

# 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

井上一彦<sup>1</sup>、山口一郎<sup>2</sup>、村田貴俊<sup>1</sup>、今井 奨<sup>1</sup>、野村義明<sup>1</sup>、花田信弘<sup>1</sup> 佐藤 勉<sup>3</sup>、

櫻井四郎<sup>4</sup>

<sup>1</sup> 鶴見大学歯学部探索歯学講座  
230-8501 神奈川県横浜市鶴見区鶴見 2-1-3

<sup>2</sup> 国立保健医療科学院生活環境研究部  
351-0197 埼玉県和光市南 2-3-6

<sup>3</sup> 日本歯科大学東京短期大  
102-0071 東京都千代田区富士見 2-3-16

<sup>4</sup> 大妻女子大学社会情報学部  
206-8540 東京都多摩市唐木田 2-7-1

## 1 緒言

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エネルギーは、 $^{133}\text{Xe}$ が11 EBq（原子力保安院算出）、 $^{131}\text{I}$ が0.16 EBq（E:  $10^{18}$ ）、 $^{137}\text{Cs}$ が15 PBq（P:  $10^{15}$ ）、 $^{90}\text{Sr}$ が140 TBq（T:  $10^{12}$ ）、 $^{239}\text{Pu}$ が3.2 GBq（G:  $10^9$ ）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。 $^{90}\text{Sr}$ 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ヒ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り、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るために研究プロジェクトを遂行中である（JSPS KAKENHI Grant Number 15K11435）。

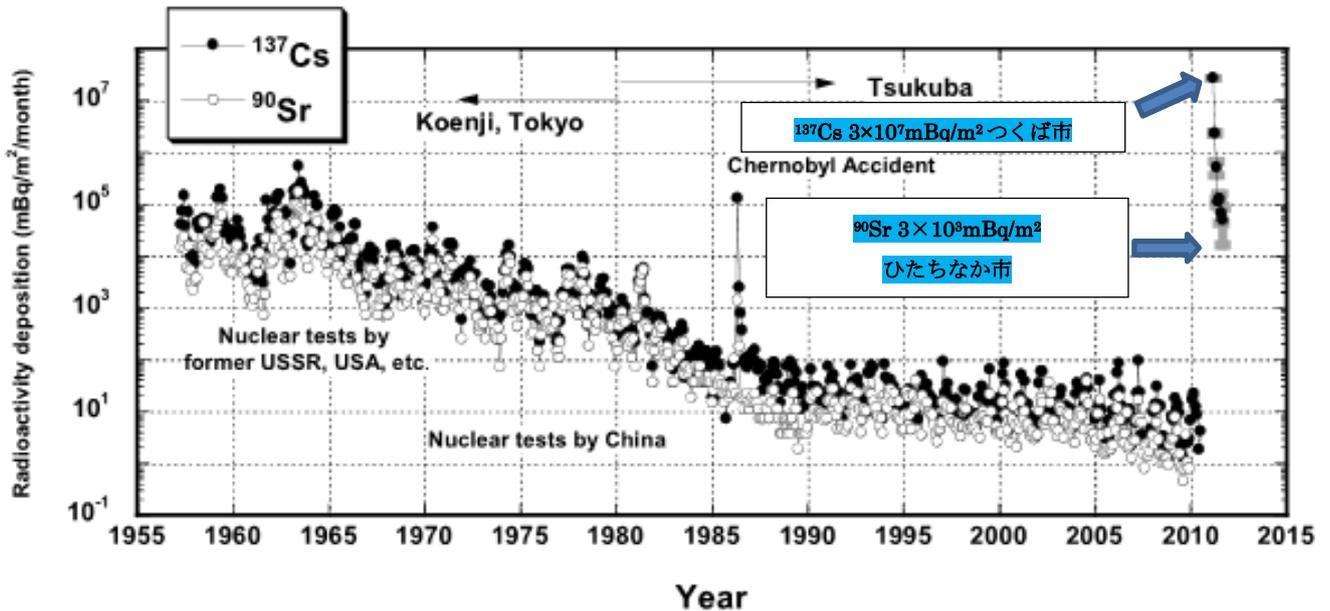


図1 福島原発事故以前と以後での人工放射性核種の月間降下量の変動<sup>1)</sup>

2011年3月以降の<sup>137</sup>Cs月間降下量は暫定値

## 2 目的

核実験等や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 (<sup>90</sup>Sr、<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Pu) の蓄積を調査している<sup>4)</sup> (表1、生年1999~2009年、1898本、2017年9月30日現在)。今回は多量に蓄積残存している<sup>90</sup>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比較検討することを目的とする。

表1 日本全国からの乳歯の収集状況(単位本数, 2017年9月30日現在)

秋田	20	愛知	90
宮城	10	大阪	70
山形	50	広島	10
福島	3	愛媛	422
東京	570	福岡	10
埼玉	350	熊本	106
神奈川	30	鹿児島	70
千葉	43	沖縄	12
静岡	32	総合計	1898

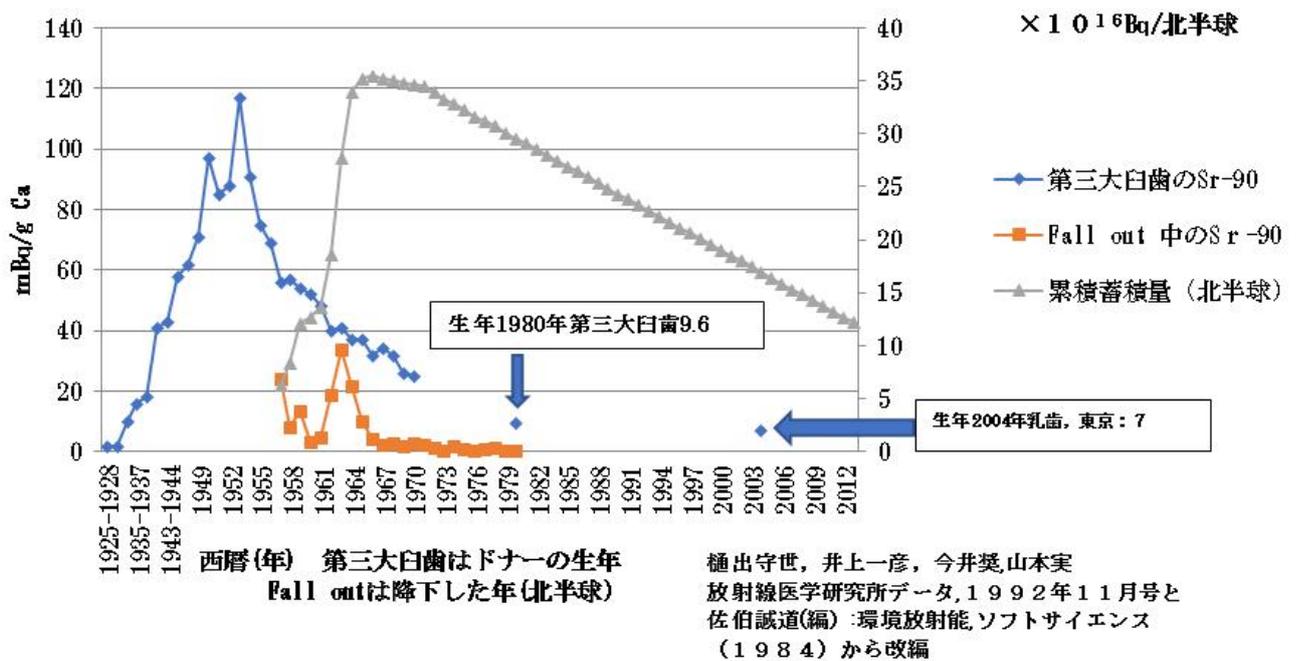


図2 <sup>90</sup>Srの年間降下量、蓄積量と第三大臼歯中の<sup>90</sup>Sr

### 3 対象と方法

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)。今回は①埼玉県(2003年生年、35本)、②東京都(2003年生年、57本)、③愛媛県新居浜市(2003年生年、45本)、④愛媛県八幡浜市(2003年生年、29本)、⑤埼玉県(2004年生年、34本)、⑥東京都(2004年生年、54本)、⑦愛媛県新居浜市(2004年生年、48本)⑧愛媛県八幡浜市(2004年生年、18本)の乳歯8試料と、⑩成人第三大臼歯(1980年生年、埼玉13本)の1試料と合計9試料について測定調査した。<sup>90</sup>Sr、<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>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>。乳歯試料の一部(生年不詳、静岡)の安定ストロンチウムのPIXE分析と化学分析の比較も実施した(表3)。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 結果および考察

<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Pu：日本の乳歯試料では、すべての試料において0.4 μBq/g・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<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>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 μBq/g・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 mBq/g・Caをピークに0.5~7.7 μBq/g・Caの<sup>239</sup>Puが検出されている(図4)<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、<sup>239</sup>Puが認められている(図4)<sup>6)</sup>。日本においては、日本人骨からは<sup>239</sup>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、図4)。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<sup>238</sup>Pu、<sup>239+240</sup>Puの蓄積が認められる可能性もある。

<sup>90</sup>Sr：⑥東京都(生年2004年)から6.8 mBq/g・Ca、⑨埼玉県成人第三大臼歯(生年1980年)9.6 mBq/g・Caの<sup>90</sup>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<sup>90</sup>Srが17 mBq/g・Ca検出されている(図2)<sup>4)</sup>。土壌中に<sup>90</sup>Srが核実験の影響で蓄積されていることから(図2)、

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、4)、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  $9.6 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  (生年 1980 年) へ減衰していた (図 3、4)。

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。表 3 に PIXE 分析と化学分析の比較を示した (乳歯年齢不詳サンプル)。PIXE 分析の簡便で少量試料で安定同位体の分析精度が確認された。

**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。

**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。

#### 4 結論

原発事故の直前での乳歯における  $^{90}\text{Sr}$  量は  $7 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  程度 (生年 2004 年、児童、東京) あり、以前の値と比較し減衰していることが示唆された。 $^{90}\text{Sr}$  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。現時点で、日本においては乳歯および第三大臼歯で  $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$  の蓄積は検出限界未満であった。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。

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	$^{238}\text{Pu}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$
①埼玉県 (生年 2003 年、35 本)	*	*	*
②東京都 (生年 2003 年、57 本)	*	*	*
③愛媛県新居浜市 (生年 2003 年、45 本)	*	*	*
④愛媛県八幡浜市 (生年 2003 年、29 本)	未測定	未測定	*
⑤埼玉県 (生年 2004 年、34 本)	*	*	*
⑥東京都 (生年 2004 年、54 本)	*	*	6.8 (基準日、2016 年 4 月 19 日)
⑦愛媛県新居浜市 (生年 2004 年、48 本)	*	*	*
⑧愛媛県八幡浜市 (生年 2004 年、18 本)	*	*	*
⑨埼玉県成人第三大臼歯 (生年 1980 年、13 本)	*	*	9.6 (基準日、2016 年 4 月 19 日)

①~⑧: 乳歯、⑨: 第三大臼歯、単位:  $\text{mBq/gCa}$   
\*検出限界以下 (2016 年 5 月 6 日測定)



図3 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  
{生年1957-1967年、1968年、1993年、2003年、2013年(推定)、2004年}

**Plutonium from Above-Ground Nuclear Tests in Milk Teeth: Investigation of Placental Transfer in Children Born between 1951 and 1955 in Switzerland**

Pascal Froidevaux<sup>1</sup> and Max Haldimann<sup>2</sup>

<sup>1</sup>University Institute of Radiation Physics, University Hospital Center, University of Lausanne, Lausanne, Switzerland; <sup>2</sup>Consumer Protection, Chemical Risks, Federal Office of Public Health, Bern, Switzerland

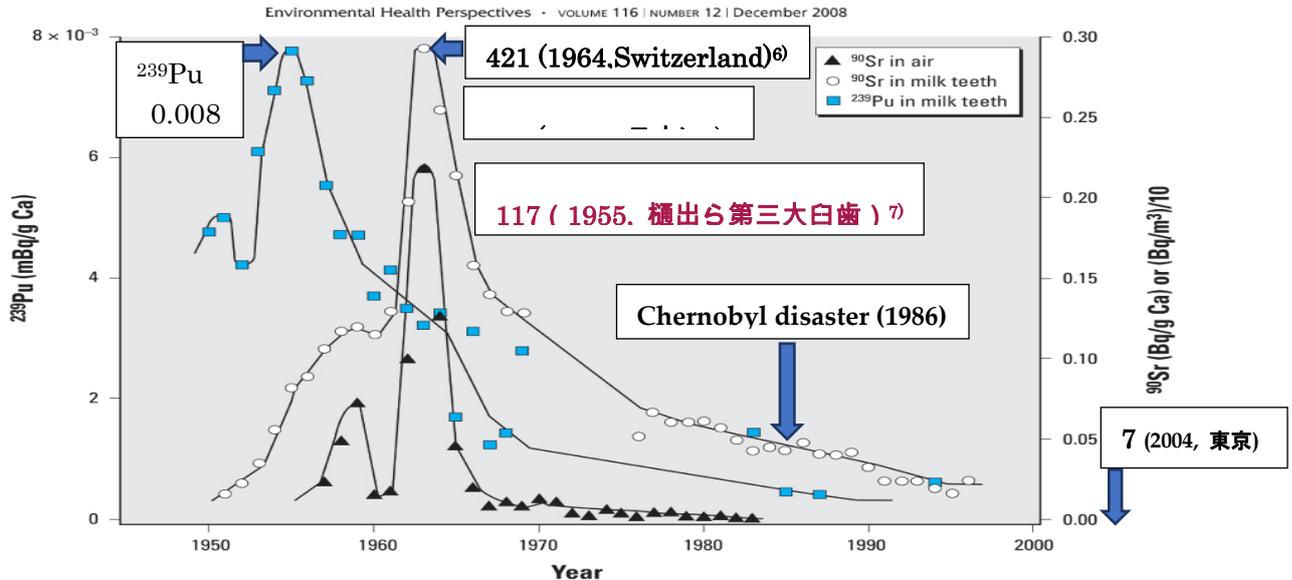


Figure 1. Activities of <sup>90</sup>Sr and <sup>239</sup>Pu in milk teeth as a function of the year of birth. Nuclear bomb tests conducted between 1955 and 1963 produced large amounts of <sup>239</sup>Pu and <sup>90</sup>Sr in air. <sup>239</sup>Pu activities in the air can be deduced from <sup>90</sup>Sr in the air [data from UNSCEAR (2000) for the Northern Hemisphere] with a factor of 1/95.

図4<sup>5,6)</sup>

表3 PIXE 分析と化学分析の比較 (乳歯年齢不詳サンプル)

	Ca (ppm)	安定ストロンチウム (ppm)
PIXE	395,187	122
化学分析	371,700	150 (計測分析センター)
$^{90}\text{Sr}$ 量	17 mBq/g Ca (2013) 以前収集 (年齢採取地不詳)	
$^{90}\text{Sr}$ 量	7 mBq/g Ca	乳歯 2004 年生まれ東京

## Reference

- 1) 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> (2017年7月31日アクセス)
- 2) 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://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8422823/www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008.html>, (2017年7月31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://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8422823/www.meti.go.jp/press/2011/10/20111020001/20111020001.pdf>, (2017年7月31日アクセス)
- 3) 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://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/9483636/www.nsr.go.jp/archive/nsc/info/20110412.pdf> (2017年7月31日アクセス)
- 4) 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.
- 5) 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> (2011年12月15日アクセス)
- 6) 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](http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No2.pdf) (2011年12月15日アクセス)
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) 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.

- 11) Moriyo Hinoide, Makoto, Yamamoto, Kazuhiko Inoue, Hideo Nakamura, Susumu Imai.  
RADIOACTIVITY SURVEY DATA in Japan, Number 99, November, 1992.
- 12) 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.

## Studies on the accumulation of radionuclides ( $^{90}\text{Sr}$ , $^{238}\text{Pu}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ ) emitted from Fukushima No.1 Nuclear Power Plant accident into human milk teeth

Kazuhiko Inoue<sup>1</sup>, Ichiro Yamaguchi<sup>2</sup>, Takatoshi Murata<sup>1</sup>, Susumu Imai<sup>1</sup>,  
Yoshiaki Nomura<sup>1</sup>, Nobuhiro Hanada<sup>1</sup>, Tutomu Sato<sup>3</sup> and Shiro Sakurai<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Department of Translational Research, School of Dental Medicine, Tsurumi University  
2-1-3 Tsurumi, Tsurumi, Yokohama, Kanagawa 230-8501

<sup>2</sup>Department of Environmental Health, National Institute of Public Health  
2-3-6 Minami, Wako, Saitama 351-0197

<sup>3</sup>The Nippon Dental University College at Tokyo  
2-3-16 Fujimi, Chiyoda, Tokyo 102-0071

<sup>4</sup>Faculty of Social Information Studies, Otsuma Women's University  
2-7-1 Karakida, Tama, Tokyo 206-8540

### Abstract

**【Purpose】** We collected milk teeth from all over Japan in order to investigate the transition of radionuclide in human body released to the environment by nuclear test and TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Radioactive nuclides ( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ), and compare it with past data. We will also verify the impact of TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident and clarify the trends before and after nuclear accident.

**【Material and method】** We are distributing document and collecting bottles to dental clinics where approval for this research was obtained, collecting milk teeth by year of birth and region from nation (1898 numbers, birth year 1999 ~ 2009, at present Sept. 30, 2017).

At this time we investigated 8 sample of milk teeth accumulated radionuclide {Saitama (2003 birth year, 35 numbers), Tokyo (2003, 57), Ehime prefecture Niihama-shi (2003, 45), Ehime prefecture Yawatahama-shi (2003, 29), Ehime Yawatahama-shi (2004, 18), Ehime Prefecture (2004, 24), Saitama prefecture (2004, 34), Tokyo (2004, 54)} and 1 sample of adult third molar (1980, 13, Saitama prefecture).

$^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  measurements were carried out by Radioactivity Measurement Series of Ministry of Education, Culture, Sports Science and Technology.

**【Results】**  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ : It was below detection limit in all samples.  $^{90}\text{Sr}$ :  $^{90}\text{Sr}$  of  $9.6 \pm 2.2 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  was detected from the third molar of adults. In the milk teeth group,  $^{90}\text{Sr}$  of  $6.8 \pm 2.1 \text{ mBq/g} \cdot \text{Ca}$  was detected only in Tokyo sample of 2004 birth year (the counting error in April, 2016 conversion is also

shown). Table 3 shows comparison between PIXE analysis and chemical analysis (sample of undetermined age of deciduous teeth). A simple and small analysis accuracy of PIXE analysis was confirmed.

**【Discussion】** Although  $^{90}\text{Sr}$  is detected from several samples, milk teeth and the third molar were collected before the Fukushima Daiichi nuclear accident and is assumed to be derived from nuclear test. Radionuclide accumulation of the deciduous teeth takes place from the fetal stage to the post-natal crown formation stage. This was an accumulation as background, and data before the accident was obtained (JSPS KAKENHI Grant Number 15 K11435).