

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 17 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24510067

研究課題名(和文) 原発由来等のトリチウムが生体に及ぼす影響解明のための定量評価法の構築

研究課題名(英文) Construction of the Estimation Method for the Effect of Tritium derived from Nuclear Power Plant on the Human Body

研究代表者

今泉 洋 (IMAIZUMI, HIROSHI)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：80126391

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：トリチウム(T)が人体に及ぼす影響を定量的に評価できる方法を構築するため、各種アミノ酸や有機化合物とTとの間で起こる水素同位体交換反応を、温度などを変えて観測した。その結果、自由水型Tや有機結合型Tなどとなって、人体に取り込まれることがわかり、水素同位体交換を考慮に入れた場合、その影響はこれまでの試算と比べると最大で数%程度増加する可能性が高いことがわかり、本研究で構築した解析手法は、放射線加重係数を算出する上で有用であることがわかった。

研究成果の概要(英文)：In order to construct the estimation method for the effect of tritium (T) derived from nuclear power plants on the human body, the hydrogen isotope exchange reaction (the T-for-H exchange reaction) between each amino acid (or each organic compound) and HTO was observed at several temperatures and several prescribed times. Moreover, after the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Plants, some waters in lakes around Fukushima prefecture and Niigata city were analyzed. As the results, T in HTO was incorporated into human body as Organic Bonded T etc. It is found that considering the T-for-H exchange reaction, the effect of the exchange reaction to human body is slightly larger than the result obtained from the current method, and that the estimation method in this work is useful to calculate the Radiation Weighting Coefficient. It is also found that the effects of the accident on Niigata city is so small.

研究分野：応用放射化学、分析化学

キーワード：トリチウム 有機結合型トリチウム 自由水型トリチウム 被曝線量 放射線加重係数 水素同位体交換反応

1. 研究開始当初の背景

今回の原発事故で、放射線の最大影響となった15日の朝から、発電所正門でも十数mSv/hを観測した。当研究室では新潟大学工学部屋上で継続的に降水を観測していたが、15日当日、雨が降っていたこともあり17時～18時にかけて通常(0.5Bq/dm³程度)の観測値の20倍以上のトリチウム(T)濃度を観測した。このときの風向きなどを考慮すると、10時間ほどかけて、放射性物質を含んだブルームが新潟市にも到着したものと考えられる。このように、福島第一原子力発電所の爆発の影響が、200km以上離れた新潟市にも及ぼされたことになる。この影響は、6月頃まで雨水中のT濃度の増加(平年と比較して)となって現れた。

以上から、新潟県などの福島県近隣県の原発事故による影響を定量評価する手法の構築が求められる。

2. 研究の目的

上記の背景を考慮に入れ、以下ことを目的とした。

(1) 福島県内の湖沼水や新潟市内の湖沼水を採取し、試料水中のT濃度や各種イオン濃度などを継続的に測定することで、福島第一原発事故が福島県や新潟市の環境に及ぼす影響を定量的に明らかにし、また、今後の予測に役立てる。

さらに、新潟市については、年間の降水の挙動を見るためとT濃度のバックグラウンド値を見るため、一月ごとの降水(疑似地下浸透水¹⁾)を採取する。

(2) 環境に放出されたTは、ほとんどがHTO分子の形でH₂Oと同じ挙動をするため、放出Tが体内に取り込まれるとT-for-H型の交換反応²⁾を起こすと考えられる。そのため、Tの影響を定量評価するためには、T-for-H交換反応を定量的に解析する必要がある。そこで、体内に多く存在するアミノ酸などのT-for-H交換反応を定量的観測することで、

今回の事故で生体内に取り込まれたTの影響を定量できる手法を確立する。

3. 研究の方法

3-1. 疑似地下浸透水の採取

新潟大学工学部屋上で、月間降水を疑似地下浸透水として採水した。

3-2. 実験方法

3-2-1. 試料水のT濃度測定

採取した試料水には、いろいろな不純物が含まれているため、この試料水を蒸留して、不純物を除去した。

3-2-2. トリチウム電解濃縮

本研究では、東京都立産業技術研究センター所有のSPE電解濃縮装置と同様の装置を作成し、性能を評価した上で用いた。

3-2-3. 各種測定装置

本研究において、下記の装置を用いて種々の物質濃度を測定した。

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ、原子吸光分析装置、蛍光光度分析装置、イオンクロマトグラフィー、ポータブルマルチメーター、pH/イオンメータ(現地測定用)

3-2-4. 湖沼水の採水地点

湖沼水の採水地点は以下の通りである：猪苗代湖(3地点) リクリエーション公園、崎川浜、天神浜、秋元湖、五色沼、はやま湖、佐潟(新潟市)、十六沼、鳥屋野潟(新潟市)。

3-2-5. 湧水の採取と採取地点

本研究で、山岳地帯などにある以下の湧水を採取した。

1.坊平お清水、2.御田の神、3-4.蔵王山山頂付近、5.百貫清水、6.金明水(安達太良山)、7.黄金清水

3-2-6. 実験に使用する試薬および測定用本実験において、用いた主な試薬などを以下に示す：HTO水、液体シンチレータ。

3-2-7. 降水の精製

採取した降水は、蒸留精製後、電解濃縮¹⁾

した。

3-3. 水素同位体交換反応(T-for-H 交換反応)の観測

T-for-H 交換反応は真空ラインを使って、固気反応(気体-固体反応)の形で、種々の温度で観測した。気体側が HTO 蒸気、個体側が各種有機化合物(アミノ酸)試料である。

3-3-1. HTO 水

市販されている HTO 水(比放射能 1.9×10^8 Bq \cdot g⁻¹)を蒸留水で希釈したものをを用いた。

3-3-2. 固体試料

市販の特級試薬を乳鉢ですりつぶし、53 ~ 75 μ m の分析ふるいにかけて、100 程度で恒量になるまで真空乾燥して試料に供した。試料物質には、主に各種アミノ酸を用い、反応量の経時変化を追究した。また、異なる温度でも観測し、温度依存性をみた。

3-3-3. 速度定数(k)の算出

観測で得られたデータと以前発表した A¹⁴McKay 法³⁾を使って、その固体物質の速度定数(k)を算出する。得られた k の Arrhenius プロットから、活性化エネルギーを算出し、反応の温度依存性を定量評価した。このようにして、種々のアミノ酸に取り込まれる T の状態を観測し、定量評価法の構築を試みた。

4. 研究成果

4-1. 原発事故前後の降水 T の推移

2011 年 3 月に起きた福島原発事故前と事故後の数年間における新潟市での降水中(疑似地下浸透水)の T 濃度変化を Fig.1 に示す。

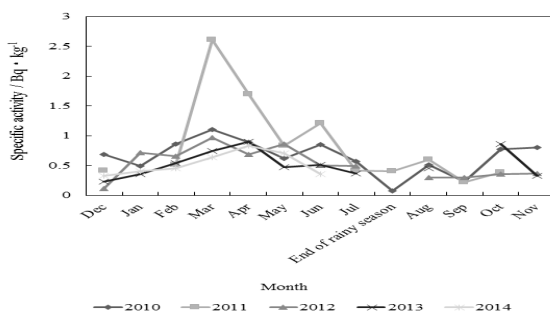


Fig.1 Month-dependence of tritium concentration in precipitation in Niigata city (2010 ~ 2014)

新潟市は季節風の影響を大きく受ける地域で、その降水は、春先にかけて T 濃度が高くなる傾向(スプリングピーク⁴⁾)のあることが知られている。しかし、Fig.1 では、事故直後の 3 ~ 6 月の T 濃度は、他の時に比べ突出して大きいことがわかる。これは、原発事故の影響が有意に現れたことを示していると判断できる。この図から、2011 年度の春を除くと、ほぼ年間を通して季節変化が一様であり、降水に対する T の影響は、2011 年 7 月以降は認められなくなったことがわかる。

4-2. 各湖沼水の測定結果

各湖沼において採取した湖沼水中の T 濃度を Fig.2 に示す。

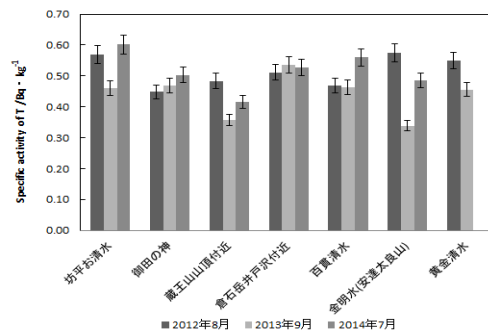


Fig.2 Specific activity of T in each lake from May, 2013 to May, 2014.

この図に示されるように、各湖沼水中の T 濃度は全体として、新潟市での年平均 0.50Bq/kg とあまり変わってないことがわかる。ただ、秋元湖などの閉鎖型の湖では、蒸発などによる T 濃縮が行われる可能性が高く、また、降雨などにより希釈される状況にあり、このような湖では、水の出入りのある湖よりも T 濃度の変動が大きいと考えられる。なお、各種イオンについても、大きな変動は認められなかった。

4-3. 各湧水の測定結果

2012 ~ 2014 年に採取した各地点での湧水の T 濃度を、Fig.3 に示す。

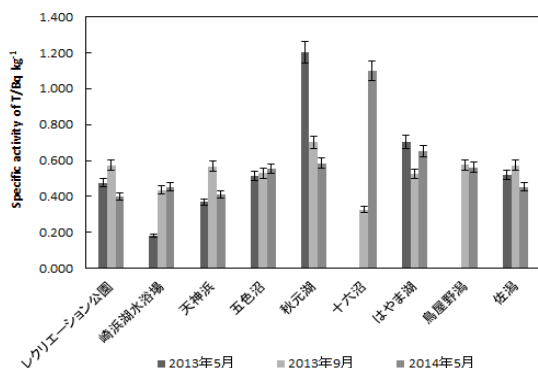


Fig.3 Specific activity of T in in each springwater from May, 2013 to May, 2014.

この図から、東日本大震災後の3年間に福島県の山岳地帯を中心に採取した湧水中のT濃度は、事故後3.5年を経ても湧水中のT濃度には大きな変化は見られないことがわかる。したがって、山の湧水に与えたTの影響は見られないと考えられる。なお、湖沼水同様、各種イオンの大きな変動は認められなかった。

4-4. T-for-H 交換反応を用いた T の影響評価解析法の構築

4-4-1. 各種アミノ酸の反応性

3-3.に示す方法で、各種アミノ酸とHTO蒸気との反応を観測した。得られた観測データにA^m-McKay法³⁾を適用して、各物質のT-for-H交換反応性を *k* として求めた。その結果をTable 1に示す。

このようにして、HTO 蒸気と各種アミノ酸との T-for-H 交換反応の観測データにA^m-McKay プロット法を適用することで、各種アミノ酸中の COOH 基と NH₂ 基との反応性を非破壊的・実態的・速度論的に定量評価することができた。

以上の方法を用いることで、アミノ酸などの有機化合物に T が入るときの速度を相互比較するデータが得られることがわかった。

4-4-2. T 影響の定量評価法

物質に取り込まれた T には、自由水型

(FWT)と有機結合型(OBT)があり、さらに後者は、非交換型 OBT と交換型 OBT とに分類する。交換型には-COOH, -OH, -NH₂などの官能基の H が相当し、非交換型にはベンゼン環上の H や鎖状結合炭素上の H などが相当する。従って、それぞれの H が T と入れ代わったものが、非交換型 OBT と交換型 OBT とに相当することになる。

物質中の H が T と入れ代わる(T-for-H)反応と物質中の T が H と入れ代わる(H-for-T)反応の *k* は、非交換型では H-for-T のものよりも大きいことが実験からわかった。その比は、15~20%程度 H-for-T 反応の方が大きく、非交換型では一度取り込まれた T は離れにくくなることが示された。

Table 1 Rate constants (*k*) for COOH and NH₂ groups in each sample material and activation energy (*E_a*)

| Material Structural formula | | <i>k</i> /10 ⁻² h ⁻¹ | | | | | <i>E_a</i> kJ/mol |
|--------------------------------|------------------------------------|--|------|------|------|------|--------------------------------|
| | | 25°C | 36°C | 50°C | 60°C | 70°C | |
| L-glycine | <i>k</i> _{NH₂} | 3.3 | 3.9 | 5.9 | 7.2 | 8.2 | 18 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.9 | 5.4 | 10 | 11 | 13 | 24 |
| L-α-alanine | <i>k</i> _{NH₂} | 3.1 | 3.7 | 5.3 | 8.4 | 12.5 | 26 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.8 | 5.3 | 14 | 20 | 37 | 44 |
| L-aminobutyric acid | <i>k</i> _{NH₂} | 2.7 | 3.5 | 5.6 | 7.3 | 8.5 | 23 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.7 | 5.1 | 12 | 17 | 21 | 35 |
| L-norvaline | <i>k</i> _{NH₂} | 2.5 | 3.3 | 5.5 | 7.3 | 7.9 | 23 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.6 | 4.8 | 11 | 16 | 20 | 35 |
| L-valine | <i>k</i> _{NH₂} | 2.3 | 3.0 | 5.3 | 6.7 | 7.5 | 24 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.3 | 4.2 | 10 | 15 | 17 | 34 |
| L-leucine | <i>k</i> _{NH₂} | 2.4 | 3.2 | 5.4 | 6.9 | 7.7 | 24 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.5 | 4.5 | 11 | 16 | 19 | 35 |
| L-2-phenylglycine | <i>k</i> _{NH₂} | 3.5 | 4.0 | 6.0 | 7.6 | 8.7 | 18 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.7 | 5.6 | 14 | 17 | 18 | 33 |
| L-2-phenylalanine | <i>k</i> _{NH₂} | 3.4 | 4.0 | 5.8 | 7.6 | 8.2 | 18 |
| | <i>k</i> _{COOH} | 3.9 | 5.6 | 14 | 16 | 18 | 33 |

一般に、人体には水分 70%、タンパク質 16%が存在する。体内への主たる T の取り込みは水からであるので、水からタンパク質への移動(T-for-H 交換反応)を考える。タンパク質は主に、アミノ酸で構成される。人体(60kg)中に存在するアミノ酸における C-H 結合の数と水における O-H 結合の数を計算し、さら

に、各 C-H 結合の数を求めることで、今回の原発事故から環境中に放出された T の濃度の最大値を見積もって計算すると以下の通りとなる。

水中の O-H 結合の数が、アミノ酸中の脂肪族と芳香族の C-H 結合に対する比は、それぞれ 12.37%と 2.087%と計算できる。そこで、水素同位体交換(T-for-H 型)反応における移行係数は次式の通りとなる。

$$0.1237 \times 0.15 \times 0.00125 + 0.02087 \times 0.24 \times 0.0125 = 0.00002954$$

ここで、0.1237 は C-H 結合の割合、0.15 は HTO からタンパク質に移行する速度の比、0.00125 は HTO 水からタンパク質へ移行する平衡量の割合であり、この 3 つが脂肪族に関わる値である。また、同様に芳香族については、「0.02087=C-H 結合の割合」、「0.24=HTO からタンパク質に移行する速度の比」、「0.00125=HTO 水からタンパク質へ移行する平衡量の割合」となる。

したがって、自由水型 T から非交換型 OBT への移行係数を、上で算出した 0.000030 を用いると、今回の環境中の T 増加分を考えた場合、T-for-H 型の交換反応を考慮に入れた T の内部被曝は、 $1.2 \times 10^{-8} \mu\text{Sv}$ と算出でき、これがこれまでの計算値への増加分となる。以上から、今回の原発事故から放出された T の影響は、かなり小さいことになる。本研究の手法を使うと、体内に対する T の影響を定量的に表すことができることがわかった。

4-5. まとめ

平成 24~26 年の 3 年間で行った研究から、主に以下のことがわかった。

- (1) 降水への原発事故の影響は T から見る限り、なくなったと考えられる。
- (2) 山岳地帯での各地点の湧水中の濃度などから、湧水に与える福島第一原発事故の影響について、T については、山岳地帯の湧水に与える原発事故の影響はほとんどなかった。

(3) T-for-H 交換反応において、本研究で用いた手法を使うと、低温付近での物質の反応性を求めることができる。

(4) 自由水型 T から非交換型 T への移行係数は 0.000030 であり、この移行係数を用いて、今回の原発事故による新潟市付近の T の内部被曝を算出すると、 $1.2 \times 10^{-8} \mu\text{Sv}$ の増加となった。従って、今回の原発事故から放出された T の影響は、かなり小さい。

< 引用文献 >

- (1) 斎藤正明, 今泉洋, 高篠静香, *地下水技術*, **43**, 1-6(2001)
- (2) N. Kataoka, H. Imaizumi, N. Kano, *J. Nucl. Sci., Tech.*, **49**, Nos.7-8, 667-672(2012)
- (3) Minoru Okada, Hiroshi Imaizumi, *Radiochim. Acta*, **37**, 161-164(1984)
- (4) Y. Jiao, H. Imaizumi, N. Kano, *J. Environmental Sci., and Eng.*, **A1**, 1218-1225(2012)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 13 件)

- (1) Ying Wang, Noriaki Kataoka, Ryuta Yamada, Minami Watanabe, Shogo Morita, Hiroshi Imaizumi, Naoyuki Kanda, Naoki Kano, "Investigation of Tritium and Radiocaesium in Spring Water and Short Precipitation After the accident of Fukushima Nuclear Power Plant", RADIOISOTOPES, 査読有り, (in press)
- (2) 山田龍太, 渡辺南, 王瑩, 片岡憲昭, 森田尚悟, 今泉洋, 狩野直樹, "台風時における短期降水中のトリチウム濃度と各種イオンの動態解析", RADIOISOTOPES, 査読有り, 掲載決定
- (3) Noriaki KATAOKA, Naoyuki KANDA, Hiroshi IMAIZUMI, Naoki KANO, "Evaluation of the Reactivity of L-tyrosine in the T-for-H Exchange Reaction at Low Temperature", RADIOISOTOPES, 査読有

り, **63**, 429-434(2014), (他 10 件)

[国際会議] (計 5 件)

(1) N.Kataoka, H.Imaizumi, N.Kano, W.Ying, “The effect of the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants on Niigata city based on tritium concentration in precipitation”, The 3rd International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity, p172, 11-12th September (2014), Barcelona, Spain,

(2) N.Kanda, H.Imaizumi, N.Kano, N.Kataoka, “Effect of the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants on Lakes in Fukushima and Niigata”, Asian and Oceanic Congress on Radiation Protection (AOCR-4), PP7-20, 14-15th, May (2014), PWTC, Kuala Lumpur

(3) N.Kataoka, R.Yamada, H.Imaizumi, N.Kano, W.Ying, “Tritium Behavior in the Precipitation from 2010 to 2013 in Niigata and the Investigation of T in Several Mountains in and around Fukushima”, Asian and Oceanic Congress on Radiation Protection (AOCR-4)”, OP7-5, 14th, May (2014), PWTC, Kuala Lumpur

(他 2 件)

[学会発表] 国内学会(計 22 件)

(1) 渡辺南, 山田龍太, 王螢, 今泉洋, 狩野直樹, 齋藤正明, “降水中のトリチウム濃度と各種イオン濃度を用いた気団動態解析”, 第 51 回アイソトープ・放射線研究発表会, 1a-I-04, 2014 年 7 月 7 日(東京大学弥生講堂)

(2) Wang Ying, AOTSUKA Jun, IMAIZUMI Hiroshi, KANO Naoki, “Kinetic Reaction Analysis of the Pyridine Derivatives at Body Temperature”, 第 51 回アイソトープ・放射線研究発表会, 1a-I-04, 2014 年 7 月 7 日(東京大学弥生講堂)

(3) 片岡憲昭, 山田龍太, 相馬享之, 渡辺南, 今泉洋, 狩野直樹, 齋藤正明, 加藤徳雄, 石井吉之, “福島県における湖沼のセシウム

並びにトリチウム濃度測定から見た福島第一原発事故の影響”, 日本原子力学会「2013 年秋の大会」”, D42, 2013 年 9 月 4 日, 八戸工業大学

(4) 青塚潤, 今泉洋, 狩野直樹, “T-for-H 交換反応を用いた各種ピリジン誘導体の速度論的反応解析と反応性推定への応用”, 第 50 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2p-I-01, 2013 年 7 月 4 日(東京大学弥生講堂)

(他 18 件)

[受賞] (1 件)

(1) 齋藤正明, 林貴信, 錦善則, 高田茂, 今泉洋, “放射能測定の信頼性を向上させるトリチウム電解濃縮装置開発”, 文部科学大臣表彰科学技術賞(開発部門), 平成 25 年 4 月 16 日, 文部科学省講堂

6 . 研究組織

(1)研究代表者

今泉 洋 (IMAIZUMI Hiroshi)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号 : 8 0 1 2 6 3 9 1

(2)研究分担者

狩野 直樹 (KANO Naoki)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号 : 0 0 2 7 2 8 7 5

(3)連携研究者

齋藤 正明 (SAITO Masaaki)

地方独立行政法人東京都立産業技術研究センター・主任研究員

研究者番号 : 9 0 4 6 3 0 8 3