

# 福島第一原子力発電所事故により放出された 放射性核種（プルトニウム239，ストロンチウム90） のヒト乳歯への蓄積に関する研究

井上一彦<sup>1)</sup>，村田貴俊<sup>2)</sup>，今井 奨<sup>2)</sup>，角田衣理加<sup>2)</sup>，  
武内博朗<sup>2)</sup>，野村義明<sup>2)</sup>，山口一郎<sup>3)</sup>，花田信弘<sup>2)</sup>

**抄 録** 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<sup>90</sup>Sr），プルトニウム238，プルトニウム239+240（以下<sup>238</sup>Pu，<sup>239+240</sup>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に伴う線量を推計することが考えられる。特に，乳歯は永久歯に比べ短期間で多くの歯を収集することが可能であるので，事故に由来した人体への取り込みが増加しているかどうか検証することに適していると考えられる。事故で放出された<sup>90</sup>Sr，<sup>238</sup>Pu，<sup>239+240</sup>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<sup>90</sup>Sr量，<sup>238</sup>Pu量，<sup>239+240</sup>Pu量を調査する。現在588本収集されているが，被災地および福島からの収集本数が少ないので，被災地の乳歯収集本数を増やすことが不可欠であることが示唆される。これまで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<sup>90</sup>Sr量，<sup>238</sup>Pu，<sup>239+240</sup>Pu量を従来法とSrRaddisk法にて定量した結果，SrRaddisk法では検出限界以下（200mBq/g灰）であったが，従来法では17mBq/g・Caの<sup>90</sup>Srが検出され，<sup>238</sup>Pu，<sup>239+240</sup>Puはいずれも検出限界（0.004mBq/g灰）以下であった（表2）。

**キーワード** 福島原発事故，放射性核種（<sup>90</sup>Sr量，<sup>238</sup>Pu，<sup>239+240</sup>Pu量），バイオプシー，乳歯，環境放射能汚染

## 1. はじめに

2011年3月，日本で初めての最大級の福島原発事故（レベル7）により放出された放射エネルギーは37万テラ（10<sup>12</sup>）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，（抜粋）ヨウ素131；16万テラベクレル，セシウム137；1万5,000テラベクレル，<sup>90</sup>Sr；140テラベクレル，<sup>239</sup>Pu；0.0032テラベクレル}であった<sup>1,2)</sup>。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（図1）<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，<sup>90</sup>Srは歯，骨にたまり<sup>4,5,6)</sup>，<sup>239</sup>Puは肺に沈着し，体内に入ると骨に蓄積する<sup>7,10)</sup>。内部被曝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，核実験による大気中の放射能降下物（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調査し，1953年生まれの人々の第三大臼歯に<sup>90</sup>Srの量が最大値を示すことを報告した<sup>4,5)</sup>（図2）。また，石井と永井らは地上核実験が行われた時期に全国より乳歯を収集し，放射能降

受付：2013年11月12日

<sup>1)</sup>研究代表者，鶴見大学歯学部探索歯学講座

<sup>2)</sup>鶴見大学歯学部 探索歯学講座

<sup>3)</sup>国立保健医療科学院 生活環境研究部

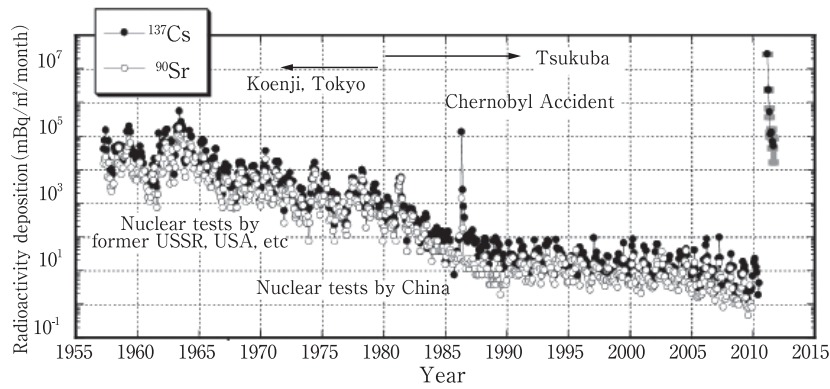


図1 福島原発事故以前と以後での人工放射性核種の月間降下量の変動<sup>3)</sup>  
2011年3月以降の<sup>137</sup>Cs月間降下量は暫定値

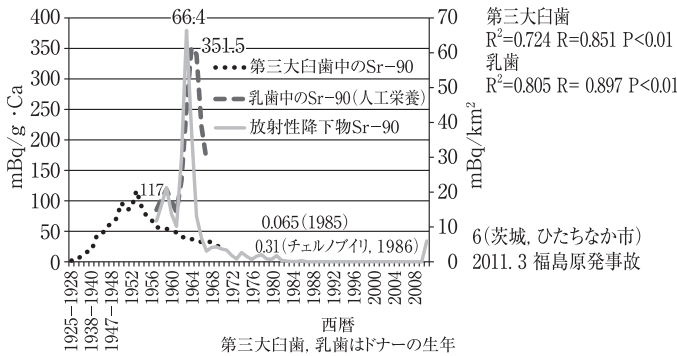


図2 日本における放射性降下物<sup>90</sup>Srの年間降下量(1958~2011年)と日本人第三大白歯(N=849)と乳歯(N=114,725)の<sup>90</sup>Sr量<sup>4)</sup>  
Moriyo Hinoide, Makoto Yamamoto, Kazuhiko Inoue, Hideo Nakamura, Susumu Imai: RADIOACTIVITY SURVEY DATA in Japan<sup>3)</sup>, と環境放射能データベース, 放射能調査研究成果発表会抄録集<sup>6)</sup>より改編

下物(フォールアウト)に一致してその時期に形成されていた乳歯には放射エネルギーが高いことを示している(図2)<sup>6)</sup>。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の濃度を調査する。また、1970~1985年頃まで収集した核実験の影響があると思われる乳歯のグループ(約308本、表2、図3)と比較する。研究の目標は、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ある。この研究計画は鶴見大学歯学部倫理診査委員会(受付番号1029)、及び東京歯科大学倫理委員会(受付番号506)において承認されている。

## 2. 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。具体的な乳歯収集地域

表1 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	○	宮城県	○	京都府	○□
栃木県		千葉県	○□	岩手県		静岡県	
群馬県		福島県 会津		山形県		山梨県	
埼玉県	○□	福島県中通り	□	青森県		長野県	
東京都	○□	福島県浜通り	○□	北海道	○	生年1970~1985乳歯群	△

△: 1970~1985年日本全国から収集した乳歯(約200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

を表1に示した。

歯の収集を実施する予定の歯科診療所(平成24年8月31日現在)は、東京都:2、埼玉県:1、神奈川県:1、茨城県:2、京都府:1、北海道:1、8施設である。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。

この研究に同意された被験者の抜歯された乳歯は基本情報として名前、住所、抜歯部位、年齢、抜歯年月日、抜歯された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) 試料の作製

地域別、年齢群別に乳歯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(TM500, MORITA<sup>®</sup>)でアルミナるつぽに入れ、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する(図3)。

#### (2) <sup>90</sup>Srの分析

検出限界値は4 mBq/gから算出して分析に必要な量は10~20gである。

計測は放射性ストロンチウム分析法（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）により実施する。

(3) <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu の分析

検出下限値は0.02mBq/g 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（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）により実施する。

両試料測定のための1試料必要量は20~30g である。試料を作製するために乳歯（平均0.36g）で約50~60本必要である。乳歯の放射線量から、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。

(4) 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別の本数と乾燥重量、灰化重量を表2に示す。

(5) 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）。本数の推定は歯種の総重量を測定し、一本あたりの重量から全体の本数を推定値として算出し、歯種別、削片別に灰化した（図3）。

(6) 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>8)</sup>の<sup>90</sup>Sr 測定用試料とした。



図3 乳歯 乾燥後（左）と灰化後（中）粉末試料（右）

表2 1970~1985年までに予研で収集された歯種別乳歯数、重量および分析結果

	AB	C	D	E	ABCDE 平均重量	歯種不明 歯牙削片	総合計本数 および重量	試料名	基準日	測定日	<sup>90</sup> Sr	単位
本数	96	61	16	10		29		乳歯試料 20グラム	1967. 10. 21	2013. 12. 11	51. 5	mBq/g・Ca
重量(g)	14. 7	13. 3	5. 75	6. 68		10. 2			1983. 1. 1		35 ± 3. 7	
一本当り重量(g)	0. 153	0. 218	0. 359	0. 668	0. 350	0. 399			1993. 1. 1		28 ± 2. 9	
削片重量(g)			10. 35	14. 15					2013. 10. 21		17 ± 1. 8	
推定本数	96	61	29	21		26	308	測定日	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu		mBq/g・灰
総重量(g)	14. 7	13. 3	16. 1	20. 83		10. 2	75. 13	2013. 12. 2	*	*		
灰化後重量(g)	10. 85	9. 98	12. 48	16. 78		7. 93	58. 02		(0. 004)	(0. 004)		

\* 検出限界以下 ( ) : 検出限界値

不確かさは計数誤差のみを示す

基準日からの測定値:  $A_t = A_0 / (1/2)^{t/T}$  より算出 t: 経過時間 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: 半減期  
[28. 79年 (JCAC) : 日数換算]

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の試料とした。

3. 結果

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さんに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。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（♂335本, ♀224本）であった（平成25年10月15日現在）。

2) コントロールサンプルの結果について

SrRaddisk 法では検出限界以下（200mBq/g 灰）であったが、従来法では17mBq/g・Ca の<sup>90</sup>Sr が検出され、<sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu はいずれも検出限界（0.004mBq/g 灰）以下であった（表2）。

4. 考察

1) コントロールサンプルの結果について

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2）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：17mBq/g・Caを求めた。 $^{90}\text{Sr}$ の半減期は28.8年であり指数関数的に減衰される。公式の最後の乳歯中の $^{90}\text{Sr}$ 定量値は59.2 mBq/gCa（生年1967年<sup>6)</sup>であったことから、生年が1970年頃のものであることが推測される（生年；1967年の推測値；51.5mBq/g・Ca、表2）。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>8)</sup>は乳歯中 $^{90}\text{Sr}$ 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

この研究を行うにあたり、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<sup>1,2)</sup>。フォールアウト中の $^{90}\text{Sr}$ 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（図1<sup>3)</sup>）。ただし、海洋への $^{90}\text{Sr}$ が人への移行に寄与することが考えられる。生物濃縮における人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があるとすると、その地域では否定できない。また、これらの報告は関東、東北地方で降水量にも差があったことを示している。青山らは、事故後の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水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（図1<sup>3)</sup>）。今回の結果から、検出限界値は4 mBq/g・Caであることが再確認され、個人レベルでは $^{90}\text{Sr}$ 量は非常に少なく、測定は個々の乳歯や個別に収集した乳歯単位では行わず、地域単位で行っている。両試料測定のための一試料必要量は20～30gである。試料を作製するために乳歯（平均0.36g）で約50～60本必要である<sup>3,4)</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）。その改善や新たな測定方法や測定装置の開発や歯種選別に関しても検討をする。

## 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4～6月、歯冠完成；生後1.5～11月）には放射エネルギーが高いことを示している（生年1964年、図2<sup>6)</sup>）。このことから原発事故由来の $^{90}\text{Sr}$ は胎盤

を移行し、胎生期より取り込みを始め、生年が2012年の乳歯から、最大の取り込みがあると予想される。プルトニウムは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<sup>7)</sup>。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の生年が2011年以降の乳歯には、原発事故周辺地域土壤中から $^{90}\text{Sr}$ や $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ が検出されている<sup>9)</sup>ので、環境への影響が多くあった福島近隣地域や東北、関東エリアでは、乳歯中に $^{90}\text{Sr}$ や $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ が多く取り込まれていないことを確認する意義があると考えられる。核実験由来のものとの差別化は、地域別生年別の定量値の差の精査（基準値：17mBq/g・Ca、表2）と今回の事故で特異的な $^{238}\text{Pu}$ の存在の有無について比較検討する。

## 4) 乳歯収集状況

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）。被災地ではこの研究の意義を理解して頂くため勉強会を実施し、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。

## 5. まとめ

43～45年前（推定生年1970年）の乳歯から $^{90}\text{Sr}$ が検出（核実験由来）されたことは、代謝のない硬組織では内部被曝の履歴は長期間にわたり消えないことが、今回の結果からも再確認された（表2）。乳歯は一定期間のち抜去されるので、バイオアッセイとして非常に有用であり、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 $^{239+240}\text{Pu}$ が検出され<sup>10)</sup>、スイスの報告では微量に検出されていること<sup>7)</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。

地球核汚染や事故が続いていくことを考えるとこの研究は永く、永続されていく必要がある。現時点の方法では、微量定量であるので一定本数以上乳歯を収集できなければ検出限界以下になったり、核実験由来のものか原発事故由来のものであるかの分別が困難である。今回の結果から、一地域一年齢50～60本単位の乳歯（灰化試料；20グラム）が必要である。これから自然抜去や抜去される乳歯（生年；2011年以降）が $^{90}\text{Sr}$

や<sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Puの体内摂取量推定に役立つと考えられる(図2)。それゆえ、可及的な乳歯収集本数と被災地やその周辺地域の収集が非常に重要である。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)にご協力を強くお願いし、稿を閉じる。

東北の研究グループと協力関係を築いていく予定である。

### 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>, (2011年11月15日アクセス) 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>, (2011年12月15日アクセス)
- 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)の放出量の推定的試算値について,  
<http://www.nsc.go.jp/info/20110412.pdf>  
 (2011年12月15日アクセス)
- 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> (2012年12月15日アクセス)

- 4) Hinoide, M., Yamamoto, M., Inoue, K., Nakamura, H., Imai, S.: RADIOACTIVITY SURVEY DATA in Japan, Number99, November1992.
- 5) 井上一彦, 村田貴俊, 今井奨, 佐藤勉他: 日本における放射性降下物ストロンチウム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, 口腔衛生学会雑誌, 159, 63(2), 2013.
- 6) 永井 充, 石井俊文: 乳歯中の<sup>90</sup>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.
- 7) Froidevaux, P., and Haldimann MA: Plutonium from Above-Ground Nuclear Tests in Milk Teeth: Investigation of Placental Transfer in Children Born between 1951 and 1995 in Switzerland, Environmental Health Perspectives, 116(12)December 2008.
- 8) 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), JAEA-Technology 2009-051 (2009).
- 9) 原子力災害現地対策本部(放射線班), 福島県災害対策本部(原子力班), 福島県における土壌の放射線モニタリング調査結果  
 平成24年, <http://www.cms.pref.fukushima.jp/download/1/dojou120406.pdf> (2013年10月15日アクセス)
- 10) 湯川雅枝, 前田智子, 滝沢行雄: 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, p139-141.

## Accumulation of Radionuclides (Plutonium-239, Strontium-90) Emitted Following Fukushima No. 1 Nuclear Power Plant Accident in Japanese Milk Teeth

Kazuhiko INOUE<sup>1)</sup>, Takatoshi MURATA<sup>1)</sup>, Susumu IMAI<sup>1)</sup>,  
 Erika KAKUTA<sup>1)</sup>, Hiroaki TAKEUCHI<sup>1)</sup>, Yoshiaki NOMURA<sup>1)</sup>,  
 Ichiro YAMAGUCHI<sup>2)</sup>, Nobuhiro HANADA<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup> Department of Translational Research, Tsurumi University School of Dental Medicine

<sup>2)</sup> Department of Environmental Health, National Institute of Public Health

### Abstract

We aimed to clarify the influence of the Fukushima No. 1 Nuclear Power Plant accident based on the amount of radioactivity that has accumulated in milk teeth, examining actual conditions of the accumulation of radionuclides in humans while comparing levels with previous. We asked dental offices (approximately 100 dental offices) throughout Japan to collect milk teeth and we received milk teeth from 30 dental offices (588 teeth as of October 15, 2013). Although we have collected 588 tooth so far, there are only a few teeth from the disaster area of Fukushima and therefore it has been suggested that it is vital to increase study meetings and lectures to gain an understanding of the importance of participation in this study and increase cooperators and cooperative dental offices, so as to increase the number of milk teeth from the disaster areas in particular. Presently, amounts of <sup>90</sup>Sr, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu of 309 milk teeth collected as control samples from 1970 to 1985 (estimate) by the Department of Dental Research, National Institute of Health are being assayed using the official radioactive strontium and plutonium analysis method (Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology) and SrRad-disk method. As a result, control sample (milk teeth) was detected <sup>90</sup>Sr (official method, 17mBq/g · Ca), but amounts of <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu was not detected (Table 2).

**Key words** : Fukushima 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