

令和元年5月30日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05055

研究課題名(和文) 歯を用いた内部被曝量のスクリーニング

研究課題名(英文) Screening for individual internal exposure using teeth

研究代表者

高橋 温 (TAKAHASHI, Atsushi)

東北大学・大学病院・助教

研究者番号：50333828

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)： 歯は形成された後、代謝を受けない特徴的な器官であるため、内部被ばくの指標となる。そのため歯を使って含有放射性物質を迅速にスクリーニングする方法を、イメージングプレート(IP)を用いて検討した。本研究では、主として福島第一原発事故前に形成された歯を対象とした。その結果、収集地にかかわらず一部の歯にはQL値の高いものが認められた。それらの歯の多くはIPに対面する歯面に齲蝕や修復があることが明らかになった。したがって本方法は歯面が健全な歯をIP面に対面して用いることが重要と考えられた。また、歯には一定の自然界由来の放射性物質が含まれ、それがQL値を引き上げていることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では主として福島第一原発事故前に形成された歯を対象としてスクリーニング法の検討を行ったが、今後は原発事故後に形成された歯は収集されてくる。本スクリーニングにより多くの提供者に含有放射性物質濃度の程度を客観的に知らせることができ、不要な社会不安の払拭に役に立てることができる。一方で含有放射性物質濃度が高かった場合は、詳細な検討への迅速な対応が可能になり、社会貢献に資すること極めて大であると考えられる。また、本方法は、ヒトだけではなく、歯を持つすべての動物への応用が可能であるので、放射線の生物影響に関する基礎研究に対しても汎用性が高い極めて有用な研究手段となり得る。

研究成果の概要(英文)： The Fukushima Daiichi nuclear power plant (FDNPP) accident in March 2011 released substantial amount of radionuclides into the atmosphere. Since the amount of radionuclide in the tooth is thought to be in parallel with the amount of systemic incorporation of radionuclide into the body during the period of tooth formation, we hypothesized that we could estimate the level of internal exposure to radiation by measuring the amount of radionuclide in the teeth. The object of this study is to establish the method for screen the amount of radionuclides in the teeth using imaging plate (IP). We examined the concentration of radioactive nuclides in the teeth formed before FDNPP accident. As a result, some of the teeth showed high QL values. Such teeth were observed in the teeth collected both from Fukushima prefecture and control prefectures. Most of these teeth with high QL values were filled with composite resin. Thus, this method is suitable for the teeth with healthy IP surface.

研究分野：硬組織薬理学

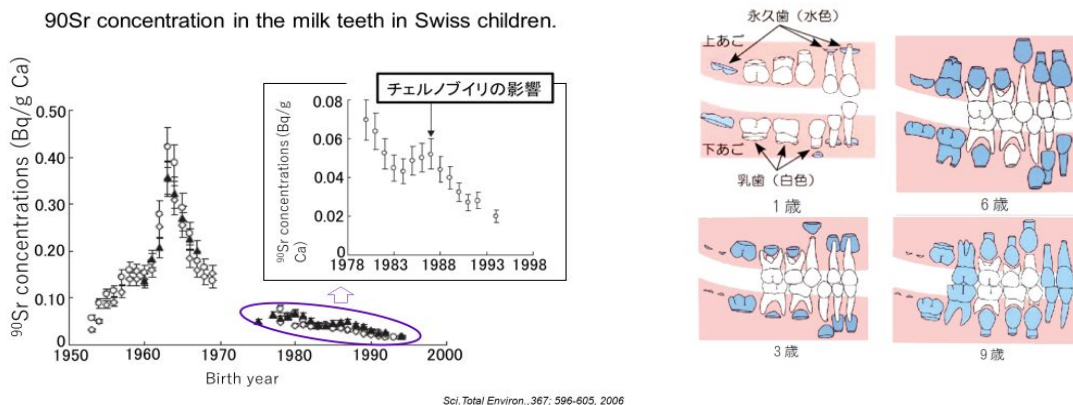
キーワード：福島第一原発事故

1. 研究開始当初の背景

放射性物質による環境汚染との関連でヒトの歯の中の放射性ストロンチウム 90 が測定された過去の例としては、1950-80 年代に行われた大気中核実験に関連して Starkey & Fletcher: Archs. Oral Biol. (1969)、Wolf et al: Archs. Oral Biol. (1973)、Glowiak et al: Environ. Pollut. (1977)、Gould et al: Int. J. Health Serv. (2000)、Mangano et al: Int. J. Health Serv. (2003) 等の報告が、またチェルノブイリ原発事故に関するものは Kulev et al: Sci. Total Environ. (1994)、Froidevaux et al: Sci Total Environ. (2006; 下図左) の報告が見られるのみである。今回の福島第一原発事故に関しても、過去の事例に学んだ、より詳細なデータを残すことは我々の社会的な責務と考えられるが、現在のところこのような試みはない。ヒトへの影響も含め、放射線の生物影響を評価するためには、その基礎として、個体ごとの被曝量を知ることが重要であるが、現在のところ、過去にまで遡ってそれらを推測できる有効な手段は限られている。

歯は形成されたのち交換期を除いて吸収を受けない非常に特徴的な器官であり(下図右) 形成期に取り込まれた物質や、放射線を浴びることで発生する炭酸ラジカルを長期に亘って歯質中に保持する性質がある。そこで我々は、歯の持つ生物学的な特性、即ち、記録性、非代謝性という特性を積極的に活用し、歯を一種の生体線量計とみなし、個人レベルでの被曝量の把握を目指す研究を継続して遂行している。

歯の形成時期



Sci. Total Environ., 367, 596-605, 2006

その一環として福島第一原発事故以降、旧警戒区域内で被災した家畜や野生動物から、歯や骨サンプルの採取を行い、ヒトの歯を分析評価するための方法論について検討してきた。その結果、被災動物の歯の中に、環境の汚染度に対応した Cs-137/134 や Sr-90 が取り込まれていることを見出した(図1)。さらに、それらの放射性物質は、歯や骨の形成期に取り込まれること、福島原発事故以前に形成された歯の中にも大気中核実験に由来すると考えられる微量な Sr-90 が存在することなどを確認している。それらの結果は、程度には大きな違いがあるにしても今回の原発事故に関連してヒトでも起こっている可能性が考えられる。一方で、我々は福島県歯科医師会をはじめとした関連諸機関との連携のもと、歯を用いた被曝量評価のために脱落した乳歯の収集を行っているが、放射線影響に対する社会的な関心は高く、数千本規模の歯が収集されている。今後さらに多くの歯の収集が見込まれ、それらの多くは福島第一原発事故後に形成された乳歯である。それらの歯に含まれる放射性物質の定量を行い、データの収集を行っているが、定量はゲルマニウム半導体検出器により線放出核種である Cs-137/134 を、低バックグラウンド 2 ガスフロー線測定装置により線のみ放出する Sr-90 を定量しているが、これらの方法は、非常に正確に放射性物質濃度を測定できる反面、ヒト乳歯のような放射性物質の絶対量が少ないサンプルではそもそも 1 本あたりの計測が困難であるうえサンプル処理が煩雑で、計測に非常に時間がかかることが難点であることが問題であり全数調査を行うことは極めて困難であるのが現状である。

図1 被災ウシにおける歯のCs, Srの定量

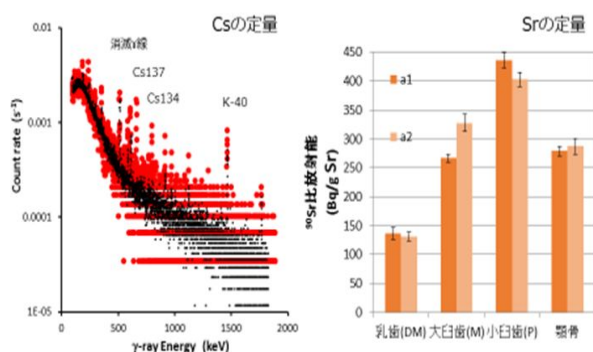
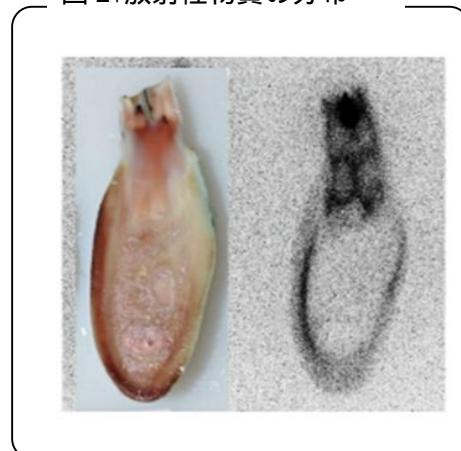


図2: 放射性物質の分布

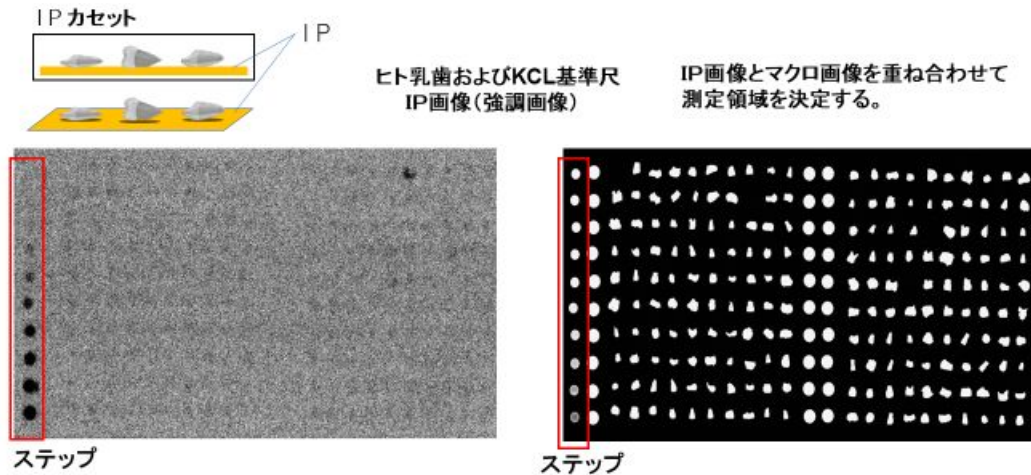


2. 研究の目的

本研究はこれら多数の歯に含まれる放射性物質濃度を精度高く、効率的にスクリーニングできる方法を確立し、精密に測定する必要がある歯を選別するための手法として用いることである。将来的には歯に限定せず、あらゆるサンプルで含有する放射性強度を推計できる評価法として広く活用することを目的とする。

3. 研究の方法

放射性物質の強度を QL 値としてとらえることができるイメージングプレート (IP) を用い、測定対象部位の黒化度の定量解析から、個々の歯の放射能強度を求め、必要に応じて従来用いていた Cs-137/134、Sr-90 の定量法を適宜併用し、核種の同定を行う。これにより IP 技術を活用した迅速な歯質中放射性物質のスクリーニング法を確立する。収集した歯の個人情報とマクロ写真をアーカイブ化したのち、非破壊で唇側あるいは頬側を IP 面に対面するように留置し、シリコン剤により埋没したのち、4 週間鉛ブロックで囲まれた空間におき含有放射性物質の IP への露光を行う (下図)。



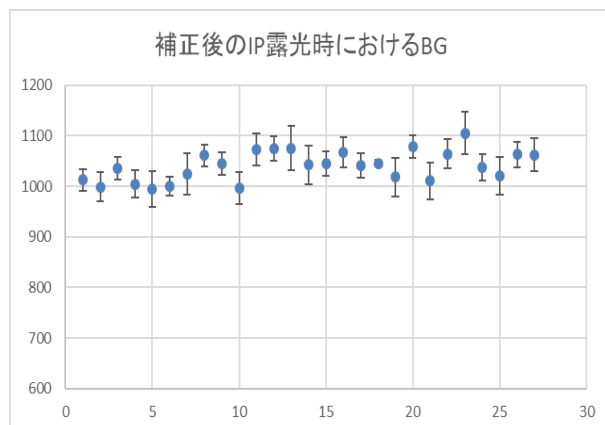
1 回の IP 測定ができる歯の数は IP の面積に依存し、本研究では 1 回あたりの測定は 200 個として実施した。個々の IP には測定時の絶対値のばらつきがあるため、基準となるステップを同時に測定し、IP 間の測定値を補正して比較検討した。基準となるステップは放射性同位体を一定割合含むことが知られているカリウムを含有する塩化カリウムを塩化ナトリウムと混合することで、放射性カリウム 40 として 0~1000mBq/g の範囲で濃度調整を行い、高さ 3 mm、直径 7 mm の円筒状の容器に填入して作成した。歯の放射能強度を示す QL 値は露光で得られた画像とスキャンされたマクロ画像を重ね合わせ、歯に相当する部分の ROI を求める画像解析により得た。IP 露光ごとのバックグラウンド (BG) の測定も併せて行い、BG の測定ごとの分布と、BG を差分したそれぞれの歯の QL 値を求めた。

研究開始時点で収集されている歯は主として福島第一原発事故前に形成された歯である。得られた歯ごとの QL 値を検討し、QL 値の上昇がみられた歯についてはアーカイブ情報から福島県に関連して起こっている事象なのかそうではないのかを検討した。IP では放射能強度は明らかにできるが残念ながら核種の同定は困難である。そこで、QL 値が高かった歯については、それらのマクロ的特徴とガンマ線測定、ベータ線測定を行い、QL を引き上げる原因となった核種の推定を行った。これらの検討から、本研究で開発した IP による歯に含有される放射性物質のスクリーニングを行う上での条件の検討を行った。

4. 研究成果

(1) バックグラウンドの検討

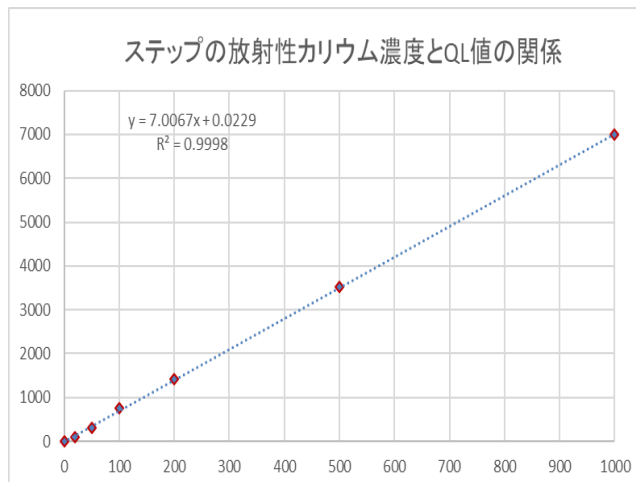
本研究では延べ 5400 本の歯について IP による検討を行った。IP 一枚あたり 200 本の歯を検討したため合計 27 回 IP による測定を行った。歯のサンプルがない埋没剤の部分の 7 から 10 点を BG として求めた。IP 間のばらつきを (2) で示す回帰線を用いて補正した後の BG の QL 値を右図に示す。BG の平均値は QL 値で 1000 から 1100 の間に分布し、SD は 20~40 程度であった。この結果は BG の測定値は測定ごとで若干なりとも変動することを示しているが、これは測定時の環境中放射性物質濃度の季節変動や遮蔽の程度の違いなどの影響があると考えられる。そのため、データは IP



間のばらつきを補正するだけでは不十分で、BG を差し引いた QL 値を用いることが望ましいと考えられた。

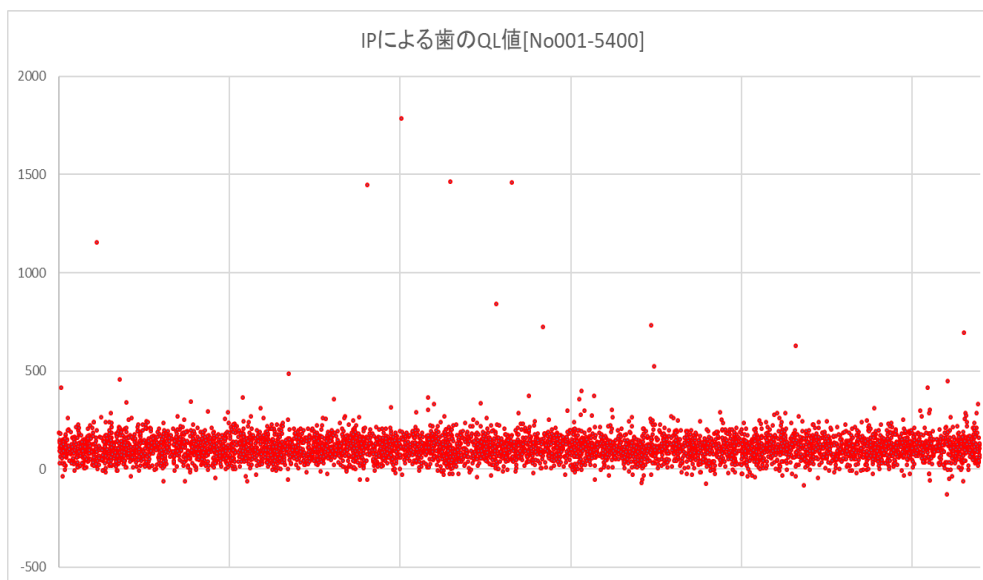
(2) ステップの妥当性の検討

右に用いた IP 9 枚から求めたステップの回帰直線を示す。BG 差引後の放射性カリウム 40 濃度と QL 値との間には決定係数 0.999 以上の強い相関が認められ、IP 間のばらつきの補正にはこの回帰式を用いて行うことは妥当と考えられた。後述するように実際の歯の QL 値は 2000 以下で分布している。今回のステップはそれよりおよそ 3 倍以上の範囲で直線性を保っている。本研究では主として福島第一原発事故前に形成された歯を検討しているが、もしも今後の検討で事故後に形成された歯に仮に QL 値の上昇を認めたとしても 3 倍程度までの上昇は、精度よく測定できると考えられる。



(3) 収集歯における分布

下図左に研究期間中の収集歯における QL 値を示す。QL 値は平均 107.3 で SD は 73.8 であった。ほとんどの収集歯は QL 値が 200 以内を示したが、平均 + 3 SD を超える歯が 0.5% 程度認められた。興味深いことに、これらの高い値を示した歯は福島県と福島県外双方で同程度の頻度で認められ、それらを個々に精査すると、それらの歯は IP に面した歯面に充填などの何らかの処置がなされていることが判明した。つまり、福島県の内外に関係なく平均値 ± 3 標準偏差から外れてくる歯が一定数あり、それらの歯には修復などを認め、歯の形成の影響とは本質的に無関係であるものと考えられた。これらの事実から、本スクリーニングにおいて IP 面に修復などがある歯については修復材料の影響を視野に入れて検討する必要があること、系統的な検討時は IP 面が健全な歯を抽出して実施したほうが望ましいことが明らかとなった。



また、環境にはウラン系列、トリウム系列や放射性カリウムといった自然放射能がすでに形成時に取り込まれていると考えられる。本研究で得られた平均 107.3 という QL 値は何に由来するのかを明らかにするために、平均的な QL 値を示した歯を数本ひとまとめにしてガンマ線の測定を行ったところ右に示すように自然放射性物質の存在が明らかとなった。したがって、普遍的に示された QL 値の上昇は、これらの放射性物質によるものと考えられた。

Concentrations of natural radionuclides in the teeth				
	214Pb (226Ra) (mBq/g)	212Pb (228Th) (mBq/g)	40K (mBq/g)	number of teeth for one sample
歯-1	1.8 ± 0.6	0.82 ± 0.24	6.1 ± 3.5	8
歯-2	2.6 ± 0.9	1.50 ± 0.25	10.3 ± 5.6	6
歯-3	2.3 ± 1.1	LTD	7.5 ± 2.8	6
歯-4	3.3 ± 0.9	LTD	7.7 ± 3.7	5

歯にはウラン系列・トリウム系列の娘核種、および⁴⁰Kが存在する

(4) まとめと今後の展望

本研究では主として福島第一原発事故前に形成された歯を対象としてスクリーニング法の検討を行ったが、今後は原発事故後に形成された歯がコンスタントに収集されてくる。本スクリーニングにより提供者に含有放射性物質濃度の程度を知らせることができ、不要な社会不安の払拭に役に立てることができる。一方で含有放射性物質濃度が高かった場合は、詳細な検討への迅速な対応が可能になり、社会貢献に資すること極めて大であると考えられる。また、乳歯の提供者本人にもまして低線量被曝の影響を危惧している保護者へ、速やかに客観的な結果を返すことで余計な心配を強いることがなくなることも大きな社会的な意義がある。また、本方法は、ヒトだけではなく、歯を持つすべての動物への応用が可能であるので、放射線の生物影響に関する基礎研究に対しても汎用性が高い極めて有用な研究手段となり得る。また、迅速で簡便な方法であるので、大量のデータを蓄積しアーカイブ化することが容易になり、今後、放射線被曝の評価に関しても日本国内に対してだけでなく国際的にも有用な情報を提供することも可能になる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計3件)

Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu ukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda. 90Sr Specific Activity of Teeth of Abandoned Cattle after the Fukushima Accident –Teeth as an Indicator of Environmental Pollution. Journal of Environmental Radioactivity ,183 (March 2018) 1-6:2018.DOI:10.1016/j.jenvrad.2017.12.005 査読あり

K. Koarai, Y. Kino, J. Nishiyama, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Estimation of environmental pollution after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident by measurement of radioactivities in teeth, Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, 202-207 (2017). https://www.i-repository.net/il/meta_pu_b/G0000128KEKpapers 査読あり

Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto & Hisashi Shinoda. 90Sr in teeth of cattle abandoned in evacuation zone: Record of pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident. Scientific reports 6:24077 | DOI: 10.1038/srep24077 (2016) IF5.228 Published: 05 April 2016 査読あり

[学会発表](計9件)

Toshitaka Oka, Atsushi Takahashi, Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Tsutomu Sekine, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Toshihiko Suzuki, Jun Aida, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Hisashi Shinoda. Improvement of the electron spin resonance spectroscopy detection limit for tooth dosimetry. EPR BioDose 2018, 2018/6/11-15, Munich, Germany

Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Junpei Nishiyama, Hiraku Kaneko, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Shimizu Yoshinaka, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda. Role of animal teeth for estimation of environmental pollution of Sr-90 and Cs-137 just after the Fukushima Daiichi Power Plant Accident. The 18th Radiochemical Conference (RadChem2018), 2018/5/13-18, Marianske Lazne, Czech (Oral)

Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Yusuke Urushihara, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Hideaki Yamashiro, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda. Assessment of 90Sr pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident by measurement of cattle teeth. 4th International Conference on Environmental Radioactivity (ENVIRA2017), Vilnius, Lithuania, 2017/5/29-6/2.

K. Koarai, Y. Kino, J. Nishiyama, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Estimation of environmental pollution after the Fukushima Daiichi Nuclear Power

Plant accident by measurement of radioactivities in teeth, Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, 202-207 (2017).

J. Nishiyama, K. Koarai, Y. Kino, Y. Shimizu, A. Takahashi, T. Suzuki, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Correlation of Sr-90 activity concentration between the tooth and bone of cattle suffered from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, Proceedings of the 18th Workshop on Environmental Radioactivity, 196-201 (2017).

K. Koarai, Y. Kino, A. Takahashi, T. Suzuki, Y. Shimizu, M. Chiba, K. Osaka, K. Sasaki, T. Fukuda, E. Isogai, H. Yamashiro, T. Oka, T. Sekine, M. Fukumoto, H. Shinoda. Detection of 90Sr in the teeth of cattle contaminated by environmental pollution from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plant accident. 9th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC9). Marina congress center, Helsinki, Finland. 2016/8/28-9/2

Toshitaka Oka, Atsushi Takahashi, Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Tsutomu Sekine, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Toshihiko Suzuki, Ken Osaka, Hisashi Shinoda/ Electron spin resonance dosimetry using deciduous teeth of Japanese children/ EPR BioDose 2015/ 4-8, Oct, 2015/ New Hampshire, USA

Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Atsushi Takahashi, Toshihiko Suzuki, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Ken Osaka, Keiichi Sasaki, Tomokazu Fukuda, Emiko Isogai, Toshitaka Oka, Tsutomu Sekine, Manabu Fukumoto, Hisashi Shinoda/ Determination of Sr-90 specific activity in the teeth of cattle in the evacuation zone of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident/ 15th International Congress of Radiation Research(ICRR2015)/ 25-29, May, 2015/Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan

Toshitaka Oka, Atsushi Takahashi, Kazuma Koarai, Yasushi Kino, Tsutomu Sekine, Yoshinaka Shimizu, Mirei Chiba, Toshihiko Suzuki, Ken Osaka, Hisashi Shinoda/ Electron spin resonance study for dose assessment of milk teeth/ 15th International Congress of Radiation Research (ICRR2015)/ 25-29, May, 2015/Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan

6 . 研究組織

(1) 研究分担者

木野 康志 (KINO, Yasushi) 東北大学・理学研究科・准教授・00272005

岡 壽崇 (OKA, Toshitaka) 東北大学・高度教養教育・学生支援機構・助教・70339745

篠田 壽 (SHINODA, Hisashi) 東北大学・歯学研究科・名誉教授・80014025

千葉 美麗 (CHIBA, Mirei) 東北大学・歯学研究科・講師・10236820

清水 良央 (SHIMIZU, Yoshinaka) 東北大学・歯学研究科・助教・30302152

小坂 健 (OSAKA, Ken) 東北大学・歯学研究科・教授・60300935

鈴木 敏彦 (SUZUKI, Toshihiko) 東北大学・歯学研究科・准教授・70261518

(2) 研究協力者

棚原 朗 (TANAHARA, Akira) 琉球大学・理学部・教授・00217100

三浦 富智 (MIURA, Tomisato) 弘前大学・保健学研究科・准教授・20261456

小荒井 一真 (KOARAI, Kazuma) 東北大学・理学研究科・大学院生・博士課程・学振研究員

西山 純平 (NISHIYAMA, Jyunpei) 東北大学・理学研究科・大学院生・修士課程

小野 拓実 (ONO, Takumi) 東北大学・理学部生