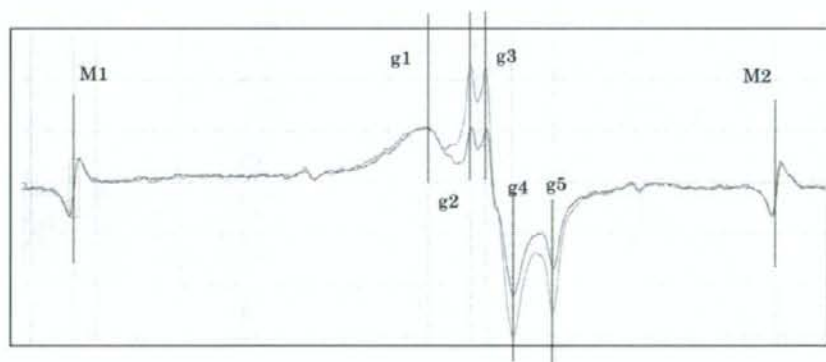


図10-13 0.05および0.1 kGy照射のハマグリ（貝殻）のESRスペクトル

| | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 | g5 |
|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 磁場 (mT) | 330.975 | 339.652 | 335.355 | 335.875 | 336.052 | 336.381 | 336.887 |
| g 値 | 2.0329 | 1.9810 | 2.0064 | 2.0033 | 2.0022 | 2.0003 | 1.9973 |
| 間隔 | M1-M2 | | g2-g3 | g2-g4 | g3-g4 | g2-g5 | |
| 磁場 (mT) | 8.676 | | 0.177 | 0.506 | 0.496 | 1.012 | |

図10-14 0.05および0.1 k Gy照射のハマグリ(貝殻)のESRスペクトルにおける指定した各共鳴磁場およびg値

以上のような結果からスペクトル上の各位置 (g 値) を設定する。

値)は、平均値がより正しいg値であると考えら

れるが、実用範囲を想定して、次のような大まか M1 = 2.032 +/- 0.001, M2 = 1.981 +/- 0.001,

| 磁場 (mT) | | | | | | | |
|-----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| No. | | | | | | | |
| 0 kGy | M1 | M2 | g1 | g2 | g3 | g4 | g5 |
| 1 | 331.091 | 339.749 | 335.379 | | | | |
| 2 | 330.938 | 339.613 | 335.316 | | | | |
| 3 | 330.794 | 339.471 | 335.379 | | | | |
| 4 | 331.116 | 339.792 | 335.488 | | | | |
| 5 | 330.982 | 339.667 | 335.297 | | | | |
| 0.05 k Gy | | | | | | | |
| 1 | 330.712 | 339.388 | 335.071 | 335.619 | 335.811 | 336.14 | 336.62 |
| 2 | 330.97 | 339.646 | 335.288 | 335.863 | 336.055 | 336.384 | 336.864 |
| 3 | 330.917 | 339.594 | 335.265 | 335.829 | 336.021 | 336.352 | 336.833 |
| 4 | 330.938 | 339.614 | 335.256 | 335.818 | 336.009 | 336.352 | 336.845 |
| 5 | 331.044 | 339.721 | 335.742 | 335.951 | 336.13 | 336.47 | 336.952 |
| 0.1 k Gy | | | | | | | |
| 1 | 330.975 | 339.652 | 335.348 | 335.882 | 336.06 | 336.403 | 336.883 |
| 2 | 331.00 | 339.677 | 335.318 | 335.894 | 336.086 | 336.428 | 336.908 |
| 3 | 330.78 | 339.456 | 335.125 | 335.687 | 335.865 | 336.194 | 336.687 |
| 4 | 330.876 | 339.553 | 335.235 | 335.783 | 335.962 | 336.304 | 336.784 |
| 5 | 330.752 | 339.427 | 335.089 | 335.65 | 335.842 | 336.157 | 336.663 |
| 1 k Gy | | | | | | | |
| 1 | 331.001 | 339.678 | 335.463 | 335.901 | 336.079 | 336.421 | 336.913 |
| 2 | 330.948 | 339.624 | 335.362 | 335.855 | 336.02 | 336.376 | 336.856 |
| 3 | 330.832 | 339.51 | 335.29 | 335.759 | 335.19 | 336.252 | 336.758 |
| 4 | 330.947 | 339.623 | 335.326 | 335.86 | 336.024 | 336.366 | 336.845 |
| 5 | 330.743 | 339.42 | 335.198 | 335.65 | 335.815 | 336.171 | 336.664 |
| 3 k Gy | | | | | | | |
| 1 | 330.807 | 339.483 | 335.248 | 335.714 | 335.884 | 336.221 | 336.715 |
| 2 | 330.746 | 339.423 | 335.204 | 335.684 | 335.848 | 336.178 | 336.65 |
| 3 | 330.862 | 339.539 | 335.207 | 335.772 | 335.938 | 336.29 | 336.77 |
| 4 | 330.812 | 339.489 | 335.253 | 335.728 | 335.895 | 336.22 | 336.7 |
| 5 | 330.805 | 339.482 | 335.266 | 335.713 | 335.88 | 336.206 | 336.7 |
| 5 k Gy | | | | | | | |
| 1 | 330.959 | 339.635 | 336.866 | 336.373 | 336.033 | 335.873 | 335.421 |
| 2 | 331.002 | 339.679 | 335.439 | 335.92 | 336.081 | 336.414 | 336.908 |
| 3 | 330.928 | 339.603 | 335.364 | 335.837 | 336.005 | 336.338 | 336.832 |
| 4 | 330.706 | 339.382 | 335.171 | 335.621 | 335.782 | 336.114 | 336.607 |
| 5 | 330.852 | 339.528 | 335.316 | 335.778 | 335.926 | 336.273 | 336.766 |

図10-15 ハマグリ(貝殻)のESRスペクトルから求められた指定した各g値の磁場の値