

## 過去 20 年間にわたり健常者より採取された毛髪試料の分析結果 - 1.元素濃度の長期的変動 -

世良耕一郎<sup>1</sup>、後藤祥子<sup>2</sup>、細川貴子<sup>2</sup>、高橋千衣子<sup>2</sup>、伊藤じゅん<sup>2</sup>、齋藤義弘<sup>2</sup>、  
二ツ川章二<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 岩手医科大学サイクロトロンセンター  
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

<sup>2</sup> 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  
020-0603 岩手県滝沢市留が森 348-58

<sup>3</sup> 日本アイソトープ協会  
113-8941 東京都文京区本駒込 2-28-45

### 1 はじめに

毛髪試料に対する無標準法<sup>1,2</sup>は 1995 年に開発され、世界各国の住民から採取された 3 万以上の毛髪分析に供されている。その中で 2 万を超える試料はアジアの重元素汚染地域住民から採取され、人体暴露の現状を把握し健康への影響を調べる目的で測定されたものである<sup>3-6</sup>。それらの研究は、実態把握の目的ばかりではなく、暴露経路を同定し新たな人的被害を防止するために有効な情報をもたらしている。その他の約 1 万試料は国内で採取され、主に体内元素濃度と種々の疾患発症との関係を調べる目的<sup>7,8</sup>、及び環境・栄養学の観点から分析されている<sup>9</sup>。

これらの研究を行う一方、健常日本人の毛髪が 1994 年から 20 年以上にわたり採取され分析が行われている。これらの毛髪は、年一回の施設公開時に来所した一般希望者から採取されたものに加え、大学生・高校生の施設見学时に採取されたものである。1996 年以降の試料は年齢・性別の記録が明確であり、これらの結果はコントロール値として、特定の疾患や重金属暴露と体内元素濃度との関係を調べる上で有用な情報となることが期待される。今回、1996 年以降の年齢・性別の明確なデータ 1256 人分の結果をまとめ、検討を行ったので報告を行う。

本研究においては、26 元素について濃度の各年度別・男女別の平均値をとり、20 年間の長期的変動について調べられた。以下に詳細な報告を行う。

### 2 実験方法

#### 2.1 試料採取

我々の研究所 NMCC（仁科記念サイクロトロンセンター）は 1991 年から 25 年間、毎年一日、一般の方々に公開されている。我々は 1994 年より、一般見学者の希望者から毛髪試料を採取し、毛髪中元

素濃度を分析し、その分析結果を、健常者平均値との違いを示すグラフ、濃度値に対するコメントを添えて各人に配布している。毛髪試料採取時には、個人が特定できない形で統計的データとして学術誌に報告する可能性のある旨、全員からコンセンストを頂いている。また、岩手医科大学第三学年医・歯学部の見学研修時、さらに県内の高校生の見学時にも希望者の毛髪を採取測定している。今回はそれらの試料の中で、現在の「毛髪試料に対する無標準法」が確立した 1996 年以降、性別・年齢の明確な 1256 試料（女性 861、男性 395）を選び、その結果を解析し検討を行った。年度別、年齢別の試料数を表 1 に示す。

表 1

Total : 1256																	Total number of samples (N) for Female = 861																					
																	Total Number of samples (N) for Male = 395																					
<b>By Fiscal Year</b>																																						
Fiscal years	96	97	98	99	00	01	02	03	04	05	06	07	08	09	10	11	12	13	14	15																		
N: Female	31	17	8	15	17	24	15	22	30	70	49	74	73	107	71	48	52	56	60	52																		
N: Male	16	13	12	17	19	12	11	9	13	17	12	38	34	46	33	22	19	18	20	14																		
<b>By Age</b>																																						
Age	0-10			11-20			21-30			31-40			41-50			51-60			61-70			71-80			80-													
N: Female	38			30			40			107			146			171			174			79			3													
N: Male	31			27			17			38			76			58			59			26			2													

## 2.2 試料調製

我々の無標準法は、試料調製を必要としない。毛髪試料は 3 cm 以上の毛髪を 6~8 本ターゲットホルダーに貼り付け、そのまま照射できる形に整えるのみで完了する。短い毛髪の場合、ホルダーの孔の上方に粘着テープを渡し、毛髪の端の 1 mm 程度を固定、上から垂れ下げる形に調製し、テープに当たらないようにビームを照射する。整髪料や汚れを取り除くための洗浄は、アセトンで良く拭くことにより行われる。この方法により毛髪からの元素の漏えいを防ぎ、洗浄効果も十分であることが確認されている<sup>2)</sup>。

## 2.3 照射・測定条件

島津製作所小型サイクロトロン MCY1750 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 などその位置・形状を調整され、真空散乱槽に導入される<sup>10)</sup>。発生した X 線は、2 台の Si (Li) 検出器により同時に測定される<sup>11)</sup>。検出器 1 には 300 μm Mylar 膜の X 線吸収体が装着され、K、Ca から重元素までの測定が行われ、検出器 2 には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 (2mmφ) 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 90 nA、4~8 分であった。しかし毛髪同士は、重なり合わないようある程度の間隔を保たれて取り付けられており、ビームの大半は試料を照射せず素通りする条件下での測定である。Fig.1 に試料の照射・測定条件を示す。

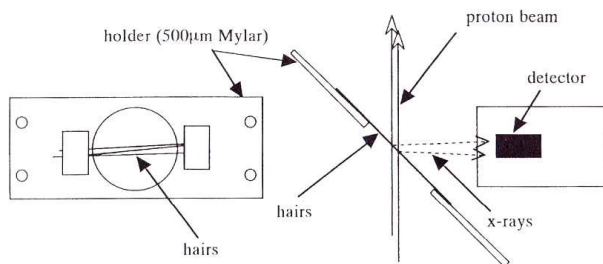


Fig.1 Schematic view of hairs on the holder, and the experimental setup for beam irradiation and measurement of X-rays.

### 2.4 無調製毛髪試料に対する定量分析

定量分析は、「毛髪試料に対する無標準法<sup>2)</sup>」を用いて行われた。スペクトルにおいて2.6~15.2 keVの間の全収量がとられ、その間の全ピーク収量が差し引かれ連続X線収量 $Y_{CX}$ が得られる。指標元素である亜鉛の $K\alpha$ ピークの収量 $Y_S$ の、 $Y_{CX}$ に対する比 $R_s = Y_S/Y_{CX}$ から、変換係数 $K_s$ を用いて亜鉛濃度 $C_s$ が得られる。他の元素の濃度は、亜鉛を内部標準とみなし、ピーク収量の比にX線発生断面積、検出効率、吸収体の透過率の比を考慮し、求められる<sup>2,12)</sup>。

### 3 結果

Fig.2, 3に毛髪中26元素濃度平均値の推移を、女性、男性に分けてそれぞれ示す。これらの図では、1996年から2015年までの推移を4期間(1996-2000、2001-2005、2006-2010、2011-2015)に分けて示している。Fig.2中、V、Mn、Cu、Nb、Mo濃度が、現在に向けて明確な増加傾向を示しているのに対し、Na、Siなどはやや減少傾向を示している。有害元素に関しては、Cr、As、Hgが増加傾向を示している。一方、Fig.3に示される男性には、明確な傾向は認められない。

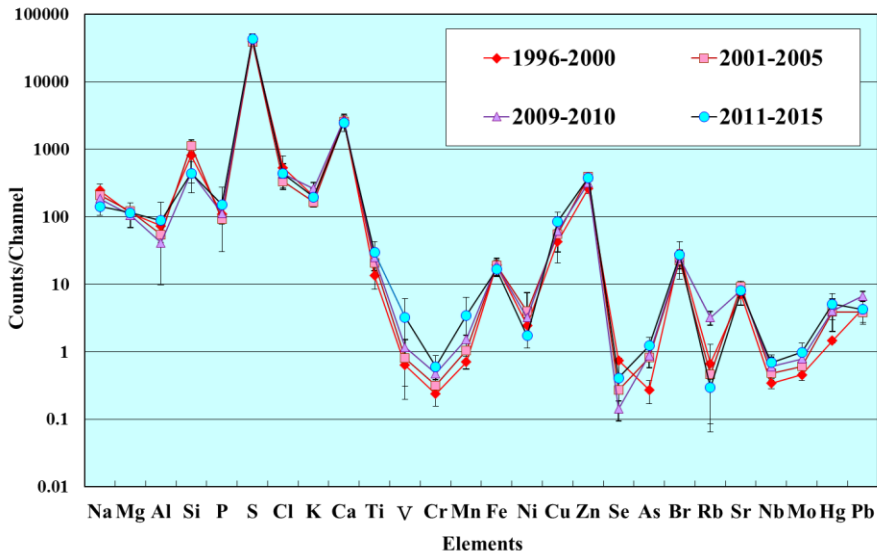


Fig.2 Changes of concentration of 26 elements in the hair taken from healthy females over 20 years.

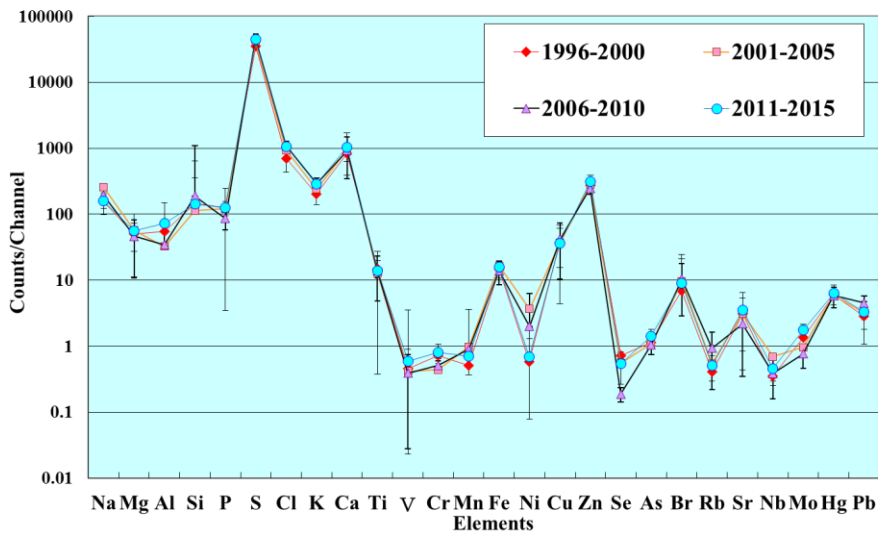


Fig.3 Same as Fig. 1 but for male.

全体の傾向が掴めたところで、次の段階として各元素濃度の 20 年間にわたる推移を詳細に見てみよう。Fig.4 には Ca 濃度の 1996 年から 2015 年までの年度毎の変化を示す。図が明確に示すように、毛髪中 Ca 濃度の平均値とその標準偏差は、女性に対して  $2620 \pm 1740$ 、男性に対して  $990 \pm 690$  と、女性が男性の 2.6 倍以上、圧倒的な性差があることがわかる。しかし 20 年間の推移としては、明確な変化の傾向は認められない。

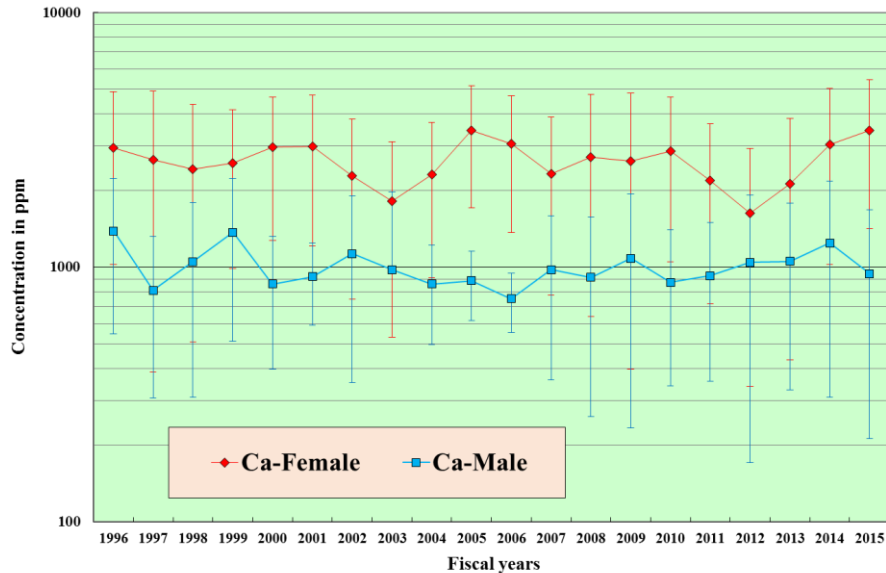


Fig.4 Changes in calcium concentration in the hair samples taken from healthy people over 20 years. Bars indicate standard deviations

Fig.5 には同様の比較を、髄液内の Ca イオンとのバランスが重要な意味を持つ  $^{13}\text{Mg}$  に対して示す。やはり性差が明確であり（女性： $111.4 \pm 72$ 、男性： $51.4 \pm 44$ ）女性は男性の 2 倍以上であるが、Ca 同様 20 年間の変化の傾向は明確ではない。Fig.6 に同様の比較を Fe に対して示す。性差は大きくはないが、（女性： $18.3 \pm 11.0$ 、男性： $14.3 \pm 6.4$ ）やはり女性が高い傾向が示されている。男性は 1996 年から 2011、2012 年にかけて急激に減少している。その後一時持ち直しているが、2012 年ころまでは大局的には減少傾向が続き、最後の 3 年間で再び多少増加に転じているように見える。女性の方は小さな変動は見られるが、長期的な変化の傾向は明確ではない。Fig.7-a には同じく銅の結果を示す。標準偏差は大きいですが、やはり女性が高い値を示す（女性： $68.3 \pm 110$ 、男性： $37.5 \pm 34$ ）。女性は現在に向かって徐々に増加する傾向を示しており、一方男性は 2005～2008 年までは上昇しその後若干減少傾向にある。その傾向は、5 年ごとの平均値を示した Fig.7-b で確認できる。Fig.8-a には Zn の結果を示す。Zn も女性の方が高い傾向を示し（女性： $343 \pm 269$ 、男性： $267 \pm 106$ ）、男女とも 2003 年ころまでは上昇、その後一時下降し再び上昇に転じている。その傾向は Fig.8-b に示されている。

次に主元素ではないが必須元素である Se の結果を fig.9-a に示す。Se はグルタチオンペルオキシダーゼの主成分であり、種々の疾患の予防に重要な役割を果たしている<sup>14,15</sup>。図からみられるように若干男性の方が高濃度であるが（女性： $0.32 \pm 0.54$ 、男性： $0.45 \pm 0.65$ ）、微量元素であるため標準偏差は非常に大きい。年度別の推移としては、2011 年までは減少を続け、2011 年以降上昇に転じている。その傾向は、Fig.9-b に明確に示されている。Fig.10 には Br の変動を示す。男性はゆるやかな減少傾向にあり、年度別の変動は小さい。それに対し女性は激しい年度別変動を示し、平均値も男性より高い。（女性： $25.3 \pm 32$ 、男性： $11.3 \pm 11.4$ 。）

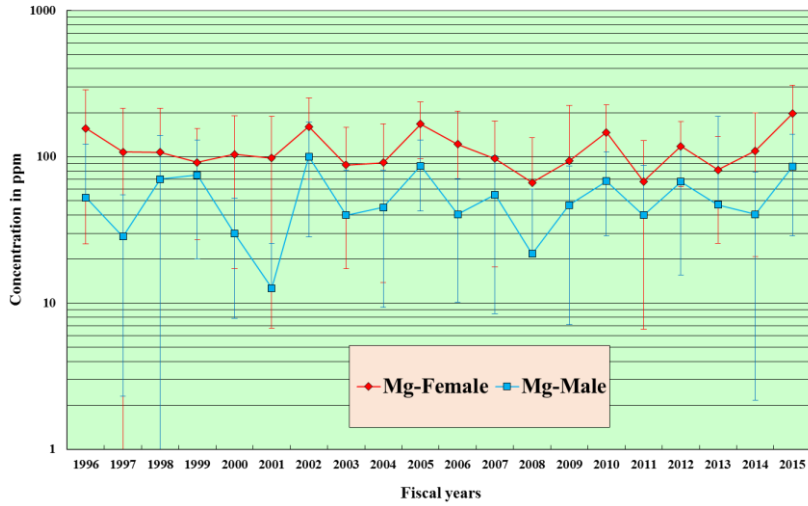


Fig.5 Same as Fig.4 but for magnesium.

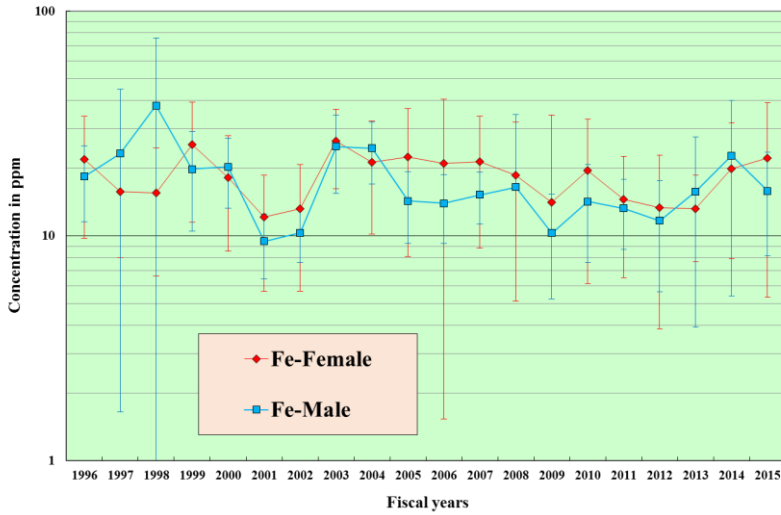


Fig.6 Same as Fig.4 but for iron.

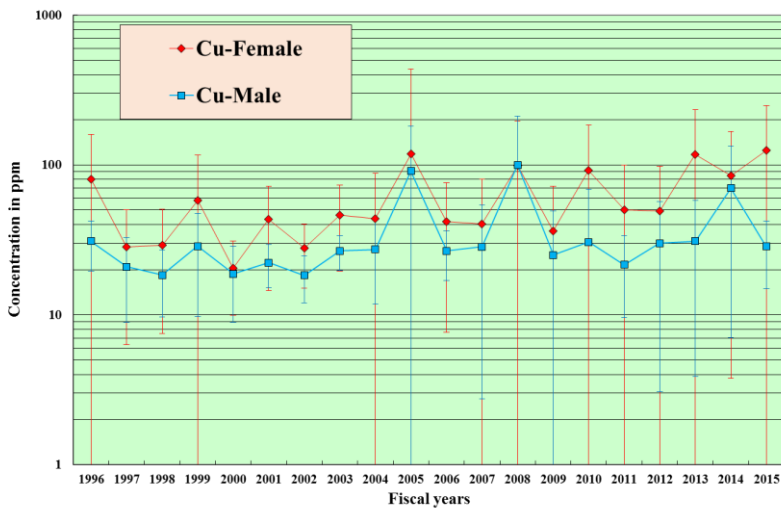


Fig.7-a Same as Fig.4 but for copper.

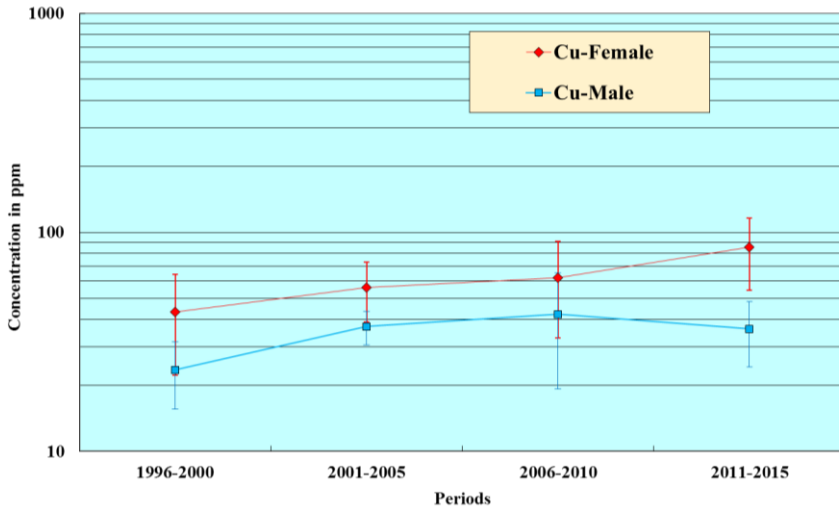


Fig.7-b Same as Fig.7-a but for average Cu concentration for every five years.

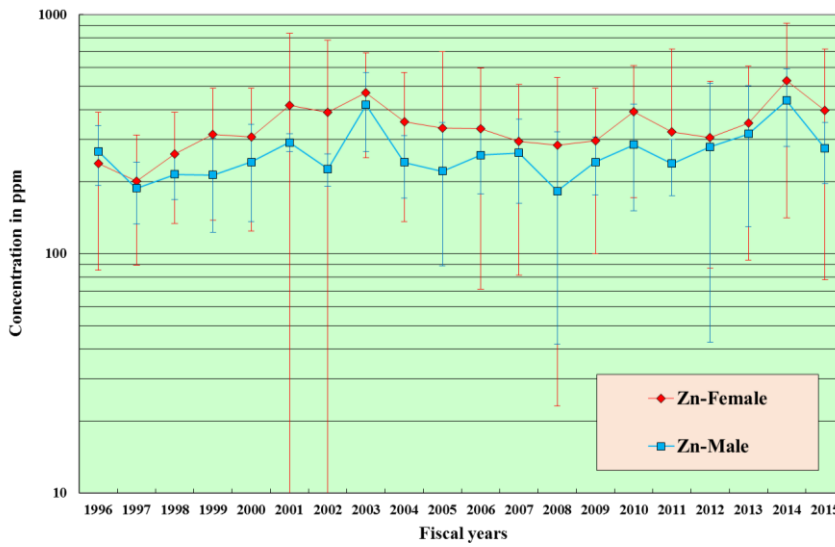


Fig.8-a Same as Fig.4 but for zinc.

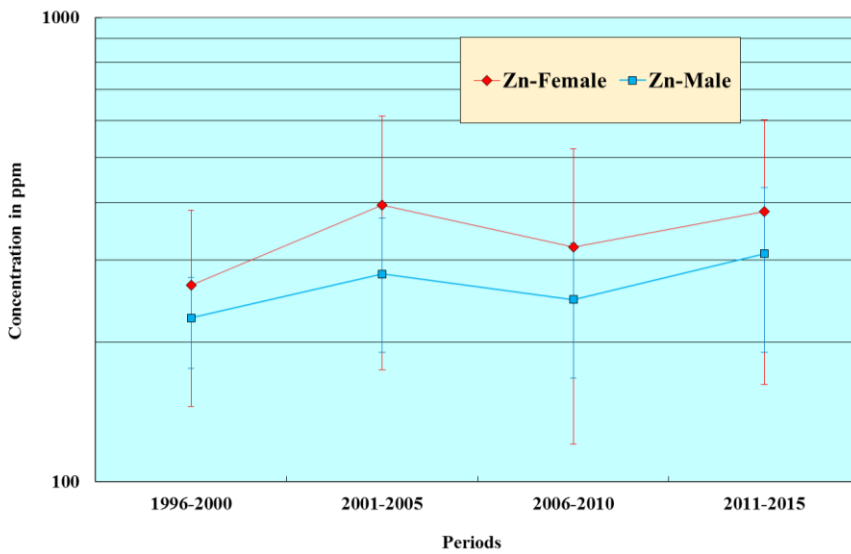


Fig.8-b Same as Fig.8-a but for average Zn concentration for every five years.

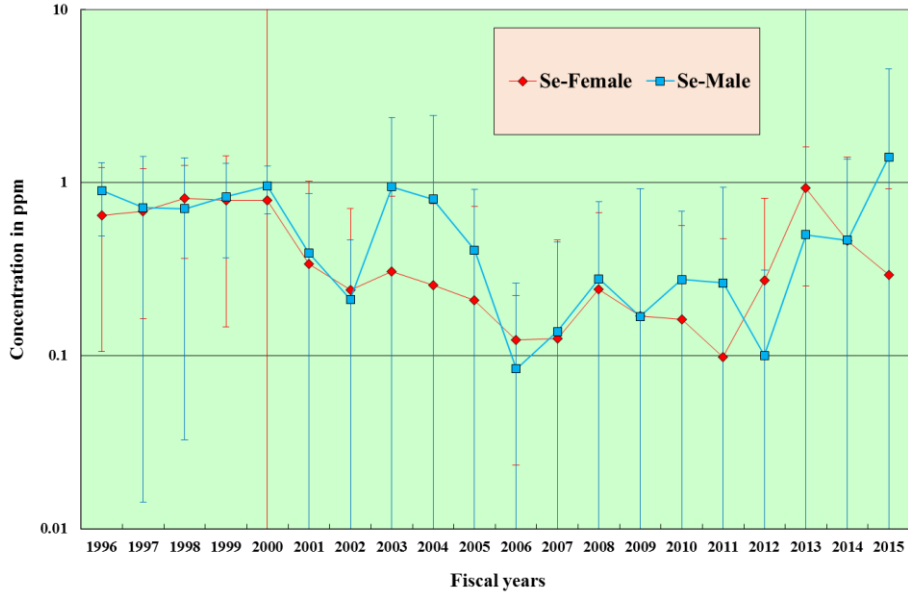


Fig.9 Same as Fig.4 but for selenium.

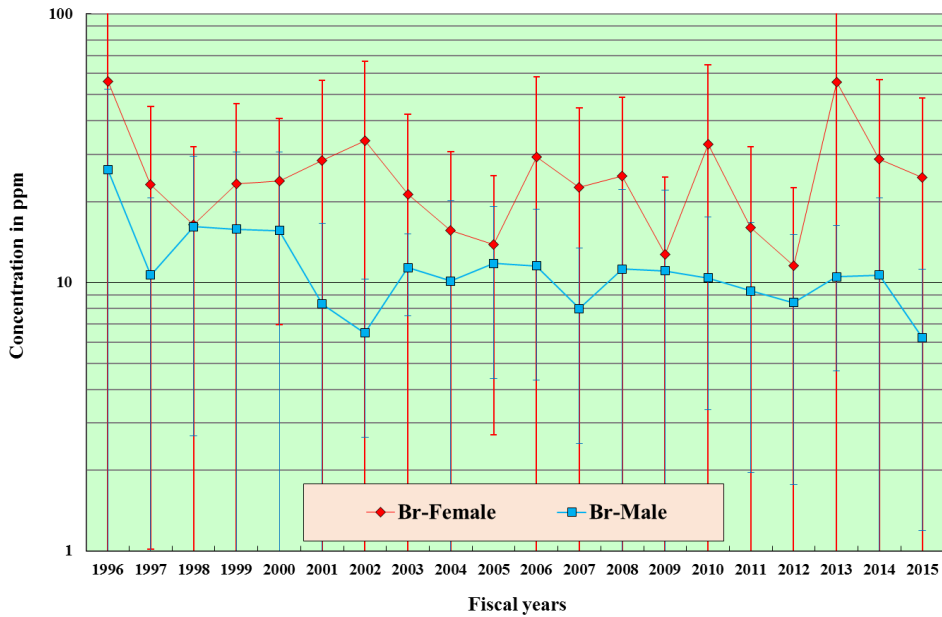


Fig.10 Same as Fig.4 but for bromine.

有害元素に関しては、先ず Hg の年度変化の推移を Fig.11-a に示す。やはり男性の方が高く（女性： $4.15 \pm 2.6$ 、男性： $5.51 \pm 4.4$ ）、この 20 年間で、男女ともに増加傾向が続く。その傾向は、5 年ごとの変化を示す Fig.11-b に明確に示されている。Fig.12 には Pb の結果を示す。有害元素では Pb のみが女性の方が高く（女性： $5.25 \pm 7.1$ 、男性： $3.86 \pm 3.7$ ）、20 年間の変動としては 2006、2007 年あたりにピークがあるが、長期的には明確な変動傾向は見られない。Fig.13 に As の結果を示す。やはり男性が若干高い傾向にあり（女性： $0.94 \pm 0.72$ 、男性： $0.98 \pm 0.83$ ）、現在に向けて増加が続いている。Fig.14 には Cr の結果を示す。やはり若干男性の方が高値で（女性： $0.46 \pm 0.51$ 、男性： $0.55 \pm 0.60$ ）年々増加傾向にあり、この 20 年間で男女とも濃度が倍以上に増加している。

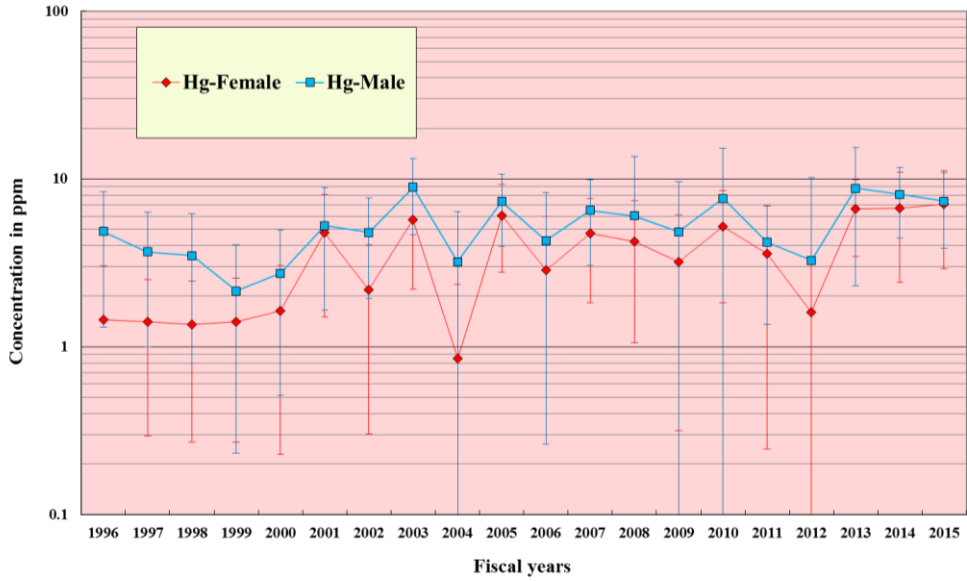


Fig.11-a. Same as Fig. 4 but for mercury.

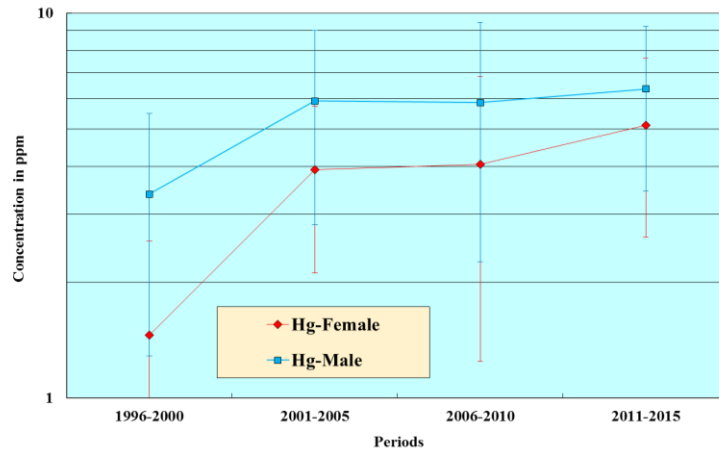


Fig.11-b Same as Fig.8-a but for average Zn concentration for every five years.

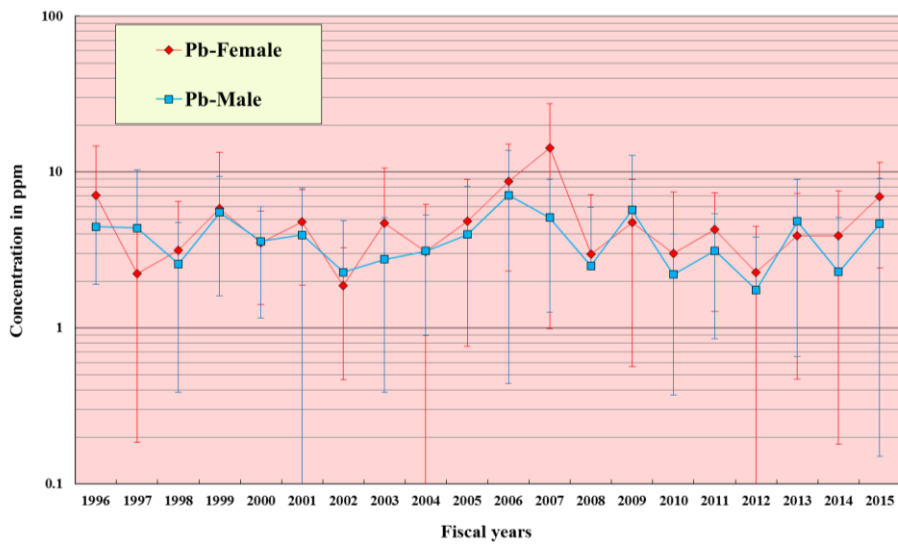


Fig.12. Same as Fig.4 but for lead.



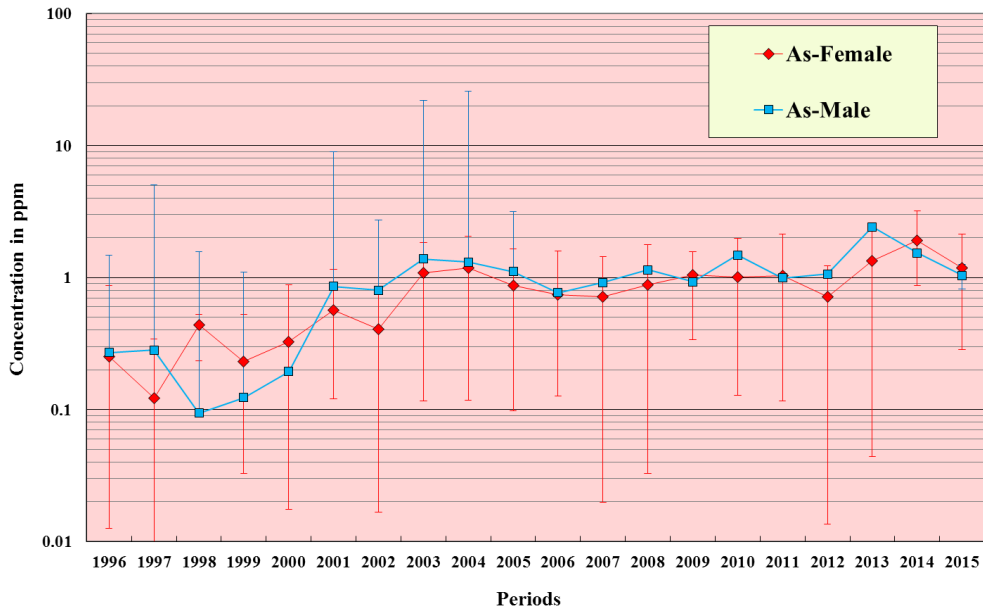


Fig.13. Same as Fig.4 but for arsenic.

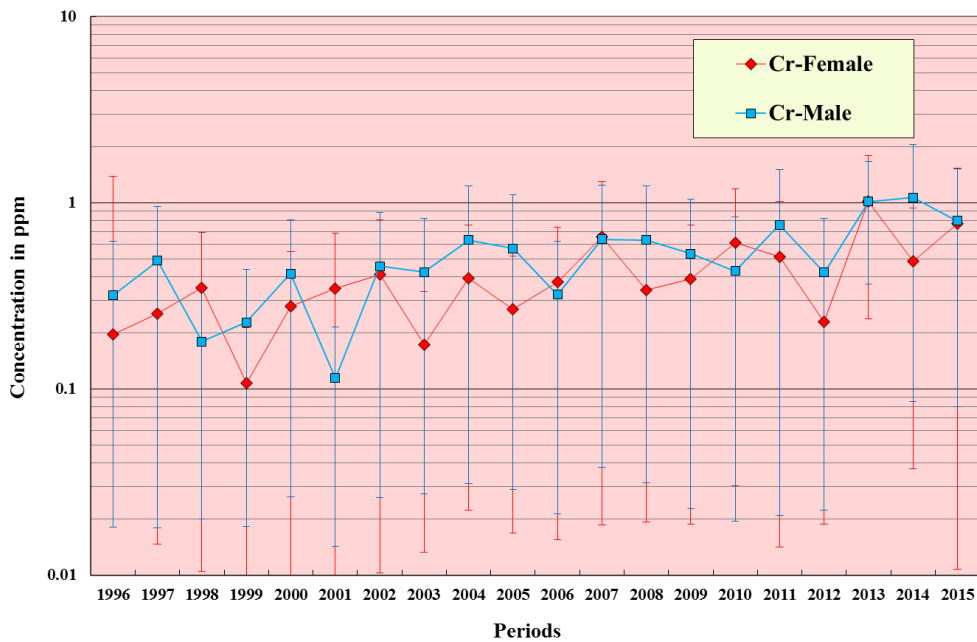


Fig.14. Same as Fig.4 but for chromium.

#### 4 議論

上述のように、我々は今までに重元素汚染された地域住民から採取された試料、また種々の疾患の患者から採取された試料を中心に、30000以上の毛髪試料の分析を行っている。それらの研究に際し、有害元素による人体曝露の実態を把握するために、また種々の疾患と体内元素濃度の関係を調べるためにも、健常者の control 値を確立することが非常に重要なこととなる。しかし体内元素濃度とそれを反映する毛髪中元素濃度は、性差、年齢、そして生活環境により大きく異なることが知られており、可能な

限り多くの健常者試料を男女、幅広い年齢層、異なる生活環境にわたり採取し、分析値を得ることが重要な意味を持つ。

本研究により、健常者から 20 年間にわたり採取された毛髪試料中元素濃度は、多くの元素に対して明確な長期的変動を示していることが分かった。しかし Ca、Mg に関しては、Fig.4、5 に示すようにほぼ一定値が保たれている。一方 Fe に関しては、Fig.6 に見られるように、1996 年から 2012 年にかけて減少する傾向が見られ、その後一時増加し 2012 年ころまではなだらかに減少し、それ以降、若干増加に転じている。このような必須元素の長期的変動は、我が国の 20 年間にわたる食物中元素濃度の変化を反映しているものと思われる。

先ず農作物に関しては、我々は今までに系統的に濃度変動を観察し、山菜との比較を行ってきた<sup>16,17</sup>。またそれらの生育土中元素濃度との関係も調べられ、その結果現在の農作物中のミネラル不足は、農地の土壌中ミネラル不足を反映していること、その原因は、三大栄養素のみ配合されている化学肥料に依存した農法にあることが分かった。一方自然土は、植物の葉や茎が土に還り、漏出する分は雨水から供給され、長期間にわたりミネラル濃度が一定に保たれている<sup>17</sup>。特に鉄濃度に関しては、従来その供給源であった緑黄色野菜中の Fe 濃度が近年減少しており、それが日本人体内鉄濃度の減少につながっているものと思われる。しかし近年、有機農法などの従来の農耕法も復活し、その影響もあり、Fig.6 から体内鉄濃度の減少には歯止めがかかっているようにも見受けられる。

我々は、現在のミネラル不足の農地にミネラル水を供給し、それが農作物の滋養や収穫量に与える影響を調べ、昨年の本報文集において報告を行った<sup>18,19</sup>。その結果、農作物中のミネラル濃度は改善され、米や大豆などは単位面積当たりの収穫量が数倍に増加するなど、ミネラル投与による大きな改善が認められた。農地へのミネラル供給や従来の有機農法に戻すなどの試みは各地で行われ、農作物中のミネラル濃度は現在回復傾向にある。それが、Fig.7、8 で観られる Cu、Zn の増加傾向にも反映されている可能性がある。

一方では、ミネラルの大きな供給源である海産物中のミネラル・重金属濃度は、近年増加を続けている<sup>20</sup>。この事実は、近海における重金属汚染の進行に影響を受けているものと推察される<sup>21</sup>。その源は河川水や地下水などの水系汚染であり、その原因は温泉水<sup>22,23</sup>、鉱山廃坑からの浸出水<sup>24</sup>などである。我々の研究などにより、近年の港湾における海底堆積物は極度に重金属汚染されており、特に我が国においては深刻であることが確認されている。特に汽水域で養殖されているホタテ、カキ、ホヤなど、またコンブ、ワカメなどの海藻にはその影響が出やすく、高濃度の As、Cd などが検出されている<sup>20</sup>。

このような状況に追い打ちをかけたのが、2011 年 3 月 11 日に三陸海岸を襲った大津波である。この津波は、海底に沈んでいた多量の重金属を含むヘドロを陸地や汽水域に運び上げた。実際に、陸地や干潟に運び上げられたヘドロ中には、多量の重金属が含まれていたことが、その後の調査研究で確認されている<sup>25,26</sup>。さらにそれらのヘドロ中の重金属濃度は、一年後には数分の一に減少していることも確認された<sup>27</sup>。しかし干潟を中心とした汽水域は多様な海洋生態系の温床であり、複雑な海洋食物連鎖の中に重金属が入り込んでいることが当然予想される。我々は食物連鎖の中核をなす微小甲殻類に対する定量分析法を確立し、1000 を超える試料の測定を行った結果、Pb が生食食物連鎖中に、As が腐食食物連鎖中に多く浸透していることが確認された<sup>28</sup>。多くの日本人はこれらの海産物を多量に食しており、これら海産物中には必須・有害元素ともに多量に含まれ、ミネラル供給源となっている。必須元素においては、農作物中の不足による体内濃度低下の要因を、海産物摂取により補っている状況であることが予想される。

過剰摂取の場合は有害元素でもあるが、近年必須元素として注目されている Se は、グルタチオンペルオキシダーゼの活性化を通して急性心筋梗塞のリスクを減少させ<sup>14</sup>、泌尿器系癌の発症を抑制し<sup>29</sup>、また悪性リンパ腫の発症を抑える<sup>15</sup>などの効用のあることが、我々の参加した研究により明らかになっている。Fig.9 に見られるように、その濃度は 2011 年までは減少傾向にあったが、その後の 3 年間は増加に転じているように見受けられる。Se はニンニクなどの農作物からの接種も重要なルートだが<sup>29</sup>、日

本人の場合は海藻などの海産物からの接種も大きな割合を占めると思われる。Se は 3.11 津波により多量に汽水域に持ち上げられたことが確認されており<sup>25,26</sup>、その後ホタテやカキ、ワカメなどの海産物に取り込まれ、それらの接種が 2012 年以降の体内濃度の増加に反映している可能性も考えられる。今回の分析試料提供者の大半は岩手県内陸の住民たちであり、三陸の海産物を多く食している。結果の図をその観点から観れば、Se に加え多くの有害元素濃度が 2012 年以降増加傾向にあるようにも見受けられる。

Br は人工透析により血液から取り除かれてしまい、臭素不足は成長障害をもたらすことが分かっている<sup>30,8</sup>。また、輸入食品の臭化メチルによる燻蒸などにも使われ、その弊害も問題となることがある。我々の以前の研究により、盛岡市在住の 3 人の女性の長い毛髪を 1mm 毎に分析し、長期的変動を調べたところ、臭素濃度が冬に上昇し夏に減少する明確な季節変動を示し、その変動幅が 5 倍ほどあることが分かった<sup>31</sup>。そしてそれは、中国大陸からの PM2.5 エアロゾル中の臭素濃度の季節変動<sup>32</sup>に対応していることが確認された。Fig.10 によると、女性の毛髪中臭素濃度は年度により大きく変動し、大陸からの粒子中の臭素濃度が年度により大きく変動する事実を反映しているように思われる。しかし、男性の方はその変動が殆ど見られず、肺からの臭素の取り込みや、血液から毛髪に移行する過程において、その機構に対する何らかの性ホルモンの影響があるように思われる。

一方有害元素に関しては、Fig.11 から 14 に見られるように Pb 以外は現在に向けて明確な上昇傾向を示している。環境中有害元素、それに伴う食品中有害元素濃度が増加傾向にあることを反映しているものと思われる。温泉水や鉱山廃坑・産業廃棄物処理場などからの浸出水による、河川水をはじめとする水系汚染、それに伴う沿岸海域の汚染により、農作物・海産物中の有害元素濃度の上昇を反映している可能性がある。一方 Pb に対しては、わが国では 1975 年にガソリンの無鉛化が完了し、大気環境経由の食物汚染、呼気からの吸入が改善されたため、有害元素の中では唯一、20 年間一定値を保っているものと推察される。

本研究において、健常者から採取された 1256 の毛髪試料の分析結果が検討された。Fig.2、3 に示すように、毛髪中元素濃度には明確な性差があるばかりではなく、その年度変動や長期的変化にも性差が強く反映していることが分かった。加齢変化に伴う変動とその性差に関しては、次報(本報文集に掲載)において詳細に検討が行われる。

## 謝辞

毛髪試料を提供された一般の方々に感謝いたします。共同利用の運営に携わる他の岩手医科大学サイクロトロンセンター、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のスタッフの方々に謝意を表します。

## 参考文献

1. K. Sera, S. Futatsugawa, K. 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)
2. K. Sera, S. Futatsugawa and K. Matsuda, "Quantitative Analysis of Untreated Bio-samples.", *Nucl. Instr. Meth.*, B150, 226-233, (1999)
3. E. Clemente, K. Sera, S. Futatsugawa and S. Murao, "PIXE Analysis of Hair Samples from Artisanal Mining Communities in the Acupan Region, Benguet, Philippines.", *Nucl. Instr. Meth.*, B219-220, 161-165, (2004)
4. S. Murao, K. Sera, B. Tumenbayar, N. Sajiaa, and J. Uramгаа, "High Level of Arsenic Reaffirmed for Human Hairs in Mongolia.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.21-3, 4, 119-124, (2011)

5. Md. Shafiqul Islam, K. Sera, T. Takatsuji, Md. Anwar Hossain, T. Nakamura, "Estimation of Hair Arsenic and Statistical Nature of Arsenicosis in Highly Arsenic Exposed Bangladeshi Village in Comilla District of Bangladesh.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.21-3, 4, 101-118, (2011)
6. J. Noda, R. Hakamada, K. Suzuki, T. Miura and K. Sera, "Environmental Contamination by Arsenic And Lead in Some Rural Villages In India.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.25-1, 2, 29-37, (2015)
7. 内村瑠里子、山崎 健、村上秀樹、吉田知史、嶋村 正、世良耕一郎、"脊柱側弯症術後の血液・毛髪内チタン濃度に関する検討", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 17 巻, 252-259, (2011)
8. 山谷金光、坪井 滋、齋藤久夫、他、"健常人及び血液透析患者における血中及び毛髪中の各微量金属含量の関連性に関する検討", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 20 巻, 109-114, (2013)
9. 千葉啓子、岩根敦子、立身政信、佐藤 洋、山内 博、世良耕一郎、"PIXE による温泉水成分および毛髪中元素濃度の分析", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 8 巻, 162-165, (2001)
10. K. Sera, T. Yanagisawa, H. Tsunoda, S. Futatsugawa, S. Hatakeyama, S. Suzuki, and H. Orihara, "The Takizawa PIXE Facility Combined with a Baby Cyclotron for Positron Nuclear Medicine.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 2-1, 47-55, (1992)
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. Muraio, "Quantitative Analysis of Untreated Hair Samples for Monitoring Human Exposure to Heavy Metals.", *Nucl. Instr. Meth.*, B189, 174-179, (2002)
13. N. Sato, K. Kuroda, M. Suzuki, K. Sera, and A. Ogawa, "Changes in Trace Elements of Cerebrospinal Fluid after Subarachnoid Hemorrhage, and Effects of Trace Elements on Vasospasm.", *Nucl. Instr. Meth.*, B 150, 214-217, (1999)
14. Y. Miura, C. Itoh, T. Miyakawa, K. Nakai, K., Hiramori, K. Sera, and S. Futatsugawa, "Simultaneous Determinations of Trace Elements in Sera of Patients with Acute Myocardial Infarction by PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 3-4, 295-300, (1993)
15. 梶山 巖、伊藤伸彦、江尻 剛、社領 聡、古川義宣、二ツ川章二、世良耕一郎、"リンパ腫と食餌中 Se 含量に関する研究 (第一報)", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第二巻, 175-178, (1994)
16. J. Itoh, Y. Saitoh, S. Futatsugawa and K. Sera, "Elemental Analysis of Vegetables on the Market - Comparison with wild plants.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.16-3,4, 209-220, (2006)
17. J. Itoh, Y. Saitoh, S. Futatsugawa, K. Ishii and K. Sera, "Elemental Analysis of Edible Plants in natural Environment. - Trace elements in wild plants-.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.17, No.2,3, 119-127, (2007)
18. 佐々木敏秋、世良耕一郎、後藤祥子、細川貴子、齋藤義弘、松本義雄、"ミネラル水の噴霧による農作物の収穫・ミネラル含量への影響", NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 21 巻, 175-178, (2014)
19. T. Sasaki, K. Sera, S. Goto, T. Hosokawa, Y. Saito and Y. Matsumoto, "Effects of Spraying Mineral Water onto Farm Products on Their Growth and Nutrition.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.25, No.1,2, 39-52, (2015)
20. 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)
21. H. M. Kabir, T. Narusawa, F. Nishiyama and K. Sumi, "Elemental Analysis of Uranouchi Bay Seabed Sludge Using PIXE.", *Int'l Journal of PIXE*, Vol.16-3,4, 241-253 (2006)

22. H. Satoh, D. Ishiyama, T. Mizuta and K. Sera. “Characteristics of Thermal Water and Chemical Sediments around Ohbuki Spring and Yukawa Stream from Tamagawa Hot Spring, Akita Prefecture”, NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 12 卷, 212-216, (2005)
23. H. Satoh, D. Ishiyama, T. Mizuta, O. Nishikawa, K. Sera and Y. Enda. “Chemistry of Thermal Water and River Water in the Western Area of the Hachimantai, Akita Prefecture, Japan”, NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 13 卷, 128-134, (2006)
24. H. Satoh, D. Ishiyama, T. Mizuta, Y. Enda and K. Sera. “Variation of Chemical Composition and Style of Transportation of Elements in Drainage Water-Bearing River Water from An Abandoned Mine, NMCC 共同利用研究成果報文集, 第 14 卷, 183-189, (2008)
25. 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, (2008)
26. K. Sera, F. Baba, S. Goto, C. Takahashi, Y. Saitoh and M. Matsumasa, “Analysis of Plants and Sediment from the Tidelands of the Coastal Regions of the Tohoku District Following the 2011 Tsunami.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.22-1,2, 139-147, (2011)
27. K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, Y. Saitoh and K. Yamauchi, “Effects of Heavy Elements in 1 the Sludge Conveyed by the 2011 Tsunami on Human Health and the Recovery of the Marine Ecosystem.”. *Nucl. Instr. Meth.*, B 318, 76-82, (2014)
28. K. Sera, S. Goto, C. Takahashi, Y. Saitoh, K. Kinoshita, and M. Matsumasa, “Quantitative Analysis of Small Bio-Samples of nearly 1 µg.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol. 24, No. 1, 2, 161-175, (2014)
29. Y. Miura, K. Nakai, A. Suwabe, T. Fujioka, K. Matsuda, and K. Sera, “Selenium Concentrations in Renal Cell Carcinoma.”, *Int'l Journal of PIXE*, Vol.12-3,4, 145-150, (2002)
30. Y. Miura, K. Nakai and K. Sera, “Trace Elements in Renal Disease and Hemodialysis”, *Nucl. Instr. Meth.*, B189, 443-449, (2002)
31. 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)
32. 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)

Elemental concentration in the hair taken from healthy people  
for the past 20 years  
-1. Long-term changes over 20 years -

K. Sera<sup>1</sup>,  
S. Goto<sup>2</sup>, T. Hosokawa<sup>2</sup>, C. Takahashi<sup>2</sup>, J. Itoh<sup>2</sup>, Y. Saitoh<sup>2</sup> and S. Futatsugawa<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Cyclotron Research Center, Iwate Medical University  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

<sup>2</sup>Nishina Memorial Cyclotron Center, Japan Radioisotope Association  
348-58 Tomegamori, Takizawa, Iwate 020-0603, Japan

<sup>3</sup>Japan Radioisotope Association  
2-28-45 Honkomagome, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8941, Japan

## Abstract

We developed a standard-free method for untreated hairs and the method has been applied to quantitative analysis of more than 30000 hairs taken from the people concerned in order to evaluate exposure to some toxic elements and intakes of essential elements. Besides these analyses, we have measured nearly 2000 hairs collected from healthy people in Japan over the past 20 years. It was found that concentrations of some elements, such as vanadium, chromium, manganese, copper and mercury, keep increasing up to the present. Such tendencies were particularly notable for female, while not clearly observed for male. Concentrations of some essential elements, such as calcium, magnesium and zinc, show no obvious long-term variations. On the other hand, iron and selenium show slightly decreasing tendencies. With regard to toxic elements, it was found that arsenic, chromium and mercury are tending to increase every year.