3.11 巨大津波による重元素汚染の被災者への影響

世良耕一郎[1]、後藤祥子[2]、高橋千衣子[2]、齋藤義弘[2]、山内広平[3]

[1]岩手医科大学サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢留が森 348-58

[2]日本アイソトープ協会仁科記念サイクロトロンセンター
020-0173 岩手県岩手郡滝沢村滝沢留が森 348-58

[3]岩手医科大学医学部呼吸器・アレルギー・膠原病内科
020-8505 盛岡市内丸 19-1

1 はじめに

2011 年 3 月 11 日（以下 3.11）東北大震災に伴う巨大津波は、海底に堆積する重元素汚染された多量の汚泥（ヘドロ）を市街地、住宅地にもたらした。我々はヘドロ中重金属による被災者の健康影響を調べる目的で、2011 年 7 月から 9 月にかけて八戸から仙台空港までの広い沿岸域において陸地に堆積した汚泥 72 試料を採取し、分析結果の報告を行った（7th International Symposium on Bio-PIXE, Sendai, 2011）。その結果、陸上に堆積したヘドロ中には多量の重元素が含まれていることが確認された[1, 2)]。ヘドロは乾燥後短期間で粉塵化し、その吸入により被災者の健康にも悪影響を及ぼす可能性が懸念される。

一方、我々により開発された無調製毛髪試料に対する定量分析法[3, 4)]を応用した「長い毛髪分析による、体内元素濃度変化の測定法[5)]」は、日々採取されるヒゲ試料分析法[6, 7, 8)]とともに長期にわたる体内元素濃度変化の観察を可能とする。Fig. 1 に、盛岡市在住 27 歳女性から採取された 26 cm の毛髪を 1 mm 毎に切断し分析を行った結果を示す。Ca は長期的に減少する傾向を見せているが、特徴的な季節変化を示すのが Br であり、冬に濃度が増大・夏に減少する傾向が明確に見られ、その変動幅は 5 倍ほどにもなる。同一の傾向が、盛岡市在住の他の女性の毛髪においても観測され、一般的住民に共通の傾向であることが確認された。一方、我々は既に 20,000 試料以上のアジア住民の毛髪を分析しているが、Fig. 2 に主な元素濃度の平均値を比較して示す。いくつかの元素の濃度平均値に国別の特徴が観測される中で、Br が特に大きな差異を示しており、日本人の毛髪のみが他国の人々と比べ 5 倍以上 Br 濃度が高いことが分かる。

それらの日本人毛髪中 Br の特異な振舞は数年間説明できなかったが、平成 21 年第 20 回 NMCC 共同利用研究成果発表会における長崎大環境学部（松本・高辻等）の報告により、その解明の端緒を掴むことができた[9)]。松本等は、大陸からの偏西風に乗り飛来するエアロゾル試料中の元素濃度季節変動を測定しているが、臭素濃度が日本人体内臭素濃度と全く同様な季節変動を示し、冬に高く夏に低く、その変動幅は 5 倍ほどであることが示された。その事実から、多くの日本人の体内臭素濃度季節変動の特

異な振舞、及び際立った高濃度値は、いずれも大陸から偏西風で運ばれるエアロゾル吸入によるものと推定される。このように、長い毛髪分析は、体内元素濃度の長期的変動に関する情報をもたらすものである。

男性の場合、毎日採取するヒゲ試料の分析が体内元素濃度の長期的・短期的（2 時間毎でも可能）変動を示すことが確認されている [8)]。しかし今回は事後の採取であったため、数ヶ月以上にわたる履歴が保存される毛髪のみ採取可能であり、16 cm 以上の長い髪を有する女性に限定して採取が行われた。目的は被災者の 3.11 前後の体内元素濃度変動を測定することである。

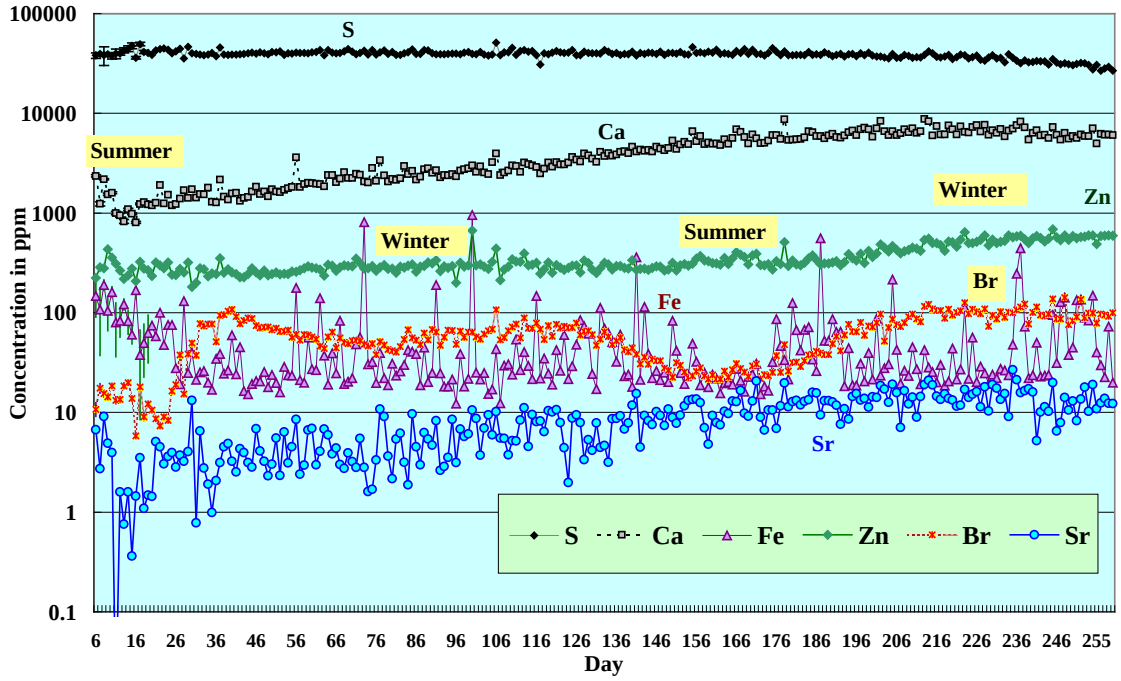

Fig. 1 Daily changes of elemental concentration of 6 principal elements in 260 mm-long hairs corresponding to nearly 700 days taken from a 27 year old female.

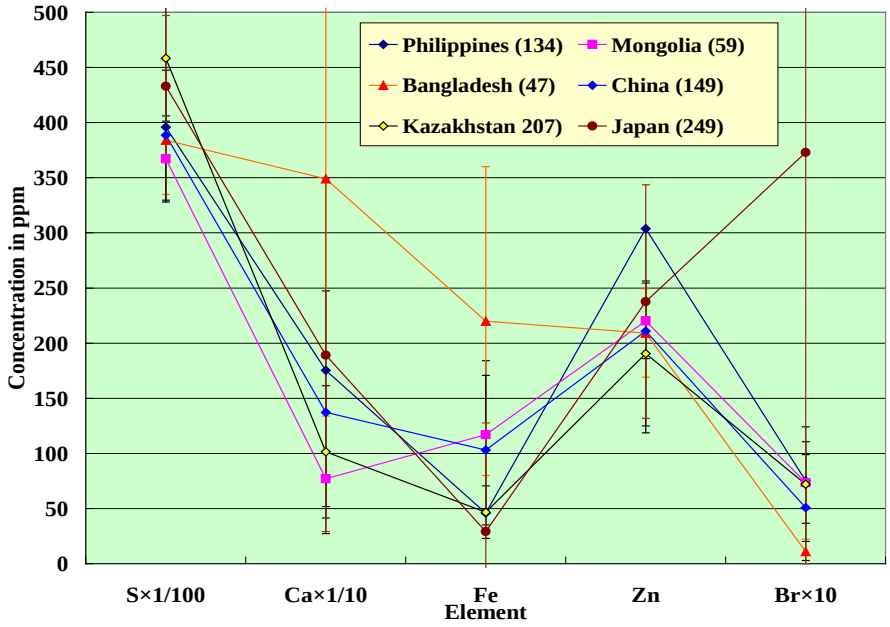

Fig. 2 Differences of elemental concentration in hairs on the nation in Asian countries.

2 実験方法

2.1 試料採取

大船渡市と宮古市在住の女性 29 人から、2012 年 1 月から 2 月にかけて長い毛髪の採取が行われた。7～8 本の毛髪が毛根に近い部分でカットされ、毛根を揃えた状態で保管された。対象女性はいずれも 3.11 津波の被災者であり、その後も市中に住み続けている方々である。毛髪は 1 ヶ月にほぼ 1 cm 成長すると言われており、13 cm 以上の長さがあれば、3.11 前後の体内元素濃度変化の情報が得ることができると期待される。

2.2 試料調製

毛髪はアセトンを用い良く拭いた後、毛根側を揃え、0～6 cm までは 2 cm 毎に、6 cm から毛先までは 1 cm 毎に切断され、先端が分析された。そのため試料採取時から 0、2、4、6、7、8～ヶ月以前の体内元素濃度を反映するものと期待される。最長のもので毛根から 37 cm まで測定が行われ、この場合ほぼ 3 年間にわたる情報となる。ターゲットは上部から。7～8 本の毛髪を垂れ下がらせる状態に調製し、先端のみがビームで照射される条件で測定が行われた。

2.3 照射・測定条件及び定量方法

島津製作所小型サイクロトロンより引き出された 2.9 MeV の陽子ビームは、2 組の三連 Q magnet、steering magnet などで調整され、真空散乱槽に導入される。発生した X 線は、2 台の Si (Li) 検出器により測定される [11]。検出器 1 には.300 μm Mylar 膜の X 線吸収体が装着され、Ca から重元素までの測定が行われ、検出器 2 には吸収体を用いず、計数率を調整するためのグラファイト製 X 線コリメータが装着され、Na～Ca までの軽元素測定が行われる。ビーム径は 6 mmϕ、平均的ビーム電流及び測定時間はそれぞれ 80 nA、3～7 分であった。

毛髪試料は、我々により開発された「無調製毛髪試料に対する無標準法 [3, 4]」を用いて定量解析が行われた。同法は生物試料に対する無標準法 [13] に基づいて開発され、これは広いエネルギー領域に渡る連続 X 線の収量を基準に取り、指標元素である Zn の定量値を得、それを内部標準濃度とみなして通常の物理的定量法を適用することにより全元素の濃度値を得るものである。無調製毛髪に対する無標準法 [4, 5] は、既に 2 万以上の毛髪試料の定量分析に応用されている。

3 結果と議論

Fig. 3 に大船渡在住 27 歳女性から採取された毛髪分析の結果を示すが、3-a は主元素、3-b は有害元素を含む微量元素の変動をそれぞれ示している。この女性の場合、毛髪の長さが 37 cm 以上であったため、3 年間の長期にわたる元素変動が観察可能であった。3-a に見られるようにいくつかの必須元素濃度が長期的変動を示してはいるが、2011.3.11 前後での明確な変化は見られない。また 3-b に示す微量元素変動においても、Pb、As などが興味深い長期・短期的変動を以前には示してはいるが、3.11 津波前後においては大きな変動は見られない。このことからこの女性の場合には、3.11 津波による環境･食生活の変化が体内元素濃度に大きな影響を与えていないことが確認できる。

Fig. 4 には同じ大船渡市在住 25 歳女性の毛髪試料分析結果を示す。Fig. 3 と同じく、4-a が主元素、4-b が微量元素の結果である。主元素の場合、前例と同様 3.11 前後での際立った変化は見られない。しかし Cl のみが明確な変化を示している。3.11 の後 2 ヶ月ほどは殆ど検出にかからないほど微量であったが、3 ヵ月後には濃度が上昇し始め、続く 6 ヶ月の間上昇し続け、以前の 100 倍以上の濃度まで増加している。一方図 4-b を見ると、数種の有害元素濃度に確実な変化が見られる。例えば Pb、Hg は 3.11 後濃度を検出限界値以下まで減少させ、2～3 ヶ月後に再び上昇を開始、ほぼもとの濃度に戻る振舞いを見せている。As 濃度も同じ時期に上昇を開始し、数ヵ月後に検出限界以下まで減少している。別に報告を行った釜石在住住民から採取した毛髪試料 [14] の場合も、同様の傾向を見せる例がいくつか見られた。

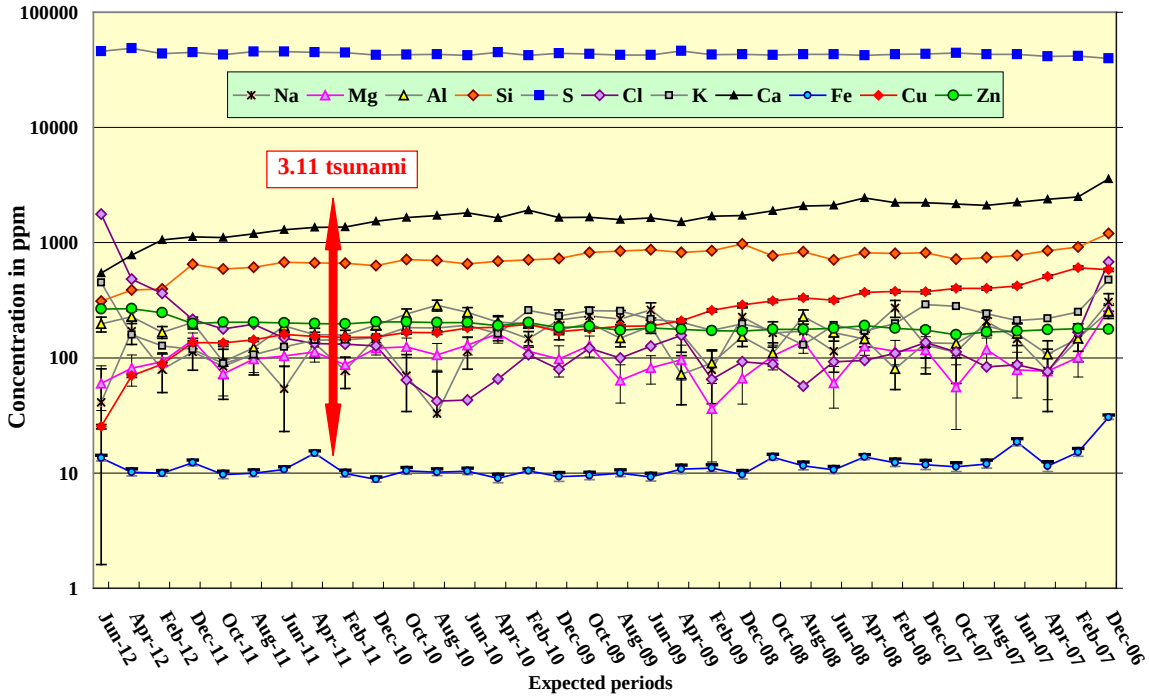

Fig.3-a. Changes in the concentration of essential elements in a hair sample collected from a 27 year old female living in Ofunato city.

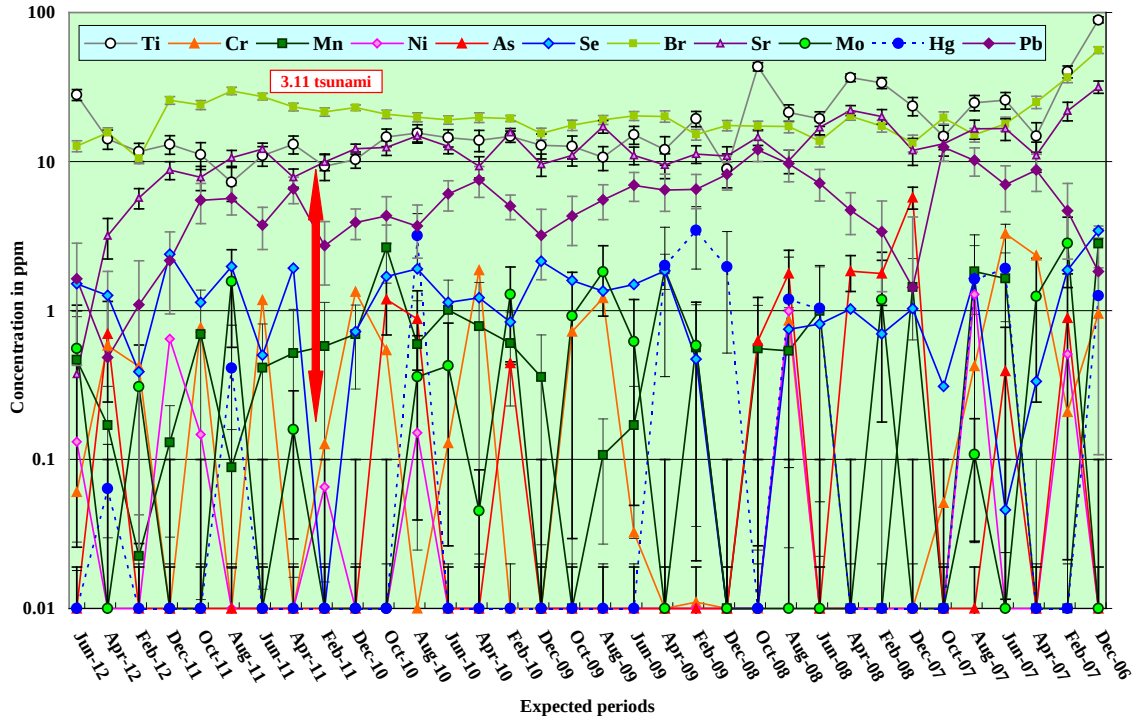

Fig. 3-b Same as Fig. 3-a but for trace and toxic elements.

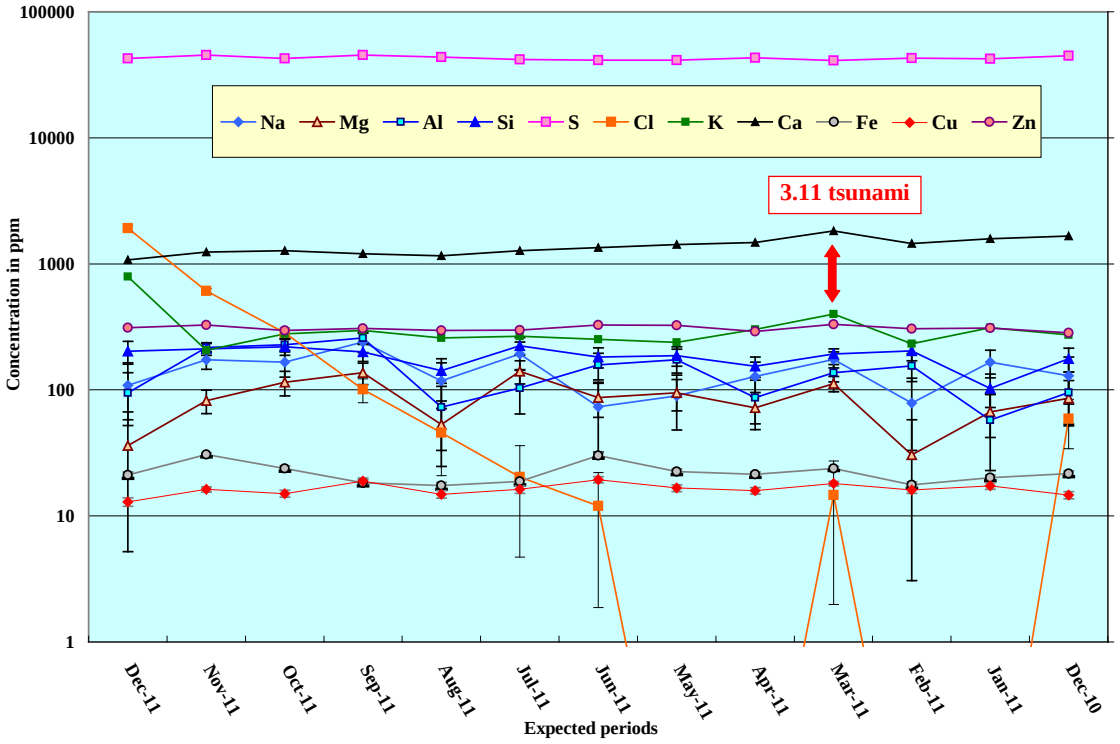

Fig. 4-a. Changes in the concentration of essential elements in a 12 cm long hair collected from a 25 year old female.

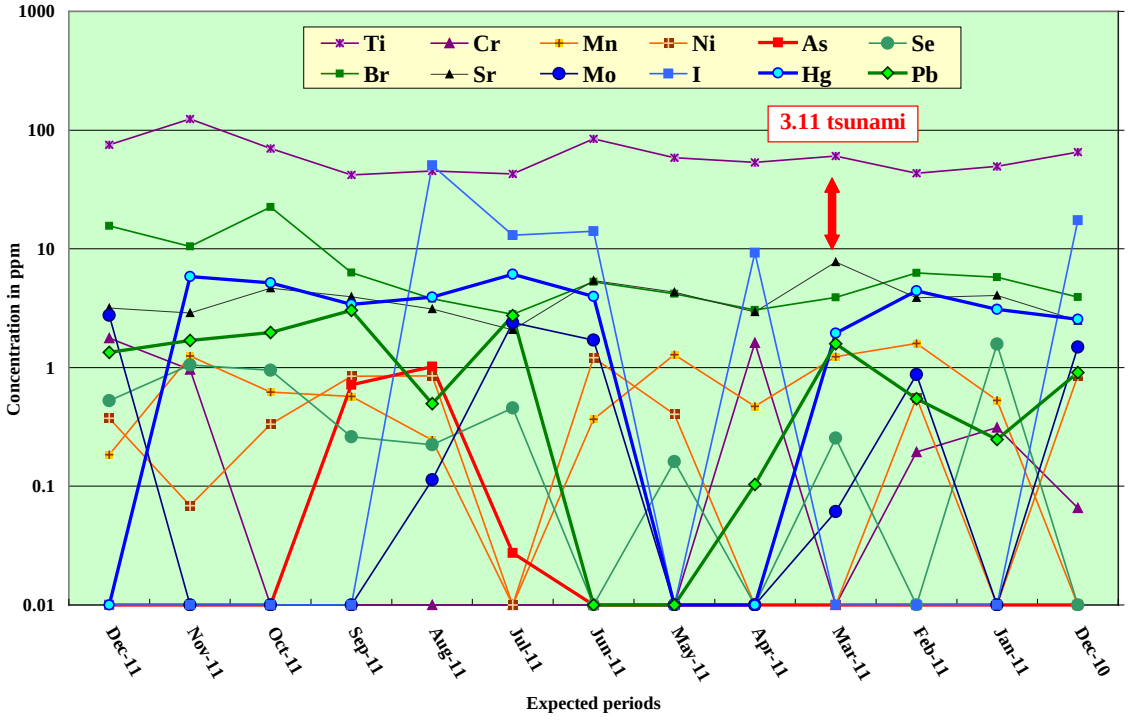

Fig. 4-b Same as Fig. 4-a but for trace and toxic elements.

上記のような傾向は以下のように解釈できる。我々は、岩手県内在住健常人から採取した毛髪中元素濃度の平均値を得ている。それによると、Hg と Pb に対する平均値及びその標準偏差値は、女性に対し 3.43±3.2 ppm と 5.86 ± 6.0 ppm（n = 239）、男性に対し 4.73 ± 1.6 と 3.83 ± 0.67 （n = 166）である。特に女性に対しては個人差が大きく従って標準偏差値が大きいが、Fig. 4-b の値がこれらの平均値と比してそれほど高い値ではないことが分かる。その原因は、岩手には宮古港などの漁港が多く、内陸地方にまで魚介類を食する文化が浸透していることが一因であると思われる。我々の研究により、近年の魚介類には必須元素とともに有害元素も多く含まれることが確認されている [15)] 。特に被災者の方々は沿岸に住み、海産物の摂取量が内陸の人々より多い。海産物中には豊富な必須元素と多量の有害元素が存在し、内陸の住民よりも体内有害元素濃度は通常から高いことが予想される。しかし 3.11 津波後にすぐ避難所生活に入り、その日から食生活は一変、インスタントラーメンなどの非常食が主体となり、必須元素・有害元素とも摂取量が減少した状態がおよそ 2 ヶ月間続いた。その後避難所を離れ、食生活が徐々に元に戻っていくのに伴い、必須元素・有害元素ともに摂取量が増えてきたものと推定される。必須元素に関しては、骨からの補給により、長期間にわたらない限り体内元素濃度の調整がある程度可能であるが、有害元素に関しては摂取量の違いがそのまま短期的に反映されるものと思われる。

一方 As に関しては、Fig. 4-b の女性の場合 3.11 以前には検出されておらず、3〜4 ヵ月後に 2〜3 ヶ月にわたる上昇を見せている。この元素に関しては男女間の差は殆どなく、健常者の平均値は 0.23 ppm 程度であるため 3.11 後の濃度の上昇は、通常より明確に高い値を示しているとはいえない。また Cl のやや異常な振舞に関しては、同様な傾向を示す例が釜石市民の毛髪分析結果 [14)] にも見受けられる。岩手県在住健常者の塩素に対する平均値は、女性に対し 493 ± 315 ppm (n=239) 、男性に対し 1342 ± 581 ppm (n=166)であり男女差が大きい。またこの元素の場合、100 ppm 以上の平均値にしては個人差もかなり大きい。この女性の場合、もともと塩素濃度が平均値よりも低かったが、3.11 後の上昇により平均値を大きく上回る濃度となっている。この元素は多くの食品に多量に含まれるため、食生活の変化に起因するものではないと思われる。Cl は通常、体内では主に NaCl、KCl の形で体液中を移動し、短期的変動は Na、K と挙動を共にする傾向があることが確認されている [8)]。その事実は、体液中の Na、Cl、K の 3 元素が NaCl、KCl の形で体毛中に輸送されていることを示唆している。しかしこの女性の場合、K 濃度が最後に数倍に上昇している以外は Na、Cl 両元素とも長期にわたり殆ど一定値を保っており、Cl との連動は全く見られない。これらの事実から、この Cl 濃度の変動は生活環境の変化に伴う代謝の変化を反映しているものと推定される。また今回採取された毛髪はいずれも染髪していないものを選んでいるが、洗剤や整髪料の影響も否定できない。しかし現在までの毛髪分析の経験から、アセトンによる洗浄の効果により（染髪剤や脱色剤以外の）洗剤・整髪料などの影響は大きく受けないことが確認されている。さらにこの変動が連続的で明確な傾向を示しており、新たな洗剤・整髪料の使用に伴う不連続な変化が見られないことから、体内塩素濃度変化を反映しているものであると推定される。

Fig. 5 には、これら大船渡・宮古両市で採取された 29 の毛髪試料に対し、それぞれ採取時期（2012 年 1〜2 月）、3.11 津波 3 ヵ月後、津波 1 ヶ月前に相当する箇所を照射し分析を行った平均値を比較して示す。必須元素に関しては、Mg、Ca、Cu の 3 元素が試料採取時に濃度を大きく低下させており、これは釜石在住女性 129 人の場合と全く同様の結果となった [14)]。特筆すべきは、I（ヨウ素）が 1/3 の試料から検出されていることである。岩手県内陸の住民（盛岡市・滝沢村在住）から採取された毛髪試料中にヨウ素が検出されるのは極めて稀である。この例の場合、濃度変化を見ると津波後 3 ヶ月間に濃度が低下し、その後元の濃度に戻っている。ヨウ素はほぼ海藻などの海産物からの摂取が主体と思われ、避難所生活時における食生活の変化とその後の食生活の回復の様子がそのまま反映されているもの考えられる。

一方、有害元素である As と Pb は、津波の 9〜10 ヵ月後に濃度がむしろ減少しており、Hg や Cr など、他の有害元素濃度には変化が見られない。この事実から、ヘドロ粉塵吸入に伴う有害元素体内摂取は、岩手県内の被災地においては深刻な問題とはならなかったことが分かる。県内の避難所はいずれも高台

にあり、従ってその周囲にはヘドロは堆積しておらず、有害な粉塵を吸入する危険から免れていたことが原因と思われる。

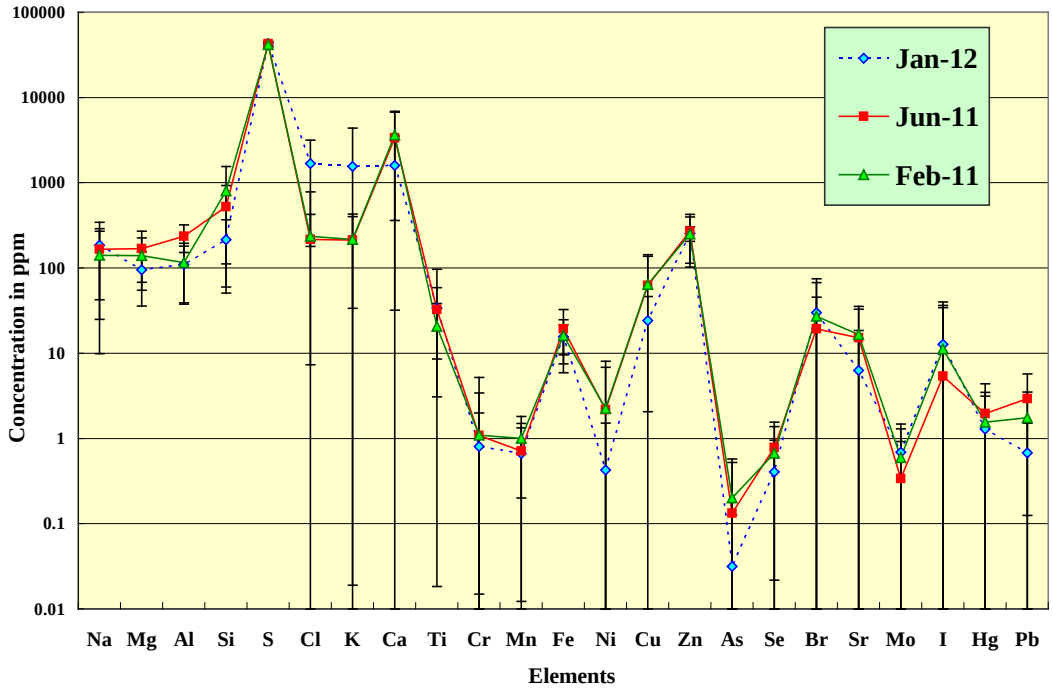

Fig. 5 Average values of elemental concentration among 29 hairs at the positions corresponding to the time of sampling, three months after the tsunami and one month before the tsunami. Error bars indicate standard deviations of elemental concentration for 29 hairs

謝辞

毛髪採取に協力していただいた被災者の方々、及び毛髪採取を行っていただいた関係者の方々に深く感謝いたします。また、共同利用の運営に携わる岩手医科大学、日本アイソトープ協会のスタッフの方々に謝意を表します。

参考文献

1. F. Baba, K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, and Y. Saitoh, “Analysis of Contaminated Sludge Deposited on the Land Attacked by Great Tsunami Following Tohoku Great Earthquake Disaster.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.22–1-2, 231-239, (2012)
2. 世良耕一郎、馬場史孝、後藤祥子、高橋千衣子、齋藤義弘、“3.11 巨大津波がもたらした重元素汚染された汚泥試料の分析”、NMCC 共同利用研究成果報，第 18 巻, 84-92　(2012)
3. K. Sera, S. Futatsugawa, and S. Matsuda, “Quantitative Analysis of Untreated Bio-samples.”, *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research*, B 150, 226-233　(1999)
4. K. Sera, S. Futatsugawa, and S. Murao, “Quantitative Analysis of Untreated Hair Samples for Monitoring Human Exposure to Heavy Metals.”, *Nucl. Instr. Meth. in Physics Research*, B 189, 174-179　(2002)
5. K. Sera, K. Terasaki, T. Sasaki, S. Goto, Y. Saitoh, and J. Itoh, “Studies on Changes of Elemental Concentration in a Human Body by Means of Analyses of Long Hairs on the Basis of the Standard-Free Method.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.19 –1, 2, 17-27 (2009)

6. K. Sera, J. Itoh, Y. Saitoh, and S. Futatsugawa, “Standard-free Method for Beard Samples of Very Small Quantity.”, *Int'l Journal of PIXE*,Vol.16 –3,4, 157-168 (2006)
7. 世良耕一郎、後藤祥子、齋藤義弘、寺崎一典、佐々木敏秋、伊藤じゅん、二ツ川章二、“微小ヒゲ試料・長い毛髪試料分析による体内元素濃度変化の測定”、NMCC 共同利用研究成果報文集　第十四巻, 242-255　(2008)
8. Sera, K., Sasaki, T., Itoh, J. and Saitoh, Y., “Studies on Daily Changes of Elemental Concentration in Beard Samples by Means of the Standard-free Method.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.16 –3,4, 169-182　(2006)
9. 松本洋平、本間 信、田浦慎太郎、世良耕一郎、高辻俊宏、“大気中浮遊物質に含まれる放射性同位元素と金属元素の関係”、 NMCC 共同利用研究成果報文集　第 16 巻, 138-151　(2010)
10. K. Sera, T. Sasaki, J. Itoh, and Y. Saitoh,. ”Studies on Daily Changes of Elemental Concentration in Beard Samples by Means of the Standard-free Method.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.16 –3,4　169-182　(2006)
11. K. Sera, T. Yanagisawa. H, Tsunoda, S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, Y, Saitoh, S. Suzuki, and H. Orihara, “Bio-PIXE at the Takizawa Facility. (Bio-PIXE with a Baby Cyclotron).”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 2-3, 325-330　(1992)
12. K. Sera, S. Futatsugawa and S. Murao, “Quantitative Analysis of Untreated Hair Samples for Monitoring Human Exposure to Heavy Metals.”, *Nucl. Inst. Meth. in Physics Research*, B189, 174-179　(2002)
13. K. Sera, S. Futatsugawa, S. Matsuda, and Y. Miura “Standard-free Method of Quantitative Analysis for Bio-samples.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 6-3,4, 467-481　(1996)
14. 西信雄、世良耕一郎、内村瑠里子、坂田清美、笠岡（坪山）宜代、髙田和子、吉村英一、 “岩手県沿岸部住民における東日本大震災前後の毛髪中微量元素濃度の変化に関する検討”、 厚生労働科学研究費補助金（厚生労働科学特別研究事業）分担研究報告書、(2012)
15. J. Itoh, S. Futatsugawa, Y. Saitoh, F. Ojima, and K. Sera, “Application of a Powdered-internal-standard Method to Plant and Seaweed Samples.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.15-1,2, 27-39　(2005)

Effects of heavy elements in the sludge conveyed by the 2011 tsunami on health of victims of the disaster

K. Sera[1], S. Goto[2], C. Takahashi[2], Y. Saitoh[2] and K. Yamauchi[3]

[1]Cyclotron Research Center, Iwate Medical University
Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

[2]Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

[3] Division of Pulmonary Medicine, Department of Internal Medicine,
Iwate Medical University
19-1 Uchimaru, Morioka, Iwate 020-8505, Japan

Abstract

The 2011 tsunami not only caused significant damage, but also drew a large amount of sludge from the bottom of the sea up to the land. This may have exerted negative effects on human health through inhalation of dried sludge. In order to evaluate changes in elemental concentrations in the body before and after the tsunami, we collected long hairs from victims of the disaster. As a result, no clear changes have been observed in heavy element concentrations before and after the tsunami. However, the concentration of some essential elements, such as Cu, Ca and Mg, showed a decreasing tendency after the tsunami. These observations may be due to drastic changes in living environment among the victims of the tsunami. In particular, the fact that eating habits of the affected people changed considerably after the tsunami has an effect on the elemental concentration in their body.