

2022年度 博士前期課程学位論文要旨

学位論文題名 (注: 学位論文題名が英語の場合は和訳をつけること)

環境中に放出された希土類元素ガドリニウムの環境動態に関する研究

学位の種類: 修士 (放射線学)

東京都立大学大学院

人間健康科学研究科 博士前期課程 人間健康科学専攻 放射線科学域学域

学修番号 21897710

氏名: 坂田 愛実

(指導教員名: 井上 一雅)

注: 1 ページあたり 1,000 字程度 (英語の場合 300 ワード程度) で、本様式 1~2 ページ (A4 版) 程度とする。

1996 年以来、先進国を中心として河川に含まれる希土類元素ガドリニウムの濃度が他の希土類元素と比較して顕著に高いことが報告されている。この原因は、病院で人体断層撮影時に利用される MRI (Magnetic Resonance Imaging: 磁気共鳴画像診断法) のガドリニウム造影剤であるとされている。ガドリニウム造影剤は人体へ静脈投与され、尿として排泄された後、下水処理施設で完全に除去されずに河川へ排出される。MRI 保有台数はアメリカ (12,137 台) に次いで日本 (6,578 台) は世界第 2 位であり、人口 100 万人あたりの MRI 装置の設置数において日本は世界で最も高い (55.21) ため、ガドリニウムによる環境汚染が懸念される。ガドリニウムは原子番号 64 の重金属であり、生体内必須元素と拮抗することで強い毒性を示す。造影剤としての利用においては、キレート構造を付与することで人体への投与から排泄までの安全性が確保されている。しかし、ガドリニウム造影剤に強い紫外線 (220 ~ 500 nm) を照射すると、キレート構造が破壊されるため、人体から排泄されたガドリニウム造影剤は、河川や海に流れ込む際に分解される可能性がある。加えて、キレート構造が破壊されたガドリニウムは、水生生物の生命に悪影響を及ぼし、さらには水生生物の体内に蓄積されたガドリニウムをヒトが摂取することで健康被害をもたらす懸念がある。今後の高齢社会の進展や医療の発達により、造影 MRI 検査での検査数の需要増加が見込まれ、付随して河川等におけるガドリニウム汚染も悪化していくことが懸念される。2019 年に実施されたドイツの調査では、ファーストフード店の飲料水から最大 79 倍の基準値を上回る顕著なガドリニウムが検出されており、病院から排出されたガドリニウムが飲用水にまで影響を及ぼしている可能性が高いという報告がある。先行研究では、先進国を中心とした下水処理施設内の処理水や河川水におけるガドリニウム濃度の調査が行われており、ガドリニウムの起源について、MRI 検査用造影剤であると示されている。しかし、これらの環境調査は断片的であり、排尿から人体暴露までの一連の環境動態を明確にした研究は報告されていない。特に、日本においてはガドリニウムに関する調査研究自体がほとんど実施されていない現状である。そこで、本研究では、東京都内全域において河川水を水源とする飲用水と現在販売されている容器入り飲用水 (ミネラルウォーター類) の調査の実施により、現在の東京都におけるガドリニウム汚染の実態把握を行った。さらに、過去に都内で実施した水再生センター処理水および河川水の調査結果および諸外国から報告されている結果と比較し、一連の環境動態を明確化することを目的とした。

公園の飲用水の調査は、東京都内の水飲み場が設置されている葛飾区、足立区、板橋区、東村山市、三鷹市、青梅市、狛江市の公園 35 地点において 2 L の採水を行った。採水した水は濃縮した後、ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry: 誘導結合プラズマ質量分析法) で分析し定量した。得られたサマリウムとテルビウムの値からガドリニウム

濃度異常の程度を表す Gd_{SN}/Gd_{SN}^* を算出した。また、東京都全域のガドリニウム濃度分布をマッピングした。

飲用水中のガドリニウム濃度は、水再生センター放流口が浄水場取水口より上流に位置する場合、もしくは位置的に近い場合において濃度が高くなる傾向を示した。都内の水再生センターの多くは河川へ処理水を放流しているため、その放流口と下流域に位置する取水口の位置関係により濃度が依存すると考えられた。家庭に配給される飲用水中のガドリニウム濃度の異常性を示す Gd_{SN}/Gd_{SN}^* では、試料 35 地点中 32 地点で 1.4 以上を示した。23 区内外で結果を比較した場合、23 区外（中央値 3.14）と比較して 23 区内（中央値 3.43）で高い傾向を示した。2018 年 4 月現在の報告で、東京都における MRI 装置の設置台数は、23 区内で 556 台であるのに対し、23 区外では 150 台と 23 区内で多い。これに伴い、造影剤の使用量も増加するため、MRI 装置設置台数の観点からも Gd_{SN}/Gd_{SN}^* が高値を示した。

ミネラルウォーターのガドリニウム濃度は、全ての試料で低い濃度を示した。しかし、試料 20 種類中 4 種類の一部ミネラルウォーターでは Gd_{SN}/Gd_{SN}^* が本研究で設定した閾値 1.4 以上を示した。これらの対象サンプルは採水地がそれぞれ異なるものの、硬度が 15 - 38 mg/L と低い硬度を示し、ミネラルウォーターの種類に関連したものであった。つまり、希土類元素 (REE) の由来は各地域における土壌等の基盤地質のものであり、人為的な介入がない場合でも天然の REE ないしガドリニウムは微量ではあるが、基盤地質によるミネラルウォーターの種類に応じて存在していることが確認できた。このため、希土類元素の相対的存在度は、基盤地質の影響により変化するものの、飲用水中のガドリニウムの存在度は隣接する他の希土類元素よりも明らかに高く、人為的なものであると考えられた。

本研究により、ガドリニウム造影剤は排尿後、水再生センターで沈殿除去されずに河川等に放流され、その後、水道水源として浄水施設を通過してガドリニウム含有の飲用水として配給されている高い可能性を示した。