

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月24日現在

機関番号：32710

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K11435

研究課題名(和文)福島原発事故により放出された放射性核種の人乳歯への蓄積に関する研究

研究課題名(英文) Study on the accumulation of human milk teeth released radioactive nuclides by the Fukushima nuclear power plant accident

研究代表者

井上 一彦 (INOUE, KAZUHIKO)

鶴見大学・歯学部・非常勤講師

研究者番号：30649570

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原発事故で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、日本全国の乳歯の放射性核種(90Sr, 238Pu, 239+240Pu)の蓄積について(約2000本)、埼玉県、東京都、愛媛県(新居浜市、八幡浜市)、関東地方(千葉、埼玉、東京、神奈川)、東北地方(宮城、山形、秋田、福島)、大阪府、愛知県、熊本県、南九州地方(沖縄、鹿児島)の乳歯群15試料について測定調査した。238Pu, 239+240Puは検出限界未満であったが、東京都、関東地方、熊本県で4.9～7.6mBq/g Caの90Srが検出された(2011年3月11日時点)。これは、原発事故でなく核実験の影響と示唆される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

日本において福島原発事故の放射能汚染の人体の影響を乳歯を用いて調査した結果、乳歯中のPuは検出されず、90Sr(生年：2002-2004)は、東京都、関東地方群、熊本県の試料群で4.9～7.6mBq/g Ca検出された(2011年3月11日時点)。90Srは東北地方(被災地域)で検出されず、東京都、関東、熊本県で認められたが、試料群の大きさやバイアスが反映されたものである。これらは、乳歯形成時期や90Srの土壌分布から鑑みて、事故以前に蓄積されたものであり、現時点では事故後の人体への影響はないことが明らかにされつつある。生年別、地域別に継続して調査していることは今後の汚染の指標となり得る。

研究成果の概要(英文)：We collected milk teeth from all over Japan, and investigated the transfer to the human body of radionuclides (90Sr, 238Pu, 239 + 240Pu) released to the environment at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident (approximately 2,000). We measured and investigated 15 samples of primary teeth group {Saitama, Tokyo, Ehime (Niihama-shi, Yawatahama-shi), Kanto Region (Chiba, Saitama, Tokyo, Kanagawa), Tohoku Region (Miyagi, Yamagata, Akita, Fukushima), Osaka, Aichi, Kumamoto, South Kyushu region (Okinawa, Kagoshima)}. Although 238 Pu, 239 + 240 Pu were not detected, Strontium-90 was not detected in the Tohoku region (disaster area), but Sr-90 of 4.9 ~ 7.6 mBq/gCa were detected in Tokyo, Kanto region and Kumamoto Prefecture. It was shown that this was not a nuclear accident but the effect of nuclear tests.

研究分野：口腔衛生学、環境放射線学

 キーワード：福島第一原発事故 放射性核種 ストロンチウム90 プルトニウム238 プルトニウム239+240 乳歯  
核実験由来 チェルノブイリ原発事故

## 様式 C - 19, F - 19 - 1, Z - 19, CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1)2011年3月,日本が初めて経験した国際原子力事象評価尺度で最も深刻な事故(レベル7)とされた東電福島第一原発事故により多量の放射性物質が放出された.気象庁気象研究所が茨城県つくば市で観測した $^{137}\text{Cs}$ の2011年3月における降下量は,大気圏内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 $23 \pm 0.9 \text{ kBq/m}^2$ であり, $^{90}\text{Sr}$ 量は $4.1 \pm 0.1 \text{ Bq/m}^2$ で事故前の2-3桁であったと報告した(図1)<sup>1)</sup>.大気中に放出された放射能量はXe-133が11 EBq( $10^{18}$ )(原子力保安院算出),ヨウ素131;0.16 EBq,セシウム137;15 PBq( $10^{15}$ ), $^{90}\text{Sr}$ ;140 TBq( $10^{12}$ ), $^{239}\text{Pu}$ ;3.2GBq( $10^9$ )であると推定されている<sup>2,3)</sup>.これらのうちヨウ素は甲状腺に取り込まれ,セシウムは筋肉などに分布し, $^{90}\text{Sr}$ は歯,骨にたまり, $^{239}\text{Pu}$ は吸入されると肺に沈着するとともに,骨に蓄積する.

(2) $^{90}\text{Sr}$ 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 $^{90}\text{Sr}$ が歯の主成分であるハイドロキシアパタイト: $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ に取り込まれると考えられる. $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ は吸入され肺に入るか,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.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.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,原発事故前後の環境に放出された放射性核種( $^{90}\text{Sr}$ , $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ )の人体への移行を調べている.

### 2. 研究の目的

東京電力福島第一原発事故で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,日本全国より乳歯を集め,乳歯中での放射性核種( $^{90}\text{Sr}$ , $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ )の蓄積を調査している<sup>4)</sup>(表1,生年1999~2009年,2048本,2019年3月31日現在).今回は多量に蓄積残存している $^{90}\text{Sr}$ 等の影響(図2)を鑑みながら,核実験時の日本と欧州での報告と原発事故の影響を比較検討することを目的とする.

### 3. 研究の方法

原発事故後より,乳歯を生年別,地域別に収集継続中である(表1).本研究では,埼玉県(2003年生年,35本),東京都(2003年生年,57本),愛媛県新居浜市(2003年生年,45本),愛媛県八幡浜市(2003年生年,29本),埼玉県(2004年生年,34本),東京都(2004年生年,54本),愛媛県新居浜市(2004年生年,48本),愛媛県八幡浜市(2004年生年,18本),関東地方{(千葉,埼玉,東京,神奈川),生年;2002-2004年,113本},東北地方{(宮城,山形,秋田,福島),生年;2002-2004年,40本},大阪府(生年;2002-2004年,48本),愛知県(生年;2002-2004年,31本),熊本県(生年;2002-2004年,83本),南九州地方{(沖縄,鹿児島)生年;2002-2004年,42本},東京都(生年;2002年,80本)の乳歯15試料と,コントロールとして成人第三大臼歯(1980年生年,埼玉13本)の1試料と合計16試料について測定調査した(乳歯;757本,成人第三大臼歯;13本,総合計;770本). $^{90}\text{Sr}$ , $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ 計測は文部科学省放射能測定法シリーズにより実施した<sup>5,6)</sup>.これらと核実験時の日本とスイスのデータを比較検討した<sup>7,8)</sup>.

### 4. 研究成果

(1) $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ :日本の乳歯試料では:~の試料において $0.4 \mu\text{Bq/g} \cdot \text{Ca}$ 以下の検出限界未満であった(表2).国立予防衛生研究所で収集した生年不詳(1970~1985年頃)の乳歯からも検出限界未満であったことは前回日本で初めて報告しているが<sup>4)</sup>,今回,生年,地域が既知である日本人ヒト乳歯には $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ が蓄積されていないことが改めて確認された.スイスの報告では,生年が1987年以降では $0.4 \mu\text{Bq/g} \cdot \text{Ca}$ 以下の検出限界未満であり,今回の日本のデータと一致していた.しかし,1950~1986年の生年の試料では1953~1954年の $0.0498 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ をピークに $0.5 \sim 7.7 \mu\text{Bq/g} \cdot \text{Ca}$ の $^{239}\text{Pu}$ が検出されている<sup>6)</sup>.また,チェルノブイリ原発事故の影響が1986年頃に生まれた人の乳歯から, $^{239}\text{Pu}$ が認められている<sup>6)</sup>.日本においては.日本人骨からは $^{239}\text{Pu}$ が検出されていることから<sup>9)</sup>,1964年頃に形成期を迎えた乳歯はプルトニウム汚染が見られた可能性は否定できないが,欧州よりも日本は汚染が低いことが示唆された(表2).今後,検出感度や測定技術が向上することで,核実験時形成期であった乳歯,永久歯を精査すれば $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ の蓄積が認められる可能性もある.

(2) $^{90}\text{Sr}$ :東京都(生年2004年); $7.6 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ , 関東地方群(生年;2002-2004年); $6.9 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ , 熊本県(生年;2002-2004年); $5.7 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ , 東京都(生年;2002年); $4.9 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ の $^{90}\text{Sr}$ が検出された(表2).これらのデータから, $^{90}\text{Sr}$ は被災地である東北地方(宮城,山形,秋田,福島)では検出されず,東京都,関東地方,熊本県でやや高い傾向が認められたが,試料群の大きさやバイアスがかかった結果が反映されたもので,地域性を表現しているものではないことが考察される.さらにコントロールとして埼玉県成人第三大臼歯(生年1980年) $11 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ の $^{90}\text{Sr}$ が検出された(表2).また,乳歯(生年1970~1985年,生年不詳,地域不明)の試料より $^{90}\text{Sr}$ が $17 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ (基準日;2013年5月21日)検出されている(図2)<sup>4)</sup>.土壌中に $^{90}\text{Sr}$ が核実験の影響で蓄積されていることから(図2),乳歯形成時期や $^{90}\text{Sr}$ の土壌分布や食事のデー

夕から鑑みて、検出された  $^{90}\text{Sr}$  は東電福島第一原発事故由来でなく、核実験や核施設の事故等により環境放出されたものが、食生活等を通じて蓄積したと推察される。

スイスのデータでは生年 1994 年乳歯から  $30 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  の  $^{90}\text{Sr}$  が検出されていて<sup>5,6)</sup>、日本における推測値としての生年 1993 年の  $28 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  の値とよく一致している(図 2)<sup>4)</sup>。Fall out が非常に高かった時期(1953 ~ 1967 年)のデータでは日本:  $351 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ <sup>10)</sup>、スイス:  $421 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ <sup>6)</sup>で(図 2)、スイスのデータがやや高いことが示唆された。成人第三大臼歯の  $^{90}\text{Sr}$  の蓄積の比較では生年 1955 年の最大値  $117 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$ <sup>11)</sup>から  $11 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  (生年 1980 年)へ減衰していた(図 3)。今回の結果は、物理的半減期よりも早く減衰しており環境中の挙動も反映していることが示唆された。

欧州のデータ等と比較しつつ、生年別、地域別に継続して調査していることは、基礎データとして今後の汚染の指標となり得る。 $^{90}\text{Sr}$  のヒト乳歯への蓄積は、欧州の方が若干高いことが認められた。経口も含む内部被ばくの評価では、行動調査が重要であるが、当時の複雑な事情もあり福島県民健康調査でも比較的線量が高い人々からの回収が低くその知見はいまだに十分には得られていない。このため、事故の影響を正確に見積もるにはこのようなバイオアッセイも有益だと考えられ、乳歯への蓄積の機序からも事故後に出生した児童を対象にした注意深い調査の継続が望まれる。

(3)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  $^{90}\text{Sr}$  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  $^{90}\text{Sr}$  の歯牙への蓄積が多く認められたとの報告がある<sup>12)</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。

(4)今後の研究計画: 乳歯の形成は胎生期から出生時にかけて行われるので東京電力福島第一原発事故による影響は生年が 2011 年の乳歯を収集後検証予定である。生年別、地域別に 20 g 以上の試料を揃え、被災地での収集を強化し、共同研究を推進していく。

#### (5)結論

日本において福島原発事故前後の放射能汚染の人体の影響を、乳歯を用いて調査した結果、乳歯中の Pu は検出されず、 $^{90}\text{Sr}$  (生年; 2002-2004)は、東京都、関東地方群、熊本県の試料群で  $4.9 \sim 7.6 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  検出された(表 2)。以前の値と比較し減衰していることが示唆された。 $^{90}\text{Sr}$  は被災地域で検出されず、東京都と熊本県で認められたが、試料群の大きさやバイアスがかかった結果が反映されたものである。これらは、乳歯形成時期や  $^{90}\text{Sr}$  の土壌分布から鑑みて、事故以前に蓄積されたものであり、現時点では事故後の人体への影響はないことが明らかにされつつある。生年別、地域別に継続して調査していることは今後の汚染の指標となり得る。

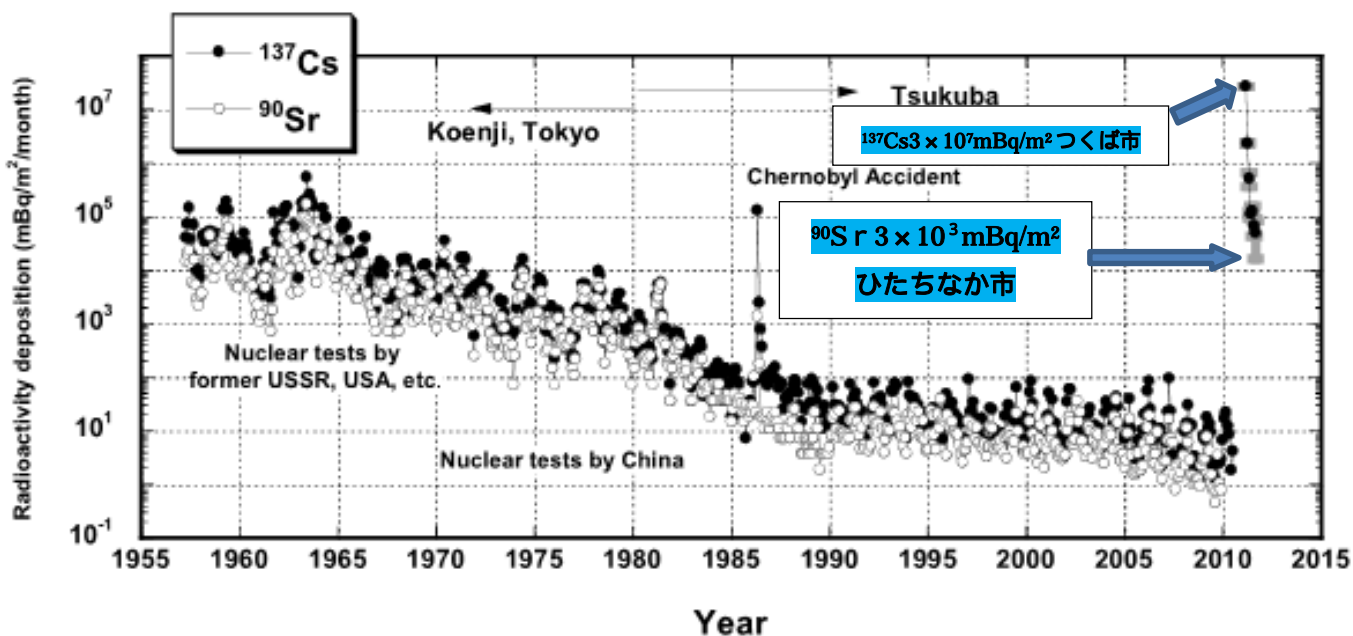


図 1 福島原発事故以前と以後での人工放射性核種の月間降下量の変動<sup>1)</sup>

2011 年 3 月以降の  $^{137}\text{Cs}$  月間降下量は暫定値

表1 日本全国からの乳歯の収集状況

(単位本数, 2019年3月31日現在)

秋田	20	愛知	140
宮城	10	大阪	70
山形	50	広島	10
福島	3	愛媛	422
東京	620	福岡	10
埼玉	400	熊本	106
神奈川	30	鹿児島	70
千葉	43	沖縄	12
静岡	32	総合計	2048

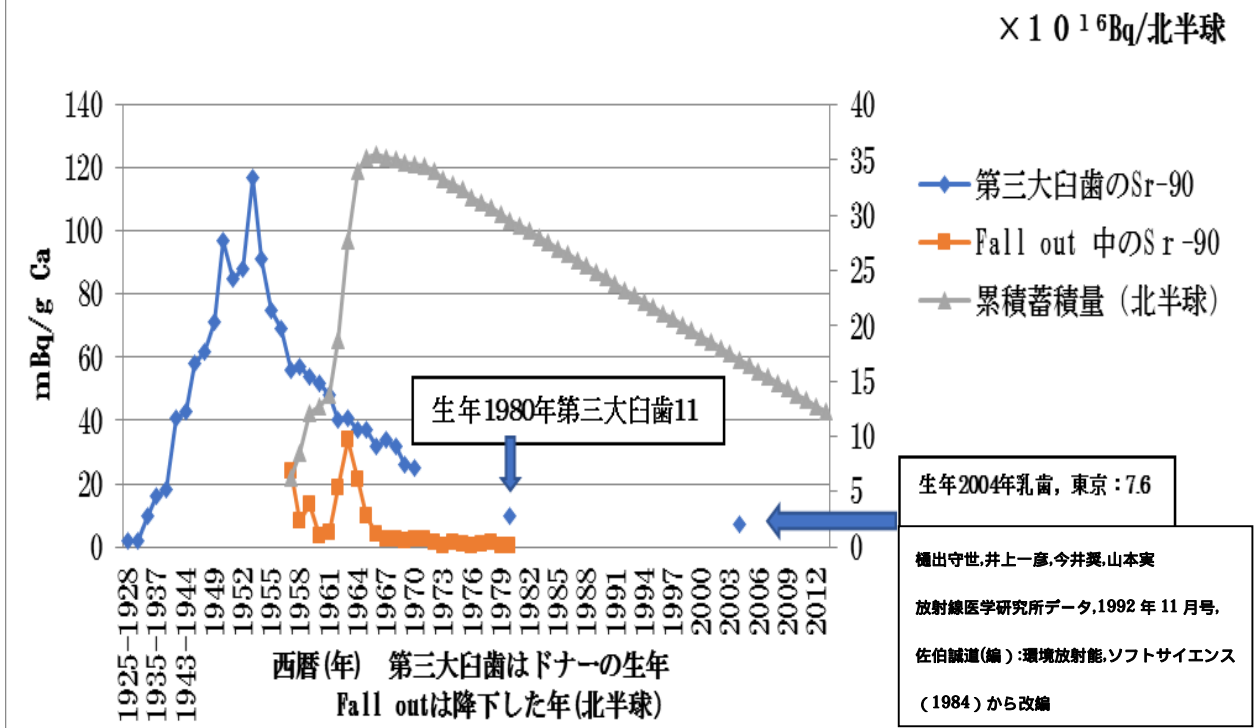
表2 日本におけるヒト乳歯への放射性核種の蓄積データ(福島原発事故後, 生年別, 地域別)

地域	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>90</sup> Sr
埼玉県 (2003年, 35本)	*	*	*
東京都 (2003年, 57本)	*	*	*
愛媛県新居浜市 (2003年, 45本)	*	*	*
愛媛県八幡浜市 (2003年, 29本)	未測定	未測定	*
埼玉県 (2004年, 34本)	*	*	*
東京都 (2004年, 54本)	*	*	7.6 ± 2.3
愛媛県新居浜市 (2004年, 48本)	*	*	*
愛媛八幡浜市 (2004年, 18本)	*	*	*
関東地方 (千葉, 埼玉, 東京, 神奈川, 2002-2004年 113本)	未測定	未測定	6.9 ± 1.7
東北地方 (宮城, 山形, 秋田, 福島, 2002-2004年, 40本)	未測定	未測定	*
大阪府 (2002-2004年, 48本)	未測定	未測定	*
愛知県 (2002-2004年, 31本)	未測定	未測定	*
熊本県 (2002-2004年, 83本)	未測定	未測定	5.1 ± 1.6
南九州地方(鹿児島, 沖縄) (2002-2004年, 42本)	未測定	未測定	*
東京都 (2002年, 80本)	未測定	未測定	4.9 ± 1.5
埼玉県成人第三大臼歯 (1980年 13本)	*	*	11.0 ± 2.5

西暦：生年 単位：mBq/gCa \*：検出限界以下 測定値：2011.3.11時点に換算

乳歯：757本 成人第三大臼歯：13本，総合計：770本

図2  $^{90}\text{Sr}$ の年間降下量, 蓄積量と第三大臼歯中の $^{90}\text{Sr}$



< 引用文献 >

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://mri-3.mri-jma.go.jp/Topics/H23/Happyoukai2011/2011Happyou05.pdf>

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://dl.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/6017222>

放射性物質放出量データの一部誤りについて, <http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/9395049/www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.pdf>

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, <https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2r9852000001eap9-att/2r9852000001eawy.pdf>

井上一彦, 山口一郎: 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, 日本環境臨床医学(Jpn J Clin Ecol), Vol. 22, No. 2, 2013.

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, <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No28.pdf>

放射性ストロンチウム分析法, 文部科学省, 平成15年改訂, <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No2.pdf>

Froidevaux P et al:  $^{90}\text{Sr}$  in deciduous teeth from 1950 to 2002: the Swiss experience. *Sci Total Environ.* 31;367(2-3):596-605, 2006.

Froidevaux P: Plutonium from above-ground nuclear tests in milk teeth: investigation of placental transfer in children born between 1951 and 1995 in Switzerland. *Environ Health Perspect.* 116(12):1731-4, 2008.

湯川雅枝, 前田智子, 滝沢行雄: 人体臓器中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度, 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, 139 - 141, 1986.

永井 充, 石井俊文: 乳歯中の $^{90}\text{Sr}$ について, 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.

Moriyo Hinoide, Makoto, Yamamoto, Kazuhiko Inoue, Hideo Nakamura, Susumu Imai: RADIOACTIVITY SURVEY DATA in Japan, Number99, November1992.

Kulev YD, Polikarpov GG, Prigodey EV, Assimakopoulos PA. Strontium-90 concentrations in human teeth in south Ukraine, 5 years after the Chernobyl accident. *Sci Total Environ.* 1994 Oct 28;155(3):215-9.

## 5. 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計3件)

井上一彦, 山口一郎, 佐藤 勉, 村田貴俊, 今井 奨, 野村義明, 花田信弘: 福島原発事故により放出された放射性核種( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ )のヒト乳歯への蓄積の推移に関する研究 第1報, 福島第一原発事故による周辺生物への影響に関する専門研究会報告書, 査読有, 172-189, 2016. [http://www.rrri.kyoto-u.ac.jp/PUB/report/04\\_kr/img/ekr015.pdf](http://www.rrri.kyoto-u.ac.jp/PUB/report/04_kr/img/ekr015.pdf)

井上一彦, 山口一郎, 村田貴俊, 今井 奨, 野村義明, 花田信弘, 佐藤 勉, 櫻井四郎: 福島原発事故等により放出された放射性核種( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ )のヒト乳歯への蓄積の推移に関する研究, NMCC 共同利用研究成果報文集 23 (2016年), 査読有, <https://www.jriias.or.jp/report/pdf/2016-23J1.2.18.pdf>

### 〔学会発表〕(計9件)

井上一彦, 山口一郎, 夏堀雅宏: 福島第一原発事故により被災した牛の歯を用いた電子スピン共鳴法による線量測定(予備的検討) 第5回福島第一原発事故による周辺生物への影響に関する勉強会, 2018年.

井上一彦, 中井康博, 三宅 実, 山口一郎, 志村 勉, 櫻田尚樹, 夏堀雅宏: 牛の歯を用いた電子スピン共鳴法による線量測定, ESR 応用計測・ルミネッセンス年代測定・FT 研究会 2018年度合同研究会, 2018年.

井上一彦, 山口一郎, 佐藤 勉, 村田貴俊, 今井 奨, 野村義明, 花田信弘: 福島第一原子力発電所事故により放射された放射性核種(プルトニウム239, ストロニウム90)のヒト乳歯へ蓄積に関する研究, 第2報 日本と欧州の比較, 第4回福島第一原発事故による周辺生物への影響に関する勉強会, 2017年.

### 〔図書〕(計1件)

Fukumoto Manabu(Ed.), Kazuhiko Inoue, Ichiro Yamaguchi, Masahiro Natsuhori: Low-Dose-Rate Radiation Effects on Animals and Ecosystems, Preliminary Study on Electron Spin Resonance Dosimetry Using Affected Cattle's Teeth due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, Springer Nature, 2019.  
ISBN 978-981-13-8218-5, <https://www.springer.com/gp/book/9789811382178#aboutBook>

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名: 山口 一郎

ローマ字氏名: YAMAGUCHI ICHIRO

所属研究機関名: 国立保健医療科学院

部局名: 生活環境研究部

職名: 上席主任研究官

研究者番号(8桁): 50311395

研究分担者氏名: 花田 信弘

ローマ字氏名: HANADA NOBUHIRO

所属研究機関名: 鶴見大学

部局名: 歯学部

職名: 教授

研究者番号(8桁): 70180916

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。