# 「第22回日本臨床環境医学会学術集会特集」

# 総 説 シンポジウム

福島第一原発事故により放出された放射性核種(ストロンチウム、 プルトニウム)のヒト乳歯への蓄積に関する研究

- 1) 鶴見大学歯学部探索歯学講座
- 2) 国立保健医療科学院 生活環境研究部

# Studies on the accumulation of radionuclides (strontium, plutonium) emitted from the Fukushima No.1 nuclear power plant accident into human milk teeth

Kazuhiko Inoue<sup>1)</sup> Ichiro Yamaguchi<sup>2)</sup>

- 1) Department of Translational Research, Tsurumi University School of Dental Medicine
- 2) Department of Environmental Health, National Institute of Public Health

## 要約

福島第一原発事故により環境に放出された放射性核種のストロンチウム90(以下 $^{90}$ Sr)、プルトニウム238、プルトニウム239 + 240(以下 $^{239+240}$ Pu)はヒトに摂取された場合に、その一部が歯、骨に蓄積する。抜去あるいは脱落した歯を収集し、バイオアッセイによりそれらの核種の摂取量や摂取線量を推計することが考えられる。事故で放出された $^{90}$ Sr、 $^{238}$ Pu, $^{239+240}$ Pu は総量としては少ないと考えられるので、個人別での測定は実施せず、地域別、年齢群別に乳歯を収集し、乳歯中の $^{90}$ Sr 量、 $^{238}$ Pu 量、 $^{239+240}$ Pu 量を調査する。過去のデータと比較し、福島原発事故の影響を、乳歯の蓄積した放射能量から、人への放射性核種の移行の実態を明らかにしていくことを目的とし、研究を開始した。全国の歯科診療施設に乳歯収集を依頼し(約100施設、2000本配布)、30施設から乳歯を収集した(継続中、588本)。コントロールとして国立予防衛生研究所歯科衛生部で1970年 -1985年(推定)に収集された乳歯309本の試料の $^{90}$ Sr 量、 $^{238}$ Pu, $^{239+240}$ Pu 量を従来法と SrRaddisk 法( $^{90}$ Sr のみ)にて定量した結果、SrRaddisk 法では検出限界以下(200 mBq/g 灰)であったが、従来法では17mBq/g・Ca の $^{90}$ Sr が検出され、 $^{238}$ Pu, $^{239+240}$ Pu はいずれも検出限界 (0.004mBq/g 灰)以下であった。

《**キーワード**》福島第一原子力発電所事故、放射性核種(<sup>90</sup>Sr, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu)、バイオアッセイ、乳歯、 環境放射能汚染

別刷請求先: 井上一彦

〒230-5801 横浜市鶴見区鶴見2-1-3 鶴見大学歯学部探索歯学講座

Reprint Requests to Kazuhiko Inoue, Department of Translational Research, Tsurumi University School of Dental Medicine, 2-1-3 Tsurumi, Tsurumi-ku, Yoko-hama-shi, Kanagawa 230-5801, Japan

#### Abstract

Radionuclides such as strontium and plutonium, emitted into the environment by the Fukushima No.1 nuclear power plant accident, will be absorbed by humans and some of the radionuclides will accumulate in their teeth and bones. It is thought that the total amount of <sup>90</sup>Sr and <sup>239</sup>Pu emitted from the accident was minimal and thus we do not need to individualize measurements, instead we collected milk teeth by area and age group, and investigated <sup>90</sup>Sr, <sup>238</sup>Pu and <sup>239+240</sup>Pu levels in the teeth. The authors aimed to clarify the influence of the Fukushima nuclear power plant accident based on the amount of radioactivity accumulated in milk teeth, and examined actual radionuclide transition conditions to humans while comparing them with past data. Approximately 100 dental surgeries throughout Japan were asked to collect milk teeth, and the researchers also collected milk teeth from a further 30 dental offices. This process resulted in the collection of 2,588 milk teeth. The levels of <sup>90</sup>Sr, and <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup> and <sup>240</sup>Pu in a 309 milk tooth control sample from 1970 to 1985 (estimate) by the Department of Dental Research, National Institute of Health were assayed utilizing the official radioactive strontium and plutonium analysis method in environmental samples (Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology), and the SrRaddisk method. In this control sample <sup>90</sup>Sr (official method, 17mBq/g • Ca) was detected, but <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup> and <sup>240</sup>Pu was not detected.

(Jpn J Clin Ecol 22: 102 – 113, 2013)

**(Key words)** Fukushima No.1 nuclear power plant accident, Radionuclide (amount of <sup>90</sup>Sr, amount of <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu), Bioassay, Milk teeth, Environmental radioactive pollution

## I. はじめに

2011年3月、日本が初めて経験した最大級の福 島原発事故(レベル7)により放出された放射能 量は37万テラ (1012) ベクレル (原子力保安院算 出)または、63万テラベクレル(原子力安全委員 会算出、以下核種の抜粋、ヨウ素131;16万テラベ クレル、セシウム137;1万5000テラベクレル、ス トロンチウム90(以下<sup>90</sup>Sr); 140テラベクレル、プ ルトニウム239 (以下 $^{239}$ Pu); 0.0032テラベクレル) であった1,2)。この事故では、広島型原子爆弾数十 発分の放射性物質が放出されたと推定される<sup>1,2)</sup>。 気象庁気象研究所は2011年3月に茨城県つくば市 でセシウム137の降下量を測定し、地上核実験が 行われた頃の値よりも遙かに高く、過去最高1963 年6月の50倍以上の30,000Bq/m<sup>2</sup>であったと報告 した<sup>3)</sup>。これらのうちヨウ素は甲状腺に取り込ま れ、セシウムは筋肉に分布し、90Srは歯、骨にた まり<sup>4-7)</sup>、<sup>239</sup>Puは肺に沈着するとともに、骨に蓄 積する<sup>8)</sup>。<sup>90</sup>Sr などの放射性核種が歯に沈着する 機序は、CaとSrは同族であり、Caと置換するこ とにより<sup>90</sup>Sr が歯の主成分であるハイドロキシア パタイト: Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub> (OH)<sub>2</sub>に取り込まれると考 えられる<sup>9)</sup>。<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Pu は 肺に入るか、食物 や飲料水を通して、乳歯にとりこまれると考えら

れている<sup>10)</sup>。内部被曝による線量を推計するためのバイオアッセイのサンプリング材料として、骨採取は困難であるのに対して、歯は抜去され収集することが可能である。

我々は、核実験による大気の放射能降下物 (フォールアウト) や食物摂取に由来した内部被 曝による日本人への影響を調査するために1972年 から1995年まで日本全国の歯科診療所から歯を収 集し(1,022本)、<sup>90</sup>Srの抜去第三大臼歯への蓄積 について生年別に調査し、1953年生まれの人の第 三大臼歯が最大値を示すことを報告した4-7)(図 1)。これは、1953年生まれのグループでの第三 大臼歯の形成期(生後約10年後)の1963~1964年 に世界中で最も核実験が行われ、そのフォールア ウトが最も高かった時期に一致していると考えら れる所見であった(図1)。永井と石井はこれより 以前に地上核実験が行われている時期に全国より 乳歯を収集し、前述の第三大臼歯と同様に乳歯に おいても生年別に一致して放射能量が高いことを 示した(生年1963-1964;図1)<sup>10)</sup>。これらは歯の 形成期に一致して<sup>90</sup>Srが取り込まれていることを 示唆しているので、生年別に分類することは重要 である。他方、核実験の影響で日本人人骨からも <sup>239</sup>Pu が検出され<sup>11)</sup>、スイスで生まれた小児の乳歯

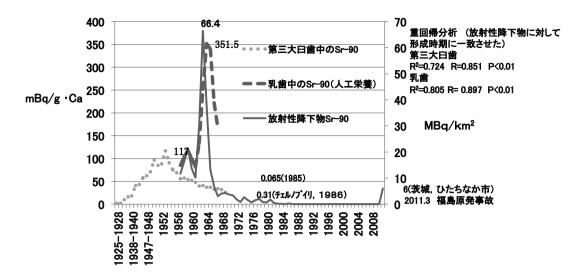


図1 日本における放射性降下物<sup>90</sup>Sr の年間降下量(1958-2011年)と日本人第三大臼歯中 (N=849)と乳歯 (N=114.725) の<sup>90</sup>Sr 量<sup>7)</sup>

西暦 放射性降下物(降下年:月別平均)第三大臼歯、乳歯はドナーの生年 Moriyo Hinoide, Makoto Yamamoto, Kazuhiko Inoue, Hideo Nakamura, Susumu Imai: RADIOACTIVI-TY SURVEY DATA in Japan <sup>6)</sup>, と環境放射能データーベース<sup>25)</sup>、放射能調査研究成果発表会抄録集<sup>10)</sup> よ り改変

への<sup>239</sup>Puの取り込みの報告が認められている が12)、近年、日本ではこれらの研究は行われてい ない。乳歯は永久歯に較べ短期間で多くの歯を収 集することが可能であるため、バイオアッセイと して、環境中の放出された放射性核種が人体に移 行しているかどうかをグループ別に検証すること に適している。これらの背景のもとに、乳歯中の <sup>90</sup>Sr、<sup>238</sup>Pu. <sup>239+240</sup>Pu の原発事故前後の推移を明ら かにすることで、福島第一原発事故によって環境 に放出された放射性核種の人体への移行を調べる ために研究プロジェクトを遂行中であり、本総説 では、そのプロジェクトの概要と現況を紹介した いと思う。日本全国より乳歯を集め、乳歯中での 放射性核種の濃度を地域別、生年別に調査する。 この研究をおこなうにあたり、今回の原発事故で は放射性核種の大気への放出量が総量としては少 ないと考えられるため1,2)、個々の乳歯あるいは個 人単位での比較検討ではなく、地域単位での比較 を行う。また、核実験の影響があると思われる時 期に収集されていた(1970~1985年頃)乳歯のグ ループ(生年詳細不詳、約308本)と比較すること

も予定されている。本プロジェクトによって、日本で初めての<sup>238</sup>Pu,<sup>239+240</sup>Pu の乳歯への蓄積の実情が明らかにされるとともに、福島原発事故の飛散の状況の地域的広がりや、過去の核実験頻発時期との比較によって、事故の規模や被曝の可能性のある地域住民への今後の対応について基盤となるデータが蓄積されるものと期待している。なお、本プロジェクトは鶴見大学歯学部倫理診査委員会及び東京歯科大学倫理委員会において承認されている。

## Ⅱ. プロジェクト概要

東日本大震災や福島原発事故により、周辺地域住民は震災や放射能に関して、予想以上に心身両面でのダメージを受けている<sup>12)</sup>。心のケアのために被災地域住民を中心に東北地方、関東地方においてボランティアにより「家族のリスクマネジメント勉強会」(http://k-rm.net/index.html)が実施されている。今回の研究は、非常に繊細な対応と方法が不可欠であると考慮されるために、東日本大震災や福島第一原子力発電所事故で支援活動を

丰1	研究グリ	<b>ار</b>
衣口	研究:ソハ	<b>ソー</b> ノ

研 究 班	分担テーマ	責任者氏名(所属・職)	構成員数
鶴見大学探索歯学講座	研究計画立案 歯の収集 リスクマネジメント	井上一彦 (鶴見大学探索歯学講座・非常勤講師) 花田信弘 (鶴見大学探索歯学講座・教授) 他	7名
国立保健医療科学院	研究計画立案 リスクマネジメント	山口一郎(国立保健医療科学院生活環境研究部・ 上席主任研究官)	1名
東京歯科大学社会歯科学 教室 小児歯科学講座	研究計画立案 歯の収集 リスクマネジメント	石井拓男教授 新谷誠康教授 今井裕樹助教	3名
家族のリスクマネジメン ト勉強会	研究計画立案 歯の収集 リスクマネジメント	半谷輝巳 (FSAC 福島ステークホルダー調整協議会 事務局長) 宮井崇宏 (医療法人崇尚会・理事長)	2名
高輪クリニック	研究計画立案 歯の収集 リスクマネジメント	陰山康成(医療法人癒合会 高輪クリニック理事 長・医師・歯科医師)他	4名
日本分析センター	放射性核種 分析測定	担当者(財団法人日本分析センター放射能分析 業務部 総括グループ)	1名

## 表2 乳歯収集予定地域 {福島県、関東、東北地方中心に20グループ (20試料)}

茨	城	県		神	奈 川	県	0	宮	城	県	0	京	都	府	$\bigcirc$
栃	木	県		千	葉	県		岩	手	県		静	岡	県	
群	馬	県		福会	島	県 津		Щ	形	県		Щ	梨	県	
埼	玉	県	00	福中	島通	県 り		青	森	県		長	野	県	
東	京	都	00	福浜	島通	県 り	00	北	海	道	0		年197 5乳菌		Δ

- △:1970-1985年日本全国から収集した乳歯(約309本)
- ○:収集することができる歯科診療施設がある都道府県および地域
- □:「家族のリスクマネジメント勉強会」を開催している都道府県

実施している関連グループとも連携し、研究を実施することとした(表1)。

## Ⅲ. 方法

1. 乳歯収集方法:本研究に賛同し、協力を得られる全国の歯科診療所(東北、関東地方を中心)や「家族のリスクマネジメント勉強会」を通じて乳歯を提供して頂ける協力者、および本研究の意義を理解し、賛同して頂ける方から歯を収集する。協力を得られる乳歯の提供者とおよび歯科診療所の院長に同意書を頂く。事前の具体的な乳歯

収集地域20地域を予定したが(表2)、現段階で乳 歯収集を許諾して頂いた歯科診療所と施設は、東 京都;30、埼玉県;3、神奈川県;5、茨城県; 2、千葉県5、北海道;1、秋田県;1、宮城県; 1、山形県;1、福島県;1、京都府;1、大阪 府;1、愛媛県;20、熊本県;3、鹿児島県;3、 沖縄県;1、合計18地域、74施設である(表3、 平成25年10月15日現在)。徐々に協力歯科診療所 および協力者を増やすための活動は継続してい く。1年間で乳歯400本、5年間で累計20地域、乳 歯2,000本が目標である。収集される乳歯は基本情

地域		東	京		;	神秀	計			千	葉			埼	玉		,	大	阪		Ą	受	媛			熊	本			鹿児	己島			沖	縄			
生年	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	AΒ	С	D	Е	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	AB	С	D	Е	計	生年
1986																								1													1	1986
1987																																					0	1987
1988																																					0	1988
1989				4									8	4	4																						20	1989
1990																																					0	1990
1991																																					0	1991
1992																										1		1									2	1992
1993																																					0	1993
1994	8	5	4	4												1																					22	1994
1995																																					0	1995
1996																																					0	1996
1997																																1					1	1997
1998								1																													1	1998
1999	8	7	6	9				1								1							1	4													37	1999
2000		2	2	11						1		1				4						2	4	12		1						1					41	2000
2001		2	3	6				1								5				2		5	8	21		1	1	1				3					59	2001
2002	1	6	8	6			1	1	1	1	3	4				4		1	1	2	2	7	12	22			1	3			1	1		3	1		93	2002
2003	1	3	4	5			1	1					9	4	1	5		1	1			12	15	13	1	1	3	1			2	1		2	2		89	2003
2004	2	1	1		1	1	1			2	5		1	4	2					1	5	16	12	8		2	2	3		2		1			1	1	75	2004
2005	4	1			1					1			13		2						7	6	5	1	4		1	1			3					1	51	2005
2006	6				6							1	9		1						28	7			3				4						1		66	2006
2007	2				2								2				1				12	2			1				2								24	2007
2008	4																												1								5	2008
2009																					1																1	2009
2010																																					0	2010
2011																																					0	2011
2012																																					0	2012
2013																																					0	2013
計	36	27	28	45	10	1	3	5	1	5	8	6	42	12	10	20	1	2	2	5	55	57	57	82	9	6	8	10	7	2	6	8	0	5	5	2	588	
地域是	別計			136				19				20				84				10			-	251				33				23				12	588	

#### 表3 全国における乳歯収集状況(平成25年10月15日現在、東日本259本、西日本329本、総計588本)

報として被験者の名前、住所、抜歯部位、年齢、 抜歯年月日、歯科診療施設名が記載され、これら は個人情報として暗号化され、個人が特定できな いような形で鶴見大学探索歯学講座で厳重に保管 されている。

## 2. <sup>90</sup>Sr、<sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu の分析方法

- 1) 試料の作成:地域別、生年別に乳歯60~80本収集後、乳歯の歯石や軟組織をマイクロモーターやスケーラー等を使って可及的に除去した後、乾燥させ8時間電気炉(TMF500,MORITA®)でアルミナるつぼに入れ、焼結させ灰化し、深型メノウ乳鉢(東京硝子器械)を使って粉末にして、53meshの篩を通過したものを試料としている(図3)。
- 2) <sup>90</sup>Sr の分析:検出下限値は 4 mBq/g・Ca から

算出して分析に必要量は10~20gである。計測は放射性ストロンチウム分析法(図2、文部科学省 科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室)<sup>13</sup> により行っている。

## (1) 化学分離

 $^{90}$ Sr 分析試料(プルトニウム分析の陰イオン交換樹脂カラムの通過液および洗浄液)をイオン交換法により分離・精製したストロンチウムからイットリウム90(以下 $^{90}$ Y)を除去(スカベンジング)し、2週間放置して新たに生成した $^{90}$ Yを水酸化鉄(III)沈殿に共沈させ(ミルキング)、測定試料とした。

## (2) 測定

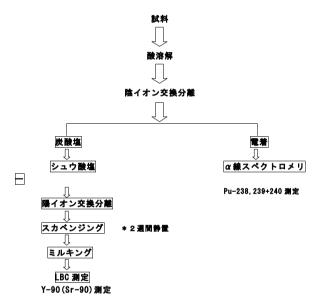
低バックグランドベータ線測定装置(日立アロカメディカル社製 LBC-471Q)を用いて、測定試

料を原則として3,600秒間測定し、<sup>90</sup>Sr 放射能強度 を算出した。

3)<sup>238,239+240</sup>Puの分析:検出下限値は0.02mBq/g·Ca から算出して分析必要試料量は10~20gであ る。計測は環境試料中プルトニウム迅速分析法 (図3、文部科学省 科学技術・学術政策局原 子力安全課防災環境対策室)<sup>14)</sup>により実施する。

#### (1) 化学分離

分析試料に<sup>242</sup>Pu 回収率補正用トレーサ及びストロンチウム担体を添加し、硝酸を加えて加熱抽出した。陰イオン交換樹脂カラムに通して通過液と洗浄液は<sup>90</sup>Sr 分析試料とし、樹脂カラムはプル



# 図2 プルトニウム、ストロンチウム90逐次 分析法

放射性ストロンチウム分析法<sup>13)</sup>、環境試料中プルトニウム迅速分析法<sup>14)</sup>

(文部科学省 科学技術・学術政策局原子力安全 課防災環境対策室) トニウム分析に用いた。樹脂カラムから分離・精製したプルトニウムをステンレス鋼板上に電着し、 測定試料とした。

#### (2) 測定

シリコン半導体検出器(ORTEC 社製)を用いて、測定試料を原則として80,000秒間以上測定し、<sup>238</sup>Pu 及び<sup>239+240</sup>Pu 放射能強度を算出した。

乳歯の放射能量から、これらの核種による被曝 線量を推定し、環境への放射能汚染の実態を明ら かにしていくべく、鋭意、乳歯を収集中である。

## Ⅳ. 現状

1. 乳歯収集状況:本研究に賛同が得られた全国 歯科診療所施設(北海道、東北5、関東5、関西 1、四国1、九州3、19都道府県)に資料(研究 計画説明書、同意書)と収集ビンの配布を実施し た (2,000本、平成24年12月~)。 被災地 (福島、茨 城、宮城)および周辺地域において、本研究に協 力が得られるように「家族のリスクマネジメント 勉強会|や講演会を開催し、被災地域や避難地域 の市町村の保健師にもお子さんを持つ保護者に乳 歯収集を依頼しているが、被災地および周辺地域 での収集状況は良くない。現在の乳歯収集数を都 道府県別に表3に示した。内訳は東京都:136、神 奈川県;19、千葉県;20、埼玉県;84、東日本計 259本、大阪府;10、愛媛県;250、熊本県;33、 鹿児島県;23、沖縄県;12、西日本計318本、総計 588本 (男児由来;335本、女児由来;224本) で あった(平成25年10月15日現在)。

2. コントロール試料の作製:1970年~1985年頃まで、国立予防衛生研究所 歯科衛生部で収集されていた乳歯の歯種 (A:乳中切歯、B:乳側切歯、



図3 乳歯 乾燥後(左) 灰化後(中) 粉末試料(右)

C:乳犬歯、D:第一乳臼歯、E:第二乳臼歯)別の乾燥重量と本数を表4に示す。

本数の推定:20年以上室温で乾燥状態で密封して保管しているが、乾燥による破折がみられる。原形をとどめていないものは視診で識別し(特にD,E)、歯種を判別した(図3)。本数の推定は形をとどめている歯種の総重量を測定し、一本あたりの重量を算出し、全体の本数を推定値として算出した(表4)。

実験プロトコルに従い、歯種別、削片別に灰化 した(図3)、灰化後重量を表4に示す。

試料の秤量: AB 群、C 群、D 群、E 群、歯種不明歯牙削片群から2gずつ合計10g(約50本)を簡便で早期に測定結果がわかる SrRaddisk 法<sup>15)</sup>の <sup>90</sup>Sr 測定用試料とした。そして、さらに各4gずつ合計20gを従来法であるプルトニウム、ストロンチウム逐次分析法(図2)の試料とした。

## 3. コントロールサンプルの結果

灰化乳歯試料20グラムから放射性ストロンチウムが $17\pm1.8$ mBq/g・Ca(基準日2013年10月21日、不確かさは計数誤差のみを示す)が検出されたが、プルトニウムに関しては検出限界以下であった(表 5)。SrRaddisk 法 $^{15}$  を用いた $^{90}$ Sr の測定は検出限界以下(200mBq/g 灰)であった。

# Ⅴ. 考察

## 1. コントロールサンプルの結果について(表5)

コントロールサンプルは1970-1985年頃まで国立予防衛生研究所 歯科衛生部で収集され、乾燥状態の室内に室温保存されていた乳歯(約309本、表4)の灰化試料20グラムであり、実際の収集年月日は不詳であるため推定で基準日を設定し、定量値:17 mBq/g・Ca を求めた。<sup>90</sup>Sr の半減期は28.79年(JCAC)使用値であり指数関数的に減衰

	AB	С	D	Е	ABCDE 平均重量	歯種不明 歯牙削片	総合計本数 および重量
本数	96	61	16	10		29	
重量 (g)	14.7	13.3	5.75	6.68		10.2	
一本当り重量 (g)	0.153	0.218	0.359	0.668	0.350	0.399	
削片重量 (g)			10.35	14.15			
推定本数	96	61	29	21		26	308
総重量 (g)	14.7	13.3	16.1	20.83		10.2	75.13
灰化後重量 (g)	10.85	9.98	12.48	16.78		7.93	58.02

表4 1970~1985年までに予研で収集された歯種別乳歯数および重量

表5 1970年-1985年まで収集された乳歯の分析結果

	基準日	測定日	90Sr	単 位
	1983年1月1日		$35 \pm 3.7$	
	1993年1月1日	2013年12月11日	$28 \pm 2.9$	mBq/g · Ca
乳歯	2013年10月21日		$17 \pm 1.8$	
40120	測定日	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	
	2013年12月2日	*	*	mBq/g 灰
	2015年12月 2 日	(0.004)	(0.004)	

\*:検出限界以下 ( ):検出下限値

不確かさは計数誤差のみを示す基準日からの測定値: $A_0 = A/(1/2)^{tT}$  より算出 A: 時間 t における放射能  $A_0$ : 最初の時間における放射能 t: 経過時間

T: 半減期 {29.12年 (JCAC): 日数換算} 26)

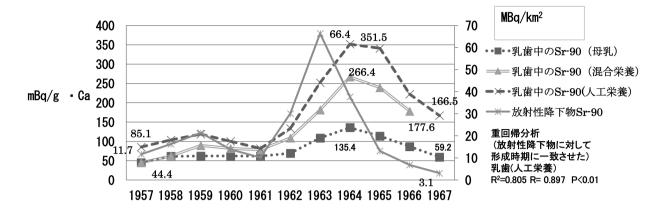


図4 日本における放射性降下物<sup>90</sup>Sr 量と日本人乳歯の<sup>90</sup>Sr 量 (1957-1967年)

西暦 放射性降下物 (降下年:月別平均)乳歯:生年 第19回放射能調査研究抄録集(文部科学省)<sup>10)</sup>環境放射能データーベース<sup>25)</sup>から改編

される<sup>26)</sup>。公式の最後の乳歯中の<sup>90</sup>Sr 定量値は 59.2mBq/gCa (生年1967年、図4) であったこと から、生年が1970年頃のものであることが示唆される (表5)。このコントロールデータは福島原発 事故以降の収集された乳歯のデータを分析比較する上で非常に貴重なものである。SrRaddisk 法<sup>15)</sup> は乳歯中<sup>90</sup>Sr の測定では用いることができないことが確認された。

# 2. 個人レベルでなく地域レベルでの放射性核種 の比較

対象とする放射性核種の大気への放出量が、福 島第一原発事故ではチェルノブイリ事故に比較す ると総量としては少ないことが示唆されてい  $る^{1,2)}$ 。フォールアウト中の $^{90}$ Sr は事故前で最大0.3mBq/m<sup>2</sup>/month であったものが、茨城県でも最大 値 6 Bq/m<sup>2</sup>/month (2011年3月) となり 4 桁桁数 の上昇にとどまっている<sup>3)</sup>。ただし、海洋への流 失が、食物連鎖により人への移行に寄与すること が考えられる。生物濃縮におけるヒト生体内にこ れらの核種が蓄積する可能性は、大型魚の骨を食 する文化を有する地域では否定できない。一方、 原発事故後の放射性核種の降下量については、関 東、東北地方で降下量にも差があったことも示さ れている。青山らは、事故後に大気中で検出され た放射性核種は、事故現場での放出物の違いを反 映して関東、東北地方における放射性降下量の違

いを生み出した可能性を指摘し、様々な放射性核種が放出され地域によって差がみられることを報告した<sup>3)</sup>。検出限界値は、今回のコントロールの結果からおよそ2 mBq/g・Ca であったことが確認された。個々の乳歯や数本単位では、検出可能な量が蓄積しているとは考えられないので、測定は、地域単位で収集した乳歯を混合させて実施することとした。測定のための1試料必要量は約20gである。一試料を作製するために乳歯(平均0.36g)で約60~80本必要となる<sup>10)</sup>。また、測定方法は現状で非常に煩雑でかつ時間を要する(約2~3ヶ月)こともあり、収集とともに、測定方法の改善や新測定方法、測定装置の開発や歯種選別に関しても、本プロジェクトの中で検討を進めている。

3. 胎生期(乳歯形成期)での取り込み:石井らは、最大値の放射能降下物(フォールアウト、1963年)に一致して、その時期に形成されていた乳歯(石灰化開始;胎生  $4 \sim 6$  月、歯冠完成;生後1.5~11月)には放射能量が高いことを示した(生年1964年、図1、4) $^{10}$ 。 $^{90}$ Sr が胎盤を移行することも踏まえて、生体は胎生期から取り込みを始めると想定されるので、生年が2012年の乳歯の取り込みが、最大であると予想される。プルトニウムも $^{90}$ Sr 同様に、胎生期からの取り込みがあることが報告されている $^{80}$ 。これらより、事故が起

きた時(2011年)に乳歯の形成時期に一致した乳幼児、すなわち生年が2011年以降の乳歯には、事故によって放出された放射性核種の環境への影響が多大であった地域(原発近隣地域や東北、関東)では、90Srや<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Puが多く取り込まれることが予想される。特に乳歯は<sup>90</sup>Srに感受性が高い(第三大臼歯の3倍;図1、人工栄養;1.3~2.59倍の<sup>90</sup>Sr量、図4)ため、飲食物を介してこれらの核種が多く取り込まれる可能性が高いと考えられる。今回の1970-1985年まで収集された乳歯の<sup>90</sup>Srの結果(核実験由来)と福島原発事故以後に収集された乳歯(地域別生年別)の定量値の差を比較することにより、人体への放射性物質の取り込みの実態を検証する。

# 乳歯中の<sup>238</sup>Pu,<sup>239+240</sup>Pu 量の比による原発事 故由来の判定

原発事故周辺地域土壌中から $^{238}$ Pu, $^{239+240}$ Pu が検出されている。原発事故では、 $^{238}$ Pu が特異的に検出され、その比が0.053を超えると福島原発由来のものであると断定される $^{16)}$ 。今回、コントロールサンプルからは $^{238}$ Pu、 $^{239+240}$ Pu は検出されなかったことは試料量が少ないか1970-1985年に収集さ

れた乳歯の<sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu の汚染が日本では少ないことが示唆されるが、今後サンプル量を増やしたり、検出方法を改善する予定である。

## 5. チェルノブイリとの比較

チェルノブイリ事故の後、南ウクライナにおいて1,000本の歯牙が収集され年齢性別別に18群の<sup>90</sup>Sr 量の比較検討が行われ、各群は地上核実験が行われた時期のデータよりも少ないが、原発事故処理に従事したと思われる25~45歳の男性のグループに<sup>90</sup>Sr の歯牙への蓄積が多く認められたとの報告がある<sup>17)</sup>。乳歯の検討である本プロジェクトとは若干異なるが、結果が得られた後には、詳細な検討を予定している。

#### 6. 骨内への影響予測

Reiss は死産児(43体)の全骨格と乳歯の $^{90}$ Sr 量の分析を行い、骨と乳歯に蓄積する割合はおおむね同じであることを、示している $^{18)}$ 。つまり、同一環境で発育する骨や歯の硬組織に含まれる $^{90}$ Sr 量はほぼ同じであること示唆している。但し、経年的に骨の $^{90}$ Sr は環境中に $^{90}$ Sr 量が少なくなれば、代謝され減少するのに対して、代謝のない歯では減少率が少なく、 $^{90}$ Sr は残存していた(表5)。こ

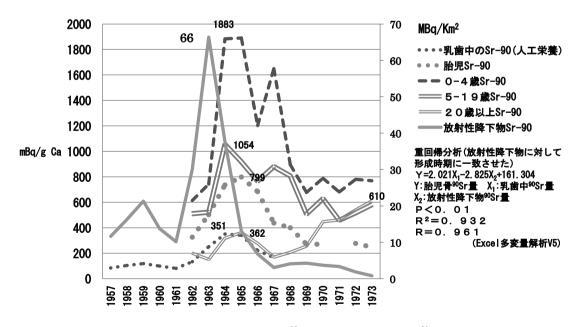


図5 乳歯と骨に蓄積された<sup>90</sup>Sr 量と放射性降下物<sup>90</sup>Sr 量

西暦 乳歯: 生年 骨:採取時(死亡) 放射能調査研究抄録集<sup>10)</sup>(文部科学省)環境放射能データーベース<sup>25)</sup> から改編 のことは抜歯される乳歯を用いて、 ${}^{90}$ Sr 量を測定することにより、骨への蓄積量を推定できることが示唆されている (図 5) ${}^{7,10,18}$ 。さらに、核実験由来の Pu は日本人骨から検出されている  ${}^{11}$  ので、乳歯や歯との関連性を調査する。

#### 7. 乳幼児の放射能汚染について

尿や母乳中に放射性ヨウ素や放射性セシウムが 検出されている $^{19-22)}$ ことから、代謝されない乳歯 の形成期(胎生1.5ヶ月~生後3ヶ月)に $^{90}$ Sr や $^{238}$ Pu や $^{239+240}$ Pu が蓄積される可能性が示唆され る。また、その汚染は被災地にとどまらず、東北、 関東地域に及んでいることが示されている $^{19-22)}$ 。

#### 8. 水道水関連の<sup>90</sup>Sr

福島県は水道原水、上水、地下水にふくまれる  $^{90}$ Sr のモニタリング調査の結果を公表し(県内29 地点)、22点で $2.1\sim2.8$ mBq/ $\ell$  検出され、核実験由来の可能性が高いとしているが、断定するものではないとしている。 $^{23)}$ 

## VI. まとめ

20-30年前の乳歯から<sup>90</sup>Sr が検出 (核実験由来) されたことは、バイオアッセイとして非常に重要 であることが再確認され、原発事故以降の人体への汚染の指標になることが考えられる。プルトニウムは検出限界以下であったが、日本人骨から <sup>239+240</sup>Pu が検出され<sup>11)</sup> スイスの報告では微量に検出されていること<sup>8)</sup> から検出方法改良や歯種選別も視野に入れ、研究課題とする。

1年で約600本の乳歯が収集できたが、都道府 県別や生年別では1試料として定量可能なレベル はわずかである(愛媛県;5群、表3)。被災地で はこの研究の意義を理解して頂くために勉強会を 実施し、乳歯収集を依頼しているが、事故の影響 が最大限存在すると見られる福島からは乳歯はほ とんど収集されていない。事故後2年半が経過 し、実態を多角的に把握する試みの一つとしての 本研究の意義の理解を求めるのが課題となってい る。

福島第一原発では未だに汚染水や廃炉に向かっての諸問題を抱え、周辺地域でも継続して空間線量が高く、土壌や河川も汚染されているので<sup>16)</sup>、放

出された放射性核種の環境への影響や人体への放 射能汚染を継続して長期にわたり調査していくこ と (考察参照) は、世界に対する日本の責務と考 える。母乳や乳幼児での調査結果が報告さ れ19-22)、線量が一定程度にとどまることが確認さ れつつある。今回、コントロール乳歯に取り込ま れた放射性物質は代謝がないために長期保存後も 残存することが再確認された。今回の研究方法は 地域別、生年別の比較であるが、将来的には個人 別の乳歯をすべて集め、個人レベルの放射性核種 の蓄積量算出を試みることも有意義な検討になる うと思われる。一方、今回の結果から乳歯に蓄積 した<sup>90</sup>Sr やプルトニウムは微量であり、内部被曝 線量は小さいと考えられるが、放射線防護では、 直線閾値なしモデルが用いられており(ICRP)<sup>24)</sup>、 バイオアッセイとしての乳歯中の放射性核種の測 定は、過去の曝露の推計が可能であることから、 より小さいリスクを取り扱う場合の実態の把握に 役立てることができると考えられる。今回の結果 は乳歯灰化試料20グラム(約60-80本)の必要量 が確認された。このデータを踏襲し、研究方法を 再確認することが基本になるが、理論上第三大臼 歯では4本で検出可能である報告がされている し、今回の結果より10グラム(30-40本)でも<sup>90</sup>Sr は検出される可能性は高いので、可及的に少量で 測定する方法を見いだしていく予定である。プル トニウムに関してはさらに微量であるので試料を 増量したり、測定法の改良や歯種選定を考慮に入 れる必要があることが示唆される。現在、収集さ れている乳歯は、原発事故以後収集されたもので あるが、2011年時点で乳歯の形成期に合致してい るものではない。本稿で紹介してきたように、自 然にあるいは歯科診療の中で抜去される乳歯(生 年;2011年以降)は<sup>90</sup>Srや<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Puの原発事 故以後の体内摂取量推定に役立つと考えられる (図1、5)。それゆえ、乳歯収集本数を増やし、 被災地やその周辺地域での実態を把握することを 目指したい。特に福島の方々および関東、東北、 全国の方々(特に歯科医療関係者)にご協力をお 願いし、稿を閉じる。

#### 斜辞

この研究を実施するにあたり、ご指導ご鞭撻を頂いた 元国立予防衛生研究所歯科衛生部室長 樋出守世先生に 心より感謝を申し上げます。又、乳歯協力にご尽力頂い た松木健二先生、弘中美貴子先生をはじめ全国の歯科診 療所施設の先生方の多大なる御貢献に感謝を申し上げま す。この研究は平成24年度日本歯科医学会総合的研究推 進費で実施されている。

#### 文献

- 1) 原子力安全・保安院.「東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機. 2号機及び3号機の炉心の状態に関する評価について」
  - http://www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008.html(2014.1.15). 放射性物質放出量データの一部誤りについて
  - http://www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/ 20111020001.pdf (2014.1.15)
- 2) 原子力安全委員会. 福島第一原子力発電所から大気 中への放射性核種(ヨウ素131、セシウム137) の放 出総量の推定的試算値について
  - http://www.nsc.go.jp/info/20110412.pdf (2014.1.15)
- 3) 青山道夫、五十嵐康人. 福島第一原子力発電所事故 に伴う大気・海洋の人工放射能の変動. 気象研究所. http://www.mri-jma.go.jp/Topics/Happyoukai2011/ 2011Happyou05.pdf (2014.1.15)
- 4) 樋出守世、中村秀男、他. 日本人第三大臼歯に蓄積 された放射性核種および微量元素に関する研究 I. 口腔衛生 40:243-250、1989
- 5) 樋出守世、井上一彦、他. 日本人第三大臼歯に蓄積 された放射性核種および微量元素に関する研究. 口 腔衛生 41:206-213、1991
- 6) Hinoide M, Yamamoto M, et al. Annual changes in the level of <sup>90</sup>Sr in Japanese third molar. Radioactivity Survey in Japan 99: 42-49, 1992

  (http://www.kankyo-hoshano.go.in/07/rsd\_lib/1992
  - (http://www.kankyo-hoshano.go.jp/07/rsd\_lib/1992\_no\_99.pdf) (2014.1.15.)
- 7) 井上一彦、村田貴俊、他. 日本における放射性降下 物ストロンチウ90(1958-2011年)と日本人第三大臼 歯と乳歯へのストロンチウム90の蓄積量の比較と相 関性について. 口腔衛生 63:159、2013
- 8) Froidevaux P, Haldimann M. Plutonium from aboveground nuclear tests in milk teeth: Investigation of placental transfer in children born between 1951 and 1995 in Switzerland. Environ Health Perspec 116: 1731–1734, 2008
- 9) 須賀昭一. エナメル質形成の観点から見たエナメル

- 質表層の構造と組成. In. 須賀昭一、石井俊文(編). 齲蝕感受性 エナメル質表層の構造と組成. 口腔保健協会、東京. 1976
- 10) 永井充、石井俊文. 乳歯中の<sup>90</sup>Sr について. *In*. 第19 回環境放射能調査研究成果論文抄録集. 科学技術庁、 東京. 1977、p155.
- 11) 湯川雅枝、前田智子、他. 人体臓器中の<sup>239+240</sup>Pu 濃度.In. 第28回環境放射能調査研究成果論文抄録集. 科学技術庁、東京. 1986. pp139-141.
- 12) 山口一郎. 原子力災害後の現存被曝状況でのリスク・コミュニケーション. 医学のあゆみ 239:1050-1055、2011
- 13) 放射性ストロンチウム分析法. 文部科学省、平成15 年改訂
  - www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No2.pdf (2014.1.15))
- 14) 環境試料中プルトニウム迅速分析法. 文部科学省、 平成14年
  - http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No28-1. pdf (2014.1.15)
- 15) 亀尾裕、島田亜佐子、他. 研究施設等廃棄物に含まれる放射性核種の簡易・迅速分析法(分析指針). In. JAEA-Technology 2009-051. 独立行政法人日本原子力研究開発機構、東海村、茨木. 2009
- 16)(独)日本原子力研究開発機構 福島技術本部.「福島 第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の第二次分布 状況等に関する調査研究」の告書の概略版について. http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/pdf05/ summary.pdf (2014.1.15.)
- 17) Kulev YD, Polikarpov GG, et al. Strontium-90 concentrations in human teeth in south Ukraine, 5 years after the Chernobyl accident. Sci Total Environ 155: 215–219, 1994
- 18) Reiss LZ. Strontium-90 absorption by deciduous teeth. Science 134: 1669–1673, 1961
- 19) bonyuutyousa.net/blog/wp-content/uploads/2012/07/20110927 母乳放射能検査結果(居住県別)5.pdf(2014.1.15)母乳調査・母子支援ネットワーク WEB (http://bonyuutyousa.net/)内
- 20) bonyuutyousa.net/blog/wp-content/uploads/2012/07/20120720 乳幼児の尿の放射能検査 3.pdf (2014.1.15) 母乳調査・母子支援ネットワーク WEB (http://bonyuutyousa.net/) 内
- 21) bonyuutyousa.net/blog/wp-content/uploads/2012/07/20120720 母乳&乳幼児の尿県別集計表 2.pdf (2014.1. 15) 母乳調査・母子支援ネットワーク WEB (http://bonyuutyousa.net/) 内
- 22) Unno N, Minakami H, et al. Effect of the Fukushima

- nuclear power plant accident on radioiodine  $(^{131}I)$  content in human breast milk. J Obstet Gynaecol Res 38: 772-779, 2012
- 23) http://www.minpo.jp/pub/topics/jishin2011/2013/03/post\_6783.html (2014.1.15) 福島民報 (2013.3.30. 記事)
- 24) International Commission on Radiological Protection. The 2007 Recommendations of the International Commission
- on Radiological Protection  $\,$  (ICRP Publication 103). Ann. ICRP 37, 2007
- 25) 環境放射能データーベース http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/search.top? pageSID=23321471 (2014.1.15)
- 26) 日本アイソトープ協会、『アイソトープ手帳』、p.31. (1)