

放射線の健康影響に係る研究調査事業 令和3年度年次報告書（詳細版）

研究課題名	乳歯を用いた福島県在住小児の被ばく線量評価事業
研究期間	令和3年4月1日～令和4年2月28日

氏名		所属機関・職名
主任研究者	佐々木 啓一	東北大学大学院歯学研究科 教授 副学長

氏名		所属機関・職名
研究協力者	木野 康志	東北大学理学研究科 教授
研究協力者	関根 勉	東北大学 名誉教授
研究協力者	棚原 朗	琉球大学理学部 教授
研究協力者	岡 壽崇	日本原子力研究開発機構 研究副主幹
研究協力者	大野 敬	奥羽大学歯学部 教授 歯学部長
研究協力者	広瀬 公治	奥羽大学歯学部 教授
研究参加者	小坂 健	東北大学歯学研究科 教授
研究参加者	篠田 壽	東北大学 名誉教授
研究参加者	高橋 温	東北大学病院 准教授
研究参加者	清水 良央	東北大学歯学研究科 助教
研究参加者	千葉 美麗	東北大学歯学研究科 講師
研究参加者	鈴木 敏彦	東北大学歯学研究科 准教授
研究参加者	相田 潤	東京医科歯科大学大学院医歯学総合研究科 教授

研究要旨	<p>令和1-3年度を通し、平成26年度以降収集した乳歯7,507本について、イメージングプレート（IP）を用いて放射線量（QL値）を測定し、マルチレベル回帰分析により疫学的に評価した。その結果、原発事故以前に形成された乳歯のQL値には福島県と他県で差が認められないこと、また、乳歯中のQL値には、事故時の年齢、震災後に口腔内に存在した期間、地域空間線量率に依存した違いは認められないことが示された。令和2年度の研究においては、乳歯QL値に貢献する核種を同定するため、各種放射性同位元素の測定</p>
------	--

	<p>を行った。その結果、乳歯中には、ウラン系列やトリウム系列の子孫核種や⁴⁰K等の自然放射性核種が存在すること、また福島県、他県に関わらず⁹⁰Srや¹³⁷Csが存在すること、しかし、これら⁹⁰Srや¹³⁷Csは、原発事故以前に脱落した乳歯にも、事故後に脱落した乳歯にも検出されることから、今回の福島第一原発事故由来とは考えられないことが示された。令和3年度においては、歯質中に同定された各放射性核種のQL値についての基礎的検討から、歯表面からの厚さ1mm以内の歯質中に存在する⁴⁰K、⁹⁰Sr、²¹⁰Pb、¹³⁷Csなどからのβ線が、QL値発生に寄与していること、適当な遮蔽板を用いることにより、⁹⁰Sr由来のQL値と¹³⁷Csや⁴⁰K由来のQL値を分離できる可能性が示された。</p> <p>以上の結果は、今後、本格的に収集が始まる原発事故後に形成された乳歯を検討するための重要な基礎資料になると考えられる。また、平成30年以降、原発事故後に形成された乳歯の収集が進んでいるが、これら乳歯のQL値は、原発事故以前に形成された乳歯QL値に比して、現時点において差は認められなかった。</p>
キーワード	福島第一原発事故、乳歯、内部被ばく、イメージングプレート、 ⁹⁰ Sr、 ¹³⁷ Cs

I 研究目的

歯はその形成期に ^{90}Sr や ^{137}Cs などの放射性物質を取り込み、それらは代謝されることなく歯質中に保持される。歯質中に取り込まれたそれら放射性物質の量は、歯の形成期に体内に入った量に比例すると考えられる。歯は代謝されることがないため、歯に取り込まれた放射性物質の量を測定することにより、歯が形成された時期の個体の内部被ばく状況を把握することができると考えられる。本研究の目的は、原発事故被災地およびその周辺地域に居住する幼小児を中心に、永久歯列への交換過程で自然脱落する乳歯や、歯科治療により抜去される乳歯を収集し、それらの歯に蓄積した放射性物質量を評価することにより、歯を用いて個体の内部被ばく状況を個体レベルで推定し、今回の福島第一原子力発電所事故による放射線の人体への影響を評価するための基礎資料を得ることにある。これまで、環境放射線の測定やシミュレーションモデルを用いた各種行動調査等の結果から、今回の原発事故に於いては、福島県在住小児は、問題となるような内部被ばくを受けていないと予測されている。本研究においてこれを実証できれば、放射線被ばくによる健康不安を懸念している保護者に対して、大きな安心材料を提供できる可能性があり、環境保健行政にも資するところ大と考えられる。

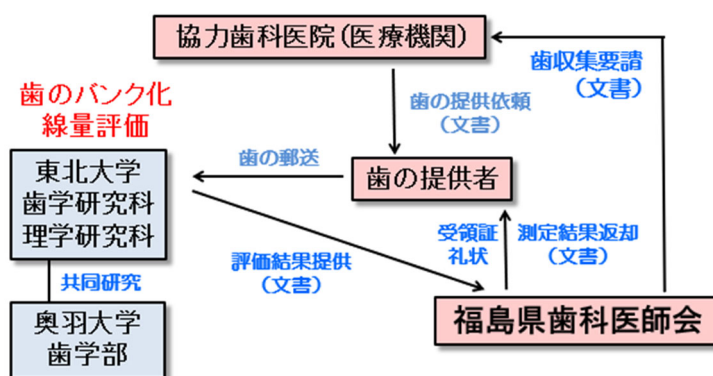
II 研究方法

1. 福島県在住小児の乳歯の収集とアーカイブ化¹⁾

福島県歯科医師会および奥羽大学と連携し、福島県を中心に、全国（静岡県、新潟県、沖縄県、北海道が中心）の子供から、永久歯との交換時期に自然脱落する、あるいは、歯科治療により抜去された乳歯を収集し、東北大学歯学研究科において管理・バンク化した。この乳歯の収集は、平成 26 年に開始し、令和 3 年度末現在も継続して実施している。乳歯収集の概念図は図 1 に示す。

2. IP を用いた歯質放射線量 (QL 値) の測定¹⁾

福島県や全国各地から収集された乳歯について、その中の放射線量をスクリーニングするための手法として、本年度においてもイメージングプレート (IP) を使用した。厚さ 5cm の鉛ブロックで作成した鉛箱の内部を、厚さ 1cm の鉄板で覆った遮蔽箱の中に、IP カセットに入れた IP を 1ヶ月にわたり静置し、環境放



[図1] 乳歯収集事業の概略

射線の影響を極力排除した低バックグラウンド環境下でオートラジオグラフを作成した。使用した IP は BAS-MS2040 (GE Healthcare 社製)、読み取り装置にはフロオル・イメージアナライザー FLA-7000 (富士フイルム社製) を使用した。IP の発光強度を IP 画像読み取りソフト Image Quant TL Ver.8.1 (GE Healthcare 社製) を用いて QL 値 (Quantum Level : IP 読み取り装

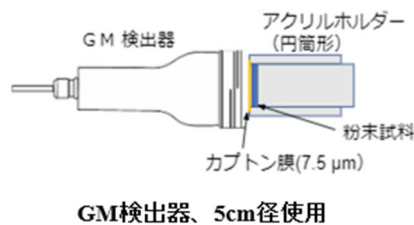
置で読み取った発光量を 16 ビットの濃度階調 (65,536 階調) に変換した値) として測定した。また、 ^{40}K を $0\sim 400\text{mBq/cm}^2$ (厚さ 3mm) 含む KCL 基準尺を作成し、 ^{40}K 濃度と得られる QL 値に、直線的な比例関係があることを確認し、この KCL 基準尺を標準試料としてどの IP にも入れ、使用 IP や測定時期の違いによる測定値の変動を補正した。QL 値の測定は、乳歯の唇側面を、カプトンフィルムを介して IP 面に接触させる形で行った。測定した乳歯 QL 値については、地域差、原発事故後口腔内に存在した期間 (2 次汚染の有無)、空間線量率、原発事故時年齢、性差、歯種、原発事故後の移住の有無、等を要因としたマルチレベル回帰分析を行った。

3. 乳歯中 γ 線放出核種の測定¹⁾

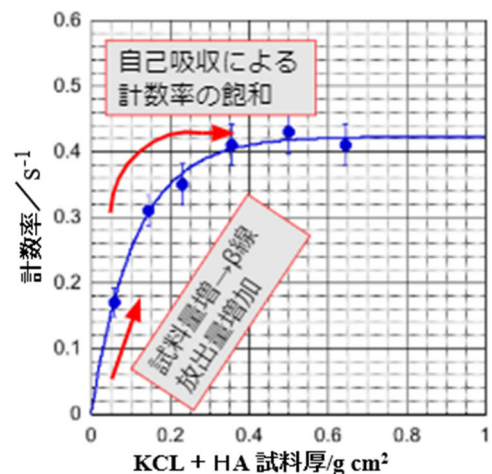
福島原発事故前に形成が終了している乳歯について、井戸型検出器を持つ極低バックグラウンド仕様のゲルマニウム半導体検出器 (Mirion Technologies社製) を用い、歯質中の γ 線放出核種について測定を行った。原発事故で放出された核種の中で、現在も環境中に存在する可能性がある核種として ^{137}Cs や ^{134}Cs があり、これらの核種が収集乳歯中に含まれるか否かの検討を行った。併せて自然放射性核種であるウラン系列、トリウム系列に属する核種、および放射性カリウムの測定を行った。測定試料として4つのコントロール乳歯サンプル (1サンプルに5 - 8本の乳歯を含む) を準備し、サンプル毎に100万秒 (11.6日) の測定を行った。また、100万秒の測定では検出されない微量放射性核種の存在を仮定し測定時間を160万秒 (18.5日) から300万秒 (34.7日) に設定した乳歯9サンプル (1サンプル7- 24本の乳歯を含む) について測定を実施した。具体的には福島県から5サンプル (事故前にすでに脱落し事故後口腔内に存在しなかった乳歯、事故後口腔内に2年未満存在した乳歯、口腔内に4年未満存在した乳歯、口腔内に6年未満存在した乳歯) と、福島県以外からの乳歯4サンプル (北海道、静岡、新潟、熊本) について測定した。さらに、震災後に形成された乳歯のうち、QL値が高い順に50本の乳歯を選択し、25本ずつ2つのサンプルとし、原発事故以前に形成された乳歯と同様な測定条件で、 ^{137}Cs に焦点をあてた γ 線放出核種の測定を行い、それらの値を、原発事故前に形成された乳歯の値と比較した。

4. 乳歯中 ^{90}Sr の測定^{1,2)}

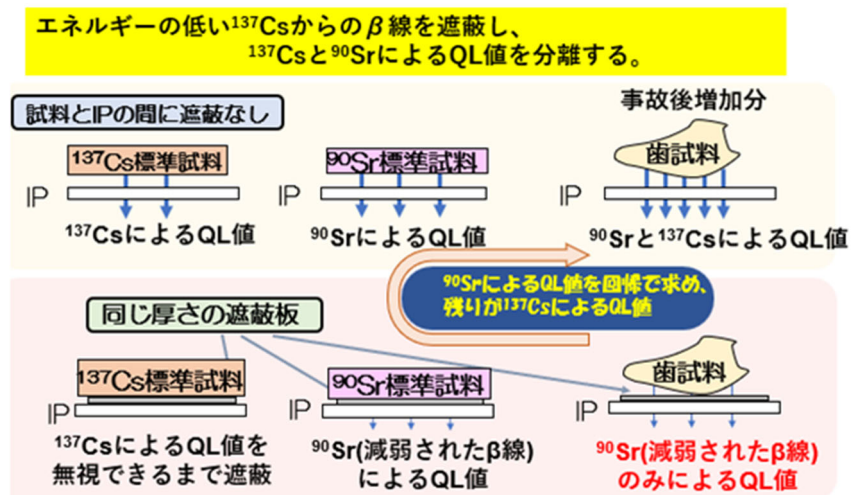
原発事故により放出され現在も環境中に存在している核種の中に ^{90}Sr がある。 ^{90}Sr は β 線放出核種であり測定が困難であるため多くのデータはないが内部被ばくを評価するうえで重要な核種である。本研究では収集した乳歯中の ^{90}Sr の測定を行った。乳歯サンプルを灰化し、続いて発煙硝酸法により大量に共存する Ca から Sr を分離・抽出した。さらに試料中の Cs, Ra, Y, Pb などを BaCrO_4 や



[図2] HA- ^{90}Sr 混合試料における β 線の自己吸収曲線



Fe(OH)₂ 沈殿法により除去した。分離・抽出した Sr は、低バックグラウンドガスフロー2πGM 管を用いて β 線の測定を行った²⁾。測定には事故前に形成が終了している乳歯を用い、数本を 1 サンプルとして定量した。測定を実施した乳歯の収集地は、福島県内のいわき市3 試料、福島市 2 試料、郡山市 2 試料で、福島県外からは北海道 2 試料、新潟県 2 試料、静岡県 2 試料、熊本県 2 試料であった。



〔図3〕 ⁹⁰SrによるQL値と、¹³⁷CsによるQL値の分離

16

5. 歯質中放射性核種の QL 値発生に及ぼす寄与率の検討

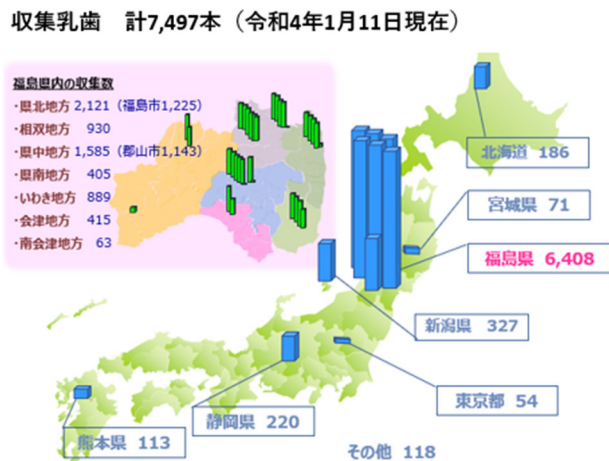
上記 3.4 における乳歯中のγ線放出核種と⁹⁰Srの測定結果から、原発事故前に形成された乳歯中には、ウラン壊変系列やトリウム壊変系列の子孫核種や、⁴⁰K等の自然放射性核種、さらに過去の核実験に由来すると考えられる ¹³⁷Csや ⁹⁰Srの人工放射性核種が存在することが明らかになった。これらの核種はそれぞれ崩壊エネルギーが異なるため、ヒドロキシアパタイト (HA) を主成分とする歯質中の飛程距離が異なる可能性が考えられる。本研究では、得られた歯のQL値にこれらの核種がどのように寄与しているかを明らかにする実験を行った。具体的には、崩壊系列ごとに標準試料を準備し、既知濃度の標準試料とHAとの混合試料を作成した。これらについて、試料の厚みを変えながらGM検出器を用いてβ線の自己吸収曲線を作成した (図2)。この自己吸収曲線の計数率が飽和に達する試料の厚みから、試料表面からどの程度の深さに存在する当該核種からのβ線をIPが検出しているかを推定した。

今後、原発事故以降に形成された乳歯の放射線量の測定が増えてくるが、仮に平均値+3標準偏差以上といった高いQL値が検出された場合、これらは、自然放射性核種の変動によるものとは考え難く、原発事故に由来する ¹³⁷Csないし⁹⁰Srによるものと推定することができる。この場合、¹³⁷Csと ⁹⁰Sr (⁹⁰Y) の最大エネルギーの違いを利用し適切な遮蔽板を用いることにより、QL値の増加が¹³⁷Csと ⁹⁰Srのどちらの増加に依るかについてIPを用いた検討を行った (図3)。

6. 倫理面への配慮

ヒト乳歯の収集に際しては、乳歯提供者の氏名、生年月日、住所等、基本的な個人情報を得ることが必要となる。また調査目的、社会的意義、調査結果の還元、結果の開示方法等についても、保護者からの理解が必要となるので、本研究では、乳歯の収集に際して書面でインフォームドコンセントを得ることとし、インフォームドコンセントが得られた検体についてのみ測定を行うこととした。本調査研究で遂行する乳歯の収集方法から結果の開示に至るまでの一連の過程については、東北大学大学院歯学研究科研究倫理専門委員会による承認をすでに得ている (平成25年1月31日、平成28年12月16日、および平成31年4月22日、承認番号23-19)。また、研究グループにおける乳歯収集・被ばく線量測定に関する倫理面での共通認識ならびに住民への配慮をより徹底させ

るために、福島県歯科医師会および奥羽大学においても倫理委員会での審議を経、承認を得ている（福島県歯科医師会倫理委員会、令和3年3月3日承認、および奥羽大学倫理審査委員会 令和元年12月10日承認）。乳歯収集の過程や研究結果から得られる個人情報には匿名化し、匿名加工情報は安全管理のために主任研究者及び疫学解析責任者のみが保持した。また、得られた測定値の被験者への伝達に当たっては、結果が適切に理解されるよう補助的な説明文書を添付するなど最大限の注意を払った。このため関係者の情報管理を徹底すると共に、研究機関、福島県歯科医師会が定期的に協議を行った。さらに、必要が生じた場合には、福島県庁や自治体とも協議し研究を進めることとした。



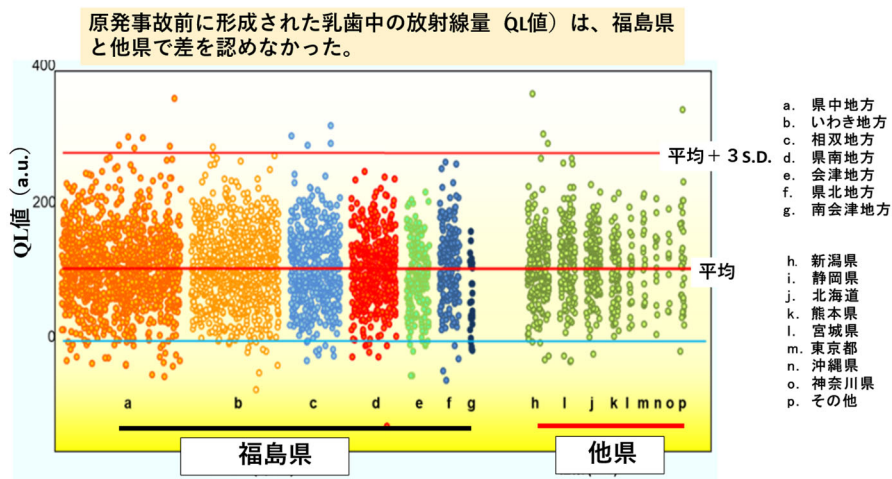
〔図4〕 乳歯の収集地と収集本数

III 研究結果

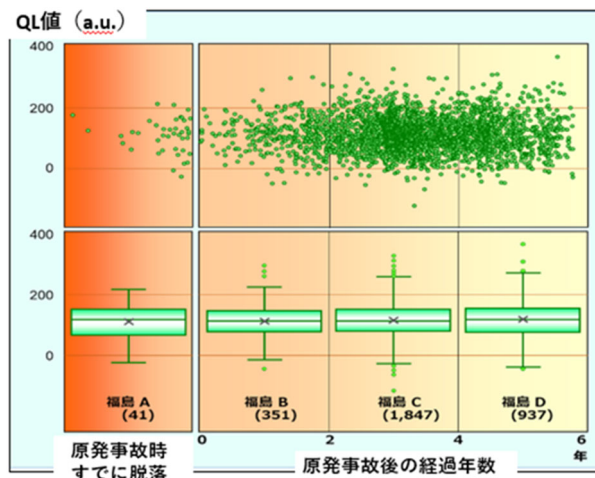
1. 福島県在住小児の乳歯の収集とアーカイブ化¹⁾（令和1-3年度）

令和3年度においては、コロナ禍の影響下で、歯科医院を訪れる小児数が激減したことにより、

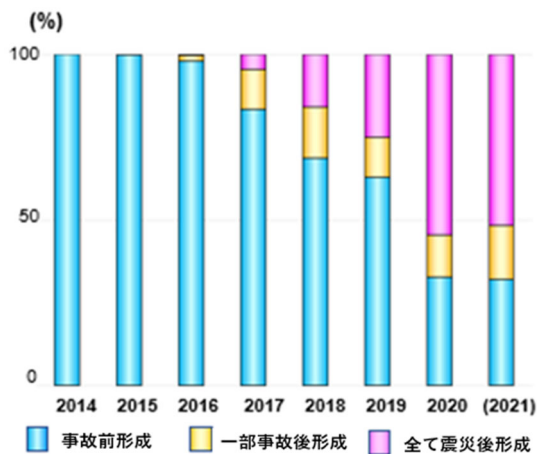
予定の収集数をやや下回ったが、令和4年1月11日現在、7,507本の乳歯を収集することができた（マイルストーン 8,000本）。うち、福島県内からの乳歯は、6,408本で、福島市内を有する県北地方、郡山市を有する県中地方、いわき市を有するいわき地方、そして福島第一原発の存在する相双地方からの収集比率が高い。福島県外では、北海道、新潟県、静岡県、熊本県の4県からの乳歯が多数を占め、収集歯の分布については前年度までとほぼ同様の傾向を示した。



〔図5〕 地域別乳歯QL値の分布



〔図6〕 乳歯が原発事故後口腔内に存在した期間とQL値の関係



[図7] 原発事故後に形成された乳歯の比率

形成された乳歯であっても、事故後、歯の表面に環境中から、事故由来の放射性物質が吸着し、2次的に歯の汚染が生じている可能性があると考え、収集した乳歯のQL値が、事故後、口腔内に存在していた期間に依存して上昇していたか否かについて検討した。その結果を図6に示す。QL値には、事故後の6年間の観察期間中、有意の変動は認められず、事故後、放射性物質の歯への2次的汚染(吸着)はないことが推定された。

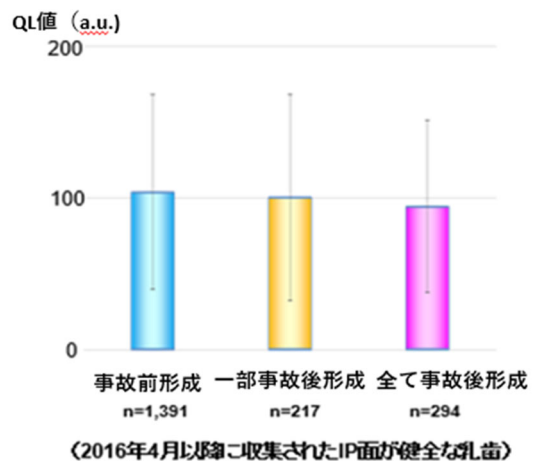
さらに、収集した事故前形成乳歯のQL値に性差は認められず、事故時の年齢、地域空間線量率との相関も認められなかった。

一方、平成29年(2017年)以降収集された乳歯の中に、原発事故後に歯質が形成された乳歯の比率が次第に増加している。図7に歯質のすべてが事故前に形成された乳歯、事故後に歯質の一部が形成された乳歯、歯質のすべてが事故後に形成された乳歯の比率の推移を示す。令和2年(2020年)

末において、歯質のすべてが事故後に形成された乳歯の比率が、50%を超えている。これら乳歯の数は、疫学的評価を行うためには現時点では十分ではないが、平成28年以降に収集された乳歯について、それら乳歯のQL値を図8に示す。事故前形成、一部事故時形成、すべて事故後に形成された乳歯のQL値は、現時点において有意の差は認められなかった。

2. IPを用いた歯質放射線量 (QL値) の測定¹⁾ (令和1-3年度)

図5に福島県内の7つの地方(a-g)と、福島県以外の8つの県(h-o)および、その他の県(p)から収集した乳歯について、それらのQL値に地域差があるか否かについて検討した。その結果、福島県と他県との間には差がみとめられなかった。また、福島県内についてみると、南会津地方からの乳歯QL値が、他地域と比べて低値を示した(図5)。また、



[図8] 原発事故前と原発事故後に形成された乳歯QL値の比較

		¹³⁷ Cs	²¹⁴ Pb (²²⁶ Ra)	²¹² Pb(²²⁸ Th)	⁴⁰ K
事故時すでに脱落	福島A(12)	0.21±0.07	0.91±0.31	0.39±0.15	7.9±1.5
事故前形成	福島B(23)	0.39±0.03	0.61±0.16	LTD	14.0±0.9
	福島C(8)	LTD	LTD	LTD	12.6±3.8
	福島D(8)	0.79±0.09	LTD	0.39±0.15	10.9±2.8
	北海道(21)	0.14±0.04	0.57±0.14	0.27±0.07	10.2±1.1
	静岡県(24)	0.07±0.02	0.65±0.16	0.24±0.03	5.4±1.0
	新潟県(8)	0.60±0.16	0.65±0.38	LTD	7.9±2.2
	熊本県(14)	0.25±0.06	0.41±0.18	LTD	8.5±1.0
事故後形成	福島E(25)	0.13±0.06 (LTD)	0.93±0.25	0.29±0.07	10.5±1.6
	福島F(25)	0.07±0.03 (LTD)	3.79±0.28	0.51±0.05	6.5±1.8

極低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器による160-300万秒/18.5-34.7日測定。()内は歯数。震災後形成乳歯中の¹³⁷Csに増加は見られない。

[表1] 異なった地域における乳歯中γ線放出核種

3. 乳歯中 γ 線放出核種の測定¹⁾ (令和2、3年度)

表1に極低バックグラウンドの環境下で160-300万秒の測定結果を示す。測定した9サンプルのうち、ウラン系列に属する ^{214}Pb は10サンプル中8サンプルに、また、トリウム系列に属する ^{212}Pb は10

サンプル中6サンプルに認められた。また、 ^{40}K は測定したすべてのサンプルに一定の範囲内で(5-14mBq/g)検出された。 ^{137}Cs については10サンプル中9サンプルで検出され、また、原発事故以前に脱落・収集された乳歯にも認められた。さらに今回の原発事故に影響されていないと考えられた福島県以外の県からの乳歯にも ^{137}Cs が認められた。さらに、原発事故後に形成された乳歯をQL値が高い順に50本(歯種により異なるが、1本当たりの重量は0.2-0.5g)選び、非破壊のまま、まるごとの歯25本ずつを1サンプルとし、2サンプル測定した結果、どちらも測定限界に近い値を示し、事故前に形成された乳歯に比べて、高くなっている兆候は認められなかった。(表1)。

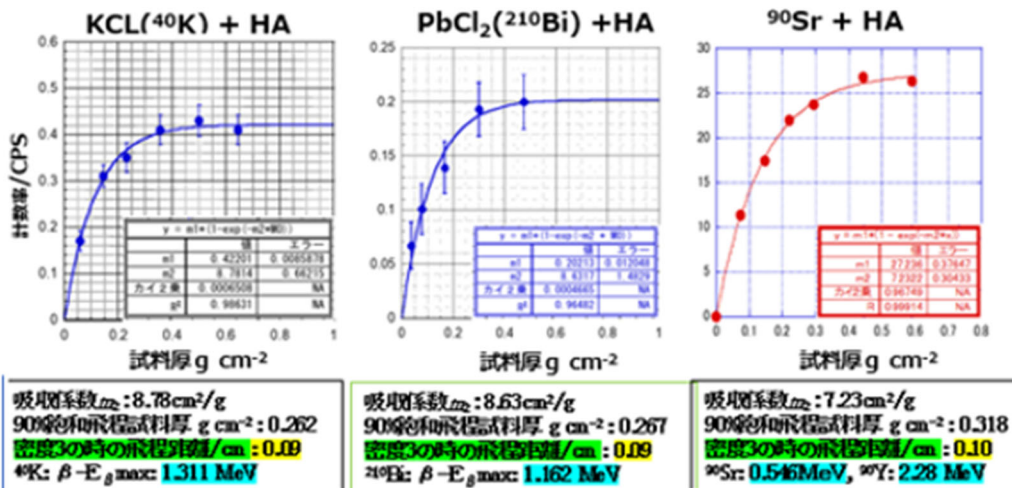
4. 乳歯中 ^{90}Sr の測定^{1,2)} (令和2、3年度)

福島県内のいわき、福島、郡山の3市から収集した乳歯、および、北海道、新潟、静岡、熊本の4県より収集した乳歯について、それぞれ、6-17本ずつを1サンプルとして粉末化し、 ^{90}Sr の測定を行った。表2にその結果を示す。福島県内の3都市間で、また、福島県外と他県の乳歯の値には、地域差は認められないことが推測された。

mBq/g Ca, 平均 ± 計数誤差					
福島県		他県			
いわき市	-1	1.45 ± 0.16 (6)	北海道	-1	1.63 ± 0.13 (9)
	-2	1.28 ± 0.15 (8)		-2	<1.61 (14)
	-3	2.05 ± 0.67 (16)	新潟県	-1	2.01 ± 0.09 (6)
福島市	-1	1.61 ± 0.12 (14)		-2	<1.37 (14)
	-2	<1.53 (16)	静岡県	-1	1.95 ± 0.11 (6)
郡山市	-1	1.57 ± 0.12 (13)		-2	<1.45 (17)
	-2	1.77 ± 0.70 (16)	熊本県	-1	1.45 ± 0.08 (6)
				-2	1.88 ± 0.73 (16)

[表2] 異なった地域における乳歯中 ^{90}Sr

()内は歯数



(参考1) 自己吸収曲線のフィッティング

$$y = m_1 \times (1 - \exp(-m_2 x))$$

y : 計数率, x : 試料厚 (g cm^{-2})
 m_1 : 飽和時の計数率, m_2 : 吸収係数 ($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)

(参考2) 飽和計数率に対して90%になった時の飛程の算出

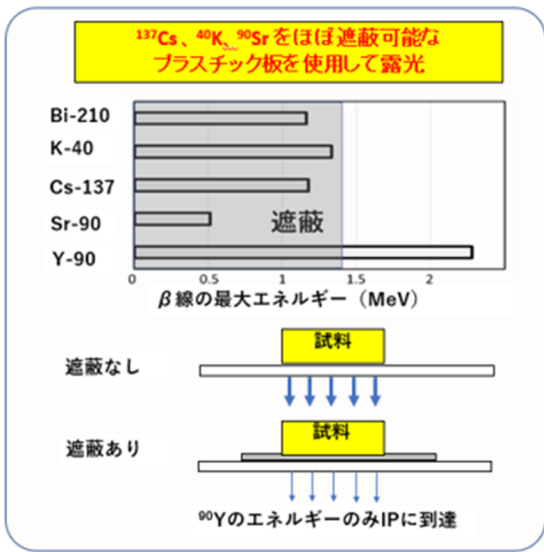
$$y/m_1 = 1 - \exp(-m_2 x) = 0.9$$

求める飛程 x は、 $0.1 = \exp(-m_2 x)$, $\ln(1/10) = -m_2 x$,
 $x = \ln 10 / m_2$, ($\ln 10 = 2.3026$)

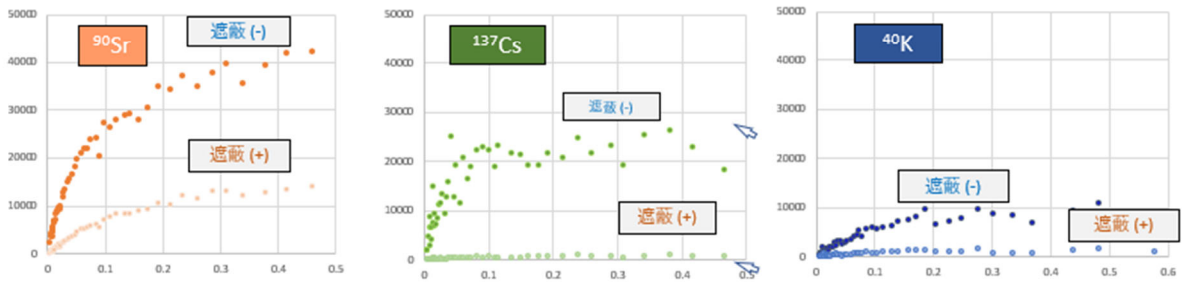
[図9] HAとの混合試料を用いた自己吸収曲線の測定結果

5. 歯質中放射性核種のQL値発生に及ぼす寄与率の検討（令和3年度）

ゲルマニウム半導体検出器による測定結果から、また、⁹⁰Srの測定結果より、乳歯中には、ウラン系列やトリウム系列の子孫核種、⁴⁰Kなどの自然放射性核種に加え、今回の原発事故以前に歯の中に取り込まれた¹³⁷Cs や⁹⁰Srが存在することが明らかになっている。これら核種からのβ線が、QL値の発生に寄与していることが考えられる。しかし、崩壊エネルギーは核種により異なっているので、IPは歯質中のどの深さからのβ線を捉えているかは、明らかではない。そこで、本研究では、核種ごとに、HA（ヒドロキシアパタイト/歯エナメル質の主成

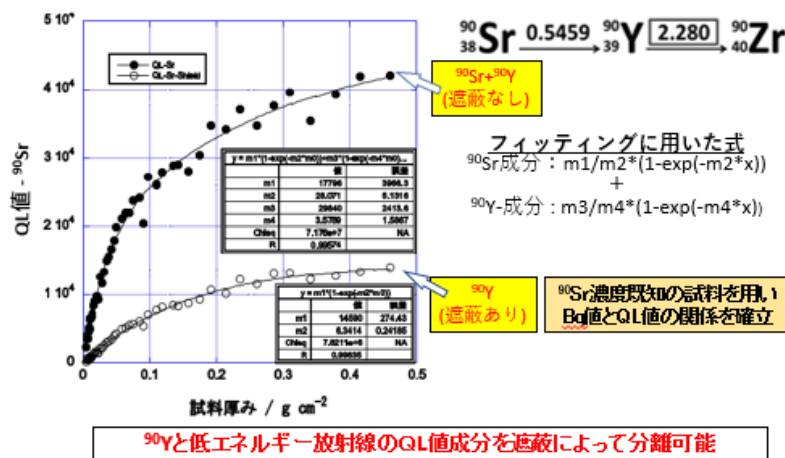


【図10】 遮蔽板を用いたβ線の遮蔽



【図11】 遮蔽板 (-) と (+) における ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K の自己吸収曲線 (HAとの混合試料)

分) との混合試料を作成し、それら試料について、自己吸収曲線を作成した。試料の厚み (g cm^{-2}) と計数率 (cps) のデータを自己吸収曲線にフィッティングさせ、得られる吸収係数から、飽和計数率に対して90%になる時の飛程を算出した (図9)。既知濃度の⁴⁰K、²¹⁰Bi(²¹⁰PbCl₂) (ウラン系列の子孫核種)、⁹⁰Sr、それぞれとHA混合試料についての密度3 (HA/歯質の密度) におけるβ線の飛程距離は、それぞれ0.09、0.09、0.10cmであった。すなわち、厚さ0.9-1mm以内の歯質中に存在する



【図12】 HAとの⁹⁰Sr (5Bq/gHA) 混合試料を用いた自己吸収曲線の測定結果 (遮蔽による低エネルギー放射線と⁹⁰Yの分離)

る⁴⁰K、²¹⁰Bi、⁹⁰Srからのβ線が、QL値発生に寄与していると推測された。なお、¹³⁷Cs (MeV: 1.17) は、その崩壊エネルギーが ²¹⁰Biと同程度であり、²¹⁰Biと同程度の飛程距離になると推測された。

2017年前後から、収集される乳歯の中で、原発事故後に形成された乳歯の比率が増しており、これらの中に高い放射線量 (例えば平均値+3標準

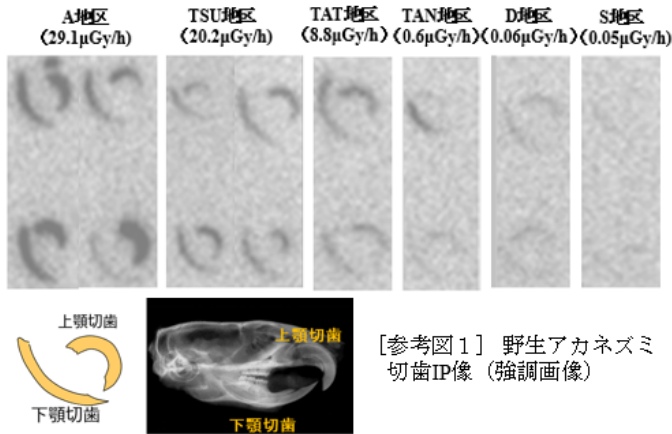
偏差以上)を示す乳歯が出てくることが予測される。その場合、放射線量の増加(QL値の増加)は ^{137}Cs あるいは ^{90}Sr の増加によると考えることができる。ここで、そのQL値の増加が、どの核種の増加に拠るかを明らかにする必要がある。我々は、この二つの核種の崩壊エネルギーの違いを利用し、適当な遮蔽板を用いることにより ^{137}Cs と ^{90}Sr (^{90}Y)の β 線を分離できると考え、以下の実験を行った。図10にその概念図を示す。1.5mmのプラスチック板により、 ^{137}Cs や ^{40}K 、ウラン壊変系列の ^{210}Bi 、さらに ^{90}Sr からの β 線を遮断することができる。

一方、試料中の ^{90}Sr は ^{90}Y へと崩壊し、この ^{90}Y からはエネルギーが高い β 線が放出され、この β 線は一定の割合で、遮蔽板を透過することができる。この透過した ^{90}Y からの β 線量を測定することにより、 ^{90}Y の濃度から ^{90}Sr の濃度を推定することが可能である。図11には、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{40}K 、それぞれの標準試料をHAと混合して得た試料について、遮蔽板を入れない場合と、入れた場合の自己吸収曲線である。 ^{137}Cs と ^{40}K についての自己吸収曲線は、遮蔽板により、ほぼ完全に遮蔽されているのに対して、 ^{90}Sr については、 ^{90}Y からの高いエネルギーの β 線は遮蔽されず、自己吸収曲線が描記されている(図11の左図、および図12)。これらの結果は、IPに適当な遮蔽板を組み合わせることにより、低エネルギー放射線のQL値成分と ^{90}Y (^{90}Sr)によるQL値成分を分離できる可能性を示している。また、これにより、歯質中の ^{90}Sr の増減を簡便にスクリーニングできる可能性を示すものといえる。

IV 考察

東日本大震災の後、11年が経過し、原発事故後に形成された乳歯の比率が次第に増しており、今後その比率はさらに増すことが予測される。我々が、事故後に形成された乳歯を初めて収集したのは、2017年の初頭であるが、その数はわずかであり、歯質のすべてが事故後に形成されたとみなすことができる歯の比率が年間の収集数の10%をこえたのは、2018年以降である。しかしその数は、当時50本にも満たず、疫学的な検証を行うに足る数には程遠かった。一方、2019年12月末に中国武漢に於いて初めてコロナ感染症が報告され、2020年初頭以降、2021年度末から現在に至るまで2年以上コロナ禍が続いている。この間、歯科医院を訪れる児童の数が激減し、また、小学校等における児童の活動制限の影響もあり、乳歯提供者数の大幅な減少が続いている。歯質のすべてが事故後に形成されたとみなされ、IPに接する唇側面が健全であった歯は、2022年1月11日現在、294本と少ないが、この数の少なさは、事故後に形成された乳歯の収集がこれから本格化するという時期に、コロナ禍が重なったことに原因があると考えられる。

歯質のすべてが事故後に形成された乳歯の数が、294という数は疫学的な評価に耐えられる十分な数ではないが、これらの乳歯と同時期に収集された乳歯は、合計1,902本となるので、これらの乳歯を、事故前に形成された歯、事故時に形成中であった歯、事故後に形成された歯の3群に分け、可及的に各群の乳歯QL値を計算してみた。結果は図7に示す通りで、3群のQL値に差は認められていない。この3群に差が認められないということは、事故後に形成された乳歯中に取り込まれている ^{137}Cs や ^{90}Sr の量が事故後も有意に増加していないことを示唆している。事故後に形成された乳歯について、QL値が上から高い順に50本の歯を選び、これらを25本ずつ2つのサンプルとして、極低バックグラウンドの高感度ゲルマニウム半導体検出器を用いて ^{137}Cs を含む γ 線放出核種の測定を行った結果を、表1に示してある。この2サンプルの ^{137}Cs の値は、事故前にすでに脱落していた乳歯や事故前に形成されていた乳歯中の値と比べてもむしろ低く、事故後に乳歯中に ^{137}Cs が取り込まれた量が増えている兆候は見られなかった。 ^{90}Sr の測定を行うためには、歯を破壊的に

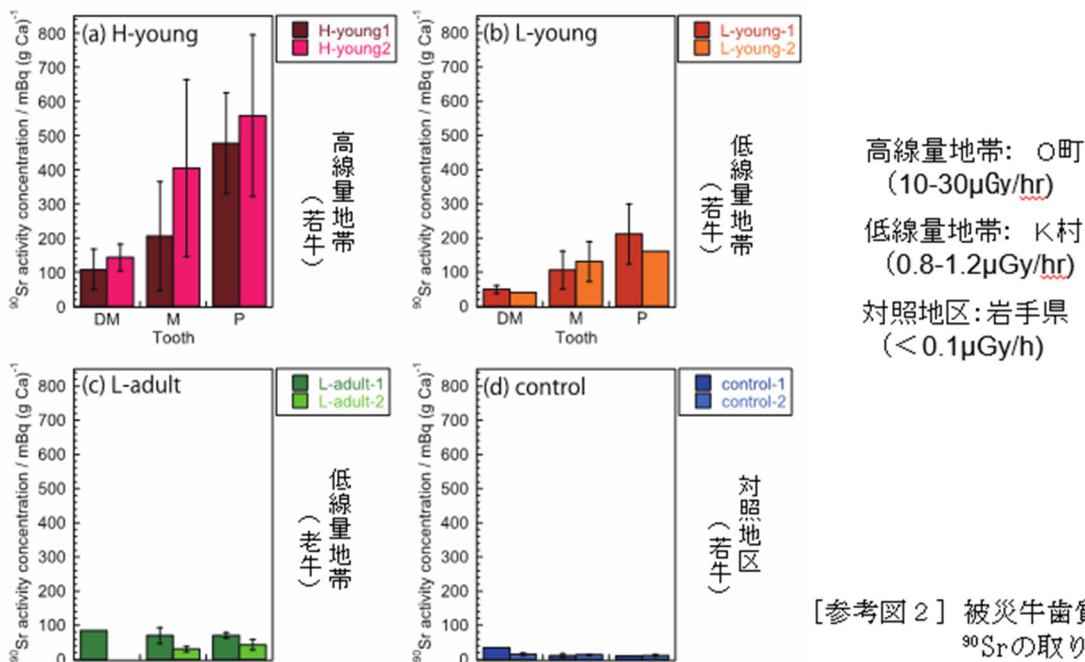


[参考図1] 野生アカネズミ切歯IP像(強調画像)

^{90}Sr が取り込まれていなかったと解釈できる。このことは、被災地で捕獲した各種動物の歯についての我々の検討結果からも説明できる。参考図1には、空間線量率が異なる4つの原発事故被災地で捕獲した野生アカネズミの切歯を、対照の2地区(青森県H市のD地区とS地区)で捕獲したアカネズミの切歯と比較したIP画像である。この図からも推測されるように、歯からの放射線量(QL値)は、アカネズミが棲息していた地域の空間線量率と相関を示しており、また、これらの歯の ^{137}Cs の値とQL値との間にも高い相関が認められている(未発表データ)。また、参考図2(引用文献(2)より引用、改変)には、原発事故直後、野に放たれ、その後、一年以上、野や山で過ごし、K村(空間線量率 0.8-1.2 $\mu\text{Gy/h}$)あるいはO町(空間線量率10-30 $\mu\text{Gy/h}$)で捕獲された老牛と若牛

処理する必要があり、オートラジオグラフィや、ESR法によるラジカルの測定など、他の測定を担保するために現在に行っていないが、QL値にみるべき変動が見られないことから、その濃度が増加していることは考え難い。

事故後に形成されたヒト乳歯のQL値、あるいは、 ^{90}Sr や ^{137}Cs 値が、震災前に形成された乳歯に比べて増加していないという事実は、体内に有意の ^{137}Cs や



の歯の中の ^{90}Sr 量について、原発事故の影響を受けていないと考えられる岩手県の畜牛の歯と比較した結果が示してある。老牛の場合、原発事故時、歯列中のすべての歯は、既に形成を終了しており、(歯表面への吸着等によると思われる2次的な汚染はあるものの)、どの歯についても、歯質中の ^{90}Sr の値は低い。一方、図に示した若牛の場合、歯列中には、事故時には既に形成を完了していた歯(DM/乳臼歯)、形成途上にあった歯(M/乳臼歯)、事故後に形成された歯(P/小臼歯)があり、事故前に形成されたDMについては、老牛の歯と同様に ^{90}Sr の値は低い。また、事故

後に形成されたPについては、歯の形成中に環境中から多くの ^{90}Sr が取り込まれており、その値は高い。また、事故時に歯質の一部が形成途上にあったMについては、DMとPとの中間値を示している。さらに、対照地区（岩手県）の畜牛の歯の ^{90}Sr の値は、原発事故被災地で捕獲されたウシの歯の ^{90}Sr 量に比べてはるかに低い。被災動物で見られるこのような結果は、体内に有意の ^{137}Cs や ^{90}Sr が取り込まれた場合（内部被ばくがあった場合）、それらの一部は、形成途上の歯の中に取り込まれ、歯質中の、有意の放射性物質や放射線量の増加として表現されることを意味している。事実、歯の中の ^{90}Sr 量が著増したことが、過去の大気圏核実験^{3,4)}やチェルノブイリ原発事故^{3,5)}、さらに、放射性廃棄物によるテチャ河の汚染⁶⁾などに関連して、ヒトの歯においても報告されている。福島第一原発事故前に形成された乳歯と、事故後に形成された乳歯の間で、放射線量や放射性物質の値に差が認められていないという、本研究に於いてこれまでに得られている結果は、今回の福島第一原発事故による有意な内部被ばくは、疫学的に見る限りにおいて、福島県在住小児には、なかった可能性が高いことを示唆している。

ここ数年、事故後に形成された歯の収集が増えており、今後もこの傾向が続くことが予測される。QL値の測定によるこれまでのスクリーニングにおいては、注目すべき高値を示す歯は出現していないが、今後、例外的に、そのような歯が出現する可能性も否定できない。こうした歯が出現した場合、 ^{137}Cs については、歯を非破壊のまま、 γ 線測定を行うことが可能であるが、 ^{90}Sr についてはこれが困難である。我々は最終的には、ICP-MS等による微量測定⁷⁾を考えるが、その前に、歯を非破壊のまま、IPを用いて ^{90}Sr の増減をスクリーニングしたいと考え、そのための実験を行っている。図3,10,11,12にその概略を示す。令和3年度までの基礎研究から、QL値の発生に寄与する核種として、歯の中には、ウラン壊変系列やトリウム壊変系列の子孫核種や ^{40}K の自然放射性核種と、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の人工放射性核種があることが明らかになっている。また、歯の表面（エナメル質表面）から、およそ、1mm以内に存在する、これら核種からの β 線が、QL値の発生に寄与していることも明らかにしている（図9）。上記核種の中で、自然放射性核種は、原発事故によって、変動することは考えられず、もしQL値に大きな上昇があった場合には、それは、 ^{137}Cs や ^{90}Sr の変動によることが考えられる。一方、 ^{137}Cs と ^{90}Sr による β 線は、 ^{90}Sr が壊変した ^{90}Y からの β 線のエネルギーが ^{137}Cs のそれに比べて高く、 ^{137}Cs 由来の β 線と、 ^{90}Sr 由来の β 線は、適当な遮蔽板を用いることにより分離することが可能である。我々はこの遮蔽板として現在1.5mmのプラスチック板を使用しており、 ^{40}K あるいは ^{137}Cs とHAの混合試料、あるいは ^{90}Sr とHAの混合試料についての自己吸収曲線を描記し、これに遮蔽板を併用した場合と併用しなかった場合について検討している。図11,12に示されているように、 ^{40}K や ^{137}Cs などからの、エネルギーが低い β 線は、遮蔽板により遮蔽されているのに対し、 ^{90}Sr の自己吸収曲線は、 ^{90}Sr の壊変核種である ^{90}Y が高エネルギーの β 線を放出しており、これらの β 線は、遮蔽板を透過している。現在、 ^{90}Sr 濃度既知の試料を用い、Bq値とQL値の関係を確立する実験を続けている。IPの β 線に対する感度は高く、ダイナミックレンジも広い。我々は、遮蔽板を用いることにより、 ^{40}K や ^{137}Cs と ^{90}Sr を分離することが可能であることから、IPを用いて ^{90}Sr をスクリーニングできる可能性があると考えている。

現在、原発事故後に形成された乳歯について、疫学的な評価を行うためには、収集数が不足している。事故前に形成された乳歯について、我々が行ったような、事故時年齢、居住地、居住地の空間線量率、年齢、性差、歯種、原発事故後の居住変更の有無、他県との比較等、様々な要因を考慮した疫学的な評価を行い、一定の結論を得るためには、今後、さらに乳歯の収集を継続する必要がある。

V 結論

福島県在住小児より収集した乳歯について、IPによる線量評価を行った。現在まで収集した乳歯数は7,507本であったが、その中の事故前に形成された乳歯について、マルチレベル回帰分析を行った。その結果、(1) 乳歯中放射線量 (QL値) は福島県と他県で差を認めなかった。(2) 乳歯中QL値には、性差、原発事故時年齢、事故後、口腔内に存在した期間、地域空間線量率との関連は認められなかった。(3) 原発事故後に形成された乳歯のQL値は、原発事故後に形成された乳歯に比べて、現時点においては、差を認めなかった。

乳歯中放射性同位元素の測定により、(1) 乳歯中には普遍的にウラン系列・トリウム系列の子孫核種と ^{40}K が存在する。(2) 原発事故前に形成された乳歯中には福島県、他県に関わらず、 ^{90}Sr や ^{137}Cs が存在する。(3) 原発事故以前に脱落した福島県乳歯にも ^{137}Cs が検出された。(4) 乳歯中に検出された ^{90}Sr 、 ^{137}Cs は両核種とも、今回の福島第一原発事故由来とは考えられない。

歯質中に同定された各放射性核種のQL値発生に及ぼす寄与率についての基礎的検討から(1) 歯の表面から厚さ1mm以内の歯質中に存在する ^{40}K 、 ^{210}Bi 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs からの β 線が、QL値発生に寄与していると推測された。(2) 適切な遮蔽板を用いることにより、 ^{90}Sr 由来のQL値と ^{137}Cs や ^{40}K 由来のQL値を分離できる可能性が示された。

VI 次年度以降の計画

1) 原発事故後に形成された乳歯に関して、全歯種にわたる乳歯の収集を行う。

乳歯は、胎生期から形成が始まり、通常6歳ごろから、12,13歳にかけて自然脱落し、永久歯に入れ替わる。乳歯が永久歯と置き換わり脱落するには順序があり、通常下顎前歯の脱落が最も早く、次いで上顎前歯がそれに続く。最後に永久歯と置き換わるのは乳臼歯で、その脱絡は、10歳以降となる。現在、福島原発事故が発生してから凡そ11年が経過しているが、上記の理由により、これまでに収集された乳歯の歯種は前歯部に集中しており、原発事故後に形成された乳臼歯の収集は極わずかである。原発事故前に形成された乳歯についての基礎的検討から、歯種により放射線量が異なる(上顎前歯が、他の歯種に比べて優位の高値を示す)ことが分かっている。収集歯数の偏りを防ぐため、今後、全歯種にわたり乳歯の収集が必要である。

(2) 歯から内部被ばく量を推定するシュミレーションモデルの構築(被災動物を用いた検討)

^{90}Sr や ^{137}Cs など、歯質中の放射性物質の濃度と、骨や諸臓器中の濃度との間にどのような関係があるかについては、サル等の被災動物から採取した試料を用いて明らかにすることが可能である。本研究班では、ヒトに近い野生アライグマの歯や骨を多く収集しているので、これら硬組織に専ら分布している ^{90}Sr を中心に、歯から骨中の濃度を推定し、被ばく量を推定するモデルを構築したい。これにより、歯を内部被ばく線量の推定に用いることの可能性を高めていきたい。

この研究に関する現在までの研究状況、業績

(1) Atsushi Takahashi, Mirei Chiba, Akira Tanahara, ~他

Radioactivity and radionuclides in deciduous teeth formed before the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident Scientific Reports 11(1) 10335 2021 14 May (2021) DOI: 10.1038/s41598-021-89910-0

(2) Kazuma Koarai, Makoto Matsueda, Jo Aoki, ~他

- Rapid analysis of ^{90}Sr in cattle bone and tooth samples by inductively coupled plasma mass spectrometry.
Journal of Analytical Atomic Spectrometry 36(8) 1678-1682 (2021) 10.1039/D1JA00086A
- (3) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, ~他
 ^{90}Sr specific activity of teeth of abandoned cattle after the Fukushima accident - tooth as an indicator of environmental pollution Journal of environmental radioactivity 183 1-6 (2018)
- (4) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, ~他
 ^{90}Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident Scientific Reports, Apr 5;6 24077 (2016) DOI; 1038/srep 24077
- (5) その他 (プレスリリース、新聞、テレビ等、報道記事)
- ・2013年12月24日 福島民報英語版 「Fukushima kids' teeth to be checked for strontium-90」
 - ・2014年2月4日 福島民友 「乳歯から被曝量推計」
 - ・2016年4月20日 日刊工業新聞「東北大学、動物の歯から被ばく履歴を算出」
 - ・2016年4月11日 マイナビニュース「東北大、福島原発事故の被災牛の歯から放射性ストロンチウムを検出」
 - ・2018/6/17 NHK スペシャル 被ばくの森 BS1 スペシャル
 - ・2018年9月14日 日刊工業新聞「被ばく線量、歯で測定。東北大が新手法。福島第一原発の被害究明に期待」
 - ・2019年3月7日 福島中央テレビ ゴジてれChu! 「ふくしまの未来シリーズ」
 - ・2021年5月20日 東北大学プレスリリース
 - ・2021年5月20日 日本経済新聞電子版 「東北大学、福島第一原発事故の影響を乳歯で調査 現在のところ汚染認められず」
 - ・2021年6月4日 河北新報 「歯の汚染確認されず」
 - ・2021年6月8日 朝日新聞 「乳歯の放射性物質 福島県内外差なし」
 - ・2021年8月23日 福島県歯科医師会プレスリリース
 - ・2021年8月23日 福島中央テレビ「福島・事故前後で歯の放射線量に違いなし」
 - ・2021年8月24日 福井新聞「乳歯の放射線量、福島事故前後で差なし」
 - ・2021年8月24日 福島民報「原発事故による内部被ばく少ない」
 - ・2021年8月24日 テレビュー福島「乳歯の被ばく線量 原発事故前後で差なし」
 - ・2021年8月24日 毎日新聞「東日本大震災 乳歯調査、内部被ばくなし 原発事故前後の7000本 歯科医師会「安心して」/福島」
 - ・2021年8月24日 福島民友「乳歯の放射線量、違いは確認できず 原発事故前後7000本を調査」
 - ・2021年8月24日 産経新聞「乳歯の被曝 確認できず」
 - ・2021年8月25日 読売新聞オンライン「乳歯の線量県外と同水準 内部被曝認められず 県歯科医師会など」
 - ・月刊化学 Vol.76 No11 (2021) 66-67 注目の論文 「歯」に残された痕跡を探せ！ イメージングプレートによる極微量放射能検出

- (1) Atsushi Takahashi, Mirei Chiba, Akira Tanahara, ~他
Radioactivity and radionuclides in deciduous teeth formed before the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident
Scientific Reports 11(1) 10335, 14 May (2021) DOI: 10.1038/s41598-021-89910-0
- (2) Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, ~他
⁹⁰Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident
Scientific Reports, Apr 5;6 24077 (2016) DOI; 1038/srep 24077
- (3) Froidevaux, P., Geering, J. J. & Valley, J. F.
⁹⁰Sr in deciduous teeth from 1950 to 2002: The Swiss experience.
Science of the total environment. Total Environ. 367, 596–605 (2006)
- (4) Froidevaux, P., Bochud, F. & Haldimann, M.
Retention half times in the skeleton of plutonium and ⁹⁰Sr from above-ground nuclear tests: A retrospective study of the Swiss population. Chemosphere 80, 519–524 (2010)
- (5) Stamoulis KC, Assimakopoulos PA, Ioannides KG, ~他
Strontium-90 concentration measurements in human bones and teeth in Greece.
Science of the total environment. 1999 May 19;229(3):165-82.
doi: 10.1016/s0048-9697(99)00052-2
- (6) Shishkina EI, Tolsty kh, Verdi E, ~他
Concentrations of ⁹⁰Sr in the tooth tissues 60 years after intake: results of TL measurements and applications for Techa River dosimetry
Radiation and Environmental Biophysics 2014 Mar;53(1):159-73.
doi: 10.1007/s00411-013-0501-x. Epub 2013 Nov 29.
- (7) Kazuma Koarai, Makoto Matsueda, Jo Aoki, ~他
Rapid analysis of ⁹⁰Sr in cattle bone and tooth samples by inductively coupled plasma mass spectrometry.
Journal of Analytical Atomic Spectrometry 36(8) 1678-1682 (2021) 10.1039/D1JA00086A

Radiation dose assessment using deciduous teeth collected from children in Fukushima

Keiichi Sasaki

Department of Advanced Prosthetic Dentistry, Tohoku University Graduate School of Dentistry, Sendai, Japan.

keywords: Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident, deciduous teeth, internal exposure to radiation, imaging plate, ^{90}Sr , ^{137}Cs

Abstract

We collected 7,507 deciduous teeth from children in Fukushima and reference prefectures from 2014. Their radioactivity (measured as QL value) was determined using imaging plates and epidemiologically assessed using multivariate regression analysis. Additionally, we measured ^{90}Sr and ^{137}Cs , and natural radionuclides in teeth that formed before the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant (FNPP) accident. Epidemiological studies showed that radioactivity and ^{90}Sr and ^{137}Cs concentrations in teeth from Fukushima prefectures were similar to those from reference prefectures. We found no correlation between radioactivity and age of the children at the time of accident, as well as regional air dose rate. We also found no evidence to suggest that radionuclides originating from the FNPP accident significantly contaminated pre-existing teeth.

It was suggested that artificial radionuclides of ^{90}Sr and ^{137}Cs , which were assumed to originate from a previous nuclear weapons test, and natural radionuclides, including ^{40}K and daughter nuclides in the ^{238}U and ^{232}Th series, generate radioactivity in teeth. Furthermore, experiments to record self-absorption curves for the mixed samples of ^{40}K , ^{90}Sr , or ^{210}Bi with hydroxyapatite showed that β rays from these radionuclides existing within 1 mm depth from the tooth surface contributed to QL generation. We could also separate β rays derived from ^{90}Sr and rays derived from ^{137}Cs or ^{40}K by using an appropriate shield plate. The present findings will be indispensable for future studies on teeth formed after the FNPP accident, which will fall out over the next several years, and which could be more contaminated with radionuclides.

So far, we have collected about 300 deciduous teeth formed after the FNPP accident. At the present stage, there is no evidence to suggest any difference in radioactivity between the teeth formed before the FNPP accident and those formed after the accident. Further studies are required to confirm this observation.