

平成 22 年 5 月 31 日現在

研究種目： 基盤研究 (C)
 研究期間： 2007～2009
 課題番号： 19591441
 研究課題名 (和文) 医療放射性廃水の膜分離浄化システムの開発

研究課題名 (英文) Development of Membrane Treatment System of Medical Radioactive Waste

研究代表者

井上 浩義 (INOUE HIROYOSHI)

慶應義塾大学・医学部・教授

研究者番号： 10213175

研究成果の概要 (和文)：本研究課題では、放射線治療・核医学検査において排出される放射性ヨウ素および放射性テクネチウムが水中において陰イオン性を呈することを利用して、①携帯型尿濾過器の開発、および②隔膜電気浸透法を用いる放射性廃水濃縮処理システムの開発を目的とした。この目的のために、陰イオン交換濾紙膜を5種類および両性イオン交換濾紙膜を1種類新たに開発・製造した。当該イオン交換濾紙膜およびバイポーラー膜を用いて効率的な医療用放射性廃水の処理を可能とした。

研究成果の概要 (英文)：

Radioactive iodine and technetium, which are extensively used in medical treatments, medical diagnosis, and biological experiments, whose use and disposal are strictly regulated by laws, indicate anion behavior in waste. We purposed the developments of (1) carrying urine filters used by patients with medical treatment and diagnosis and (2) radioactive waste treatment system driven by micro-power using membrane electrodialysis method. As a result, we succeeded to develop paper membranes that can incinerate as a waste matter, 5 kinds of anion exchange paper membranes and an amphoteric ion exchange paper membrane. Using these paper membranes and bipolar membrane, we established safely and effectively membrane treatment system of medical radioactive waste.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 19 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
平成 20 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
平成 21 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：医歯薬学分野

科研費の分科・細目：内科系臨床医学・放射線科学

キーワード：医療放射線；放射性廃水；陰イオン交換；濾紙膜；濃縮廃棄；バイポーラー膜；放射線管理；吸着平衡

1. 研究開始当初の背景

放射性廃水は、原子力発電分野、診断および治療で使用される医療分野、あるいは研究

分野などから産出される。特に、上記すべての分野から排出される放射性ヨウ素は産出量も多く、自然界へのそれらの排出は放射性

ヨウ素核種が体内へ移行し易いこと、あるいは生体毒性を有することから厳しく規制されている。また、医療分野での診断に用いられるテクネチウム-99m は、物理的半減期こそ6時間と短いものの、核医学検査での使用量は多く、その環境中への漏出は、安定的な化学形態 Perchnetate ion, TcO_4^- が農作物へ移行し、生体へもたらされる危険性が早くから指摘されている。

我々の調査では、医療用に使用されたヨウ素-123 およびテクネチウム-99mが、表1に示すように市中の一般下水終末処理場の上澄み、沈殿スラッジの両方から検出され (Health Physics;88(2): 163-168; 2005)、医療放射性廃水による公衆の内部被ばくの可能性が明らかとなった。

表1. 福岡県久留米市下水処理場で検出された医療用放射性同位元素

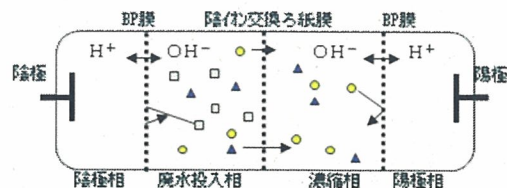
放射性同位元素	下水スラッジ	下水上清水	病院使用量に対する割合
^{99m}Tc	19±11 Bq/L	2.7±1.3 Bq/L	1.5 %
^{123}I	1.2±0.91 Bq/L	0.19±0.13 Bq/L	1.5 %
^{67}Ga	6.9±2.9 Bq/L	0.18±0.092 Bq/L	4.3 %
^{201}Tl	8.3±1.1 Bq/L	0.044±0.014 Bq/L	0.41 %

2. 研究の目的

本研究課題では、核医学検査において排出され、その環境排出基準が厳しい放射性ヨウ素および放射性テクネチウムが水中において陰イオン性を呈することを利用して、①核医学被検査者が自ら使用できる携帯型尿濾過器の開発、および②隔膜電気浸透法を用いて、微電力においても分離処理可能な放射性廃水濃縮処理システムの開発を目的とした。この目的のために、①携帯型尿濾過器および②隔膜電気浸透式濃縮システムともに、既に、我々が開発した使用後焼却処分が可能な4種類の陰イオン交換濾紙膜を用いて実施した。また、特に、②のシステムにおいては、ソーラーパネル程度の電力 (100W 程度) で、廃水相から、放射性ヨウ素およびテクネチウム-99mを濃縮相に選択的に集積させることができるシステムの構築を最終目標とした。

3. 研究の方法

本研究課題では、新たにイオン交換濾紙膜の開発と共に、以下の放射性廃水濃縮処理系にて、研究を実施した。



上記系において、○印は放射性ヨウ素、△印は放射性テクネチウム、そして□印は陽イオンならびに電気的中性分子を示す。本処理系において放射性ヨウ素あるいは放射性テクネチウムは陰イオン交換濾紙膜を透過して、濃縮相へ移行する。しかし、BP膜 (バイポーラー膜) は溶質を透過させないため陽極相へは移行せず、放射性ヨウ素あるいは放射性テクネチウムが気化することはない。一方、廃水投入相の陽イオンあるいは電気的中性分子は、廃水投入相と陰極相とを隔てるBP膜のために陰極側へ移行せず、陰極相を汚染させない。効率的濃縮：上記系の廃水投入相と濃縮相とを隔てる陰イオン交換濾紙膜にヨウ素あるいはテクネチウム選択性を持たせることによって、放射性ヨウ素および放射性テクネチウムの効率濃縮が可能となる。

省電力設計：本研究課題においては、電気透析システムにおける省電力駆動を研究達成目標の一つとした。この目的のために、本研究課題においては、BP膜を用いた。BP膜は、物質透過はできないが、水を分解することによって酸とアルカリを産する。このプロセスを得ることによって、濃縮系全体では、イオンの増加が得られ、電流効率が向上する。

液膜濃縮システム：放射性廃水濃縮システムの恒常的利用を得るために、液膜濃縮システムの設計および構築を試行する。将来的には、本系におけるシステムとしては、研究代表者が既に特許申請を行っている逆ミセル移動系を利用する予定である。

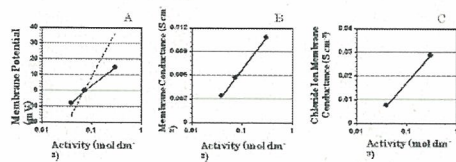
4. 研究成果

上記目的のために、使用後「放射性可燃廃棄物」として焼却処分可能な陰イオン交換濾紙膜を既に作製していた4種類の他に、新たに水透過性の小さな濾紙膜を作製し、合計5種類および陰イオン交換基と陽イオン交換基を同等に分散させた両性イオン交換濾紙膜を新たに開発・製造した。

診断に多用される放射性同位元素テクネチウム-99mの医療廃液を効率的に、また環境にやさしく処理するために、医療用放射性廃液の中からテクネチウム-99mだけを分離処理でき、焼却廃棄が可能で、陰イオン交換濾紙膜を用いた処理について研究を行った。陰イオン交換濾紙膜の基本的性質を明らか

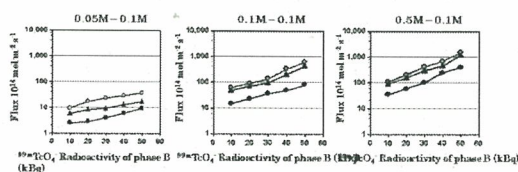
にするために、膜電位、膜電導度、およびイオン流束を測定した (図1)。

図1. 使用した陰イオン交換濾紙膜の膜電位 (左)、膜電導度 (中)、イオン膜電導度 (右)



本研究では特に、実際の処理で問題となるタンパク質とテクネチウム-99m との結合に対して、酸処理効果についてテクネチウム-99m とアルブミン (HAS) 系で検討を行った。その結果、陰イオン交換濾紙膜を透過しての ^{99m}TcO₄⁻ の拡散流束は、^{99m}TcO₄⁻ のみを投入した場合、共存する NaCl の濃度勾配にも拘らず、投入した ^{99m}TcO₄⁻ の濃度勾配に沿って、増加した (図2)。これに HSA を一緒に投入すると、HSA がいない場合に比べて流束は約 79% 減少した。この状態において、この膜処理系全体に通電すると、^{99m}TcO₄⁻ 投入相の pH は 4.2 まで下がり、^{99m}TcO₄⁻ 流束は約 56% 回復した。これは、通常では ^{99m}TcO₄⁻ が HSA に結合することによって、陰イオン交換濾紙膜の透過速度が減少するが、酸処理の適用により、HSA から ^{99m}TcO₄⁻ が解離し、分離が進むと考えられた。当初より予定していた①携帯型尿濾過器および②隔膜電気浸透式濃縮システムの開発に目処を付けることができた。

図2. ^{99m}TcO₄⁻ イオン流束に対する酸処理の効果; ○は HSA なし、●は HSA 混入、▲は HSA 混入後 BP 膜で酸処理



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 12 件)

- ① Takagi K, Masuda M, Yamazaki C, Kiyohara S, Itoh M, Wasaki M, Inoue H: Metal ion and vitamin adsorption profiles of phosphate binder ion-exchange resins. *Clinical Nephrology* 73 (1), 30-35 (2010). 査読有
- ② Nakamura K, Yamagishi S, Adachi H, Matsui T, Kurita Y, Inoue H: Serum level

of pigment epithelium derived factor (PEDF) is an independent determinant of resting heart rate in Japanese subjects. *Int J Cardiol.* 136 (2), 245-247 (2009). 査読有

- ③ Nakamura K, Yamagishi S, Adachi H, Kurita-Nakamura Y, Matsui T, Inoue H: Serum levels of pigment epithelium-derived factor (PEDF) are positively associated with visceral adiposity in Japanese patients with type 2 diabetes. *Diabetes Metab Res Rev.* 25 (1), 52-56 (2009). 査読有
- ④ Yamagishi S, Matsui T, Takenaka K, Nakamura K, Takeuchi M, Inoue H: Pigment epithelium-derived factor (PEDF) prevents platelet activation and aggregation in diabetic rats by blocking deleterious effects of advanced glycation end-products (AGEs). *Diabetes Metab Res Rev.* 25 (3), 266-271 (2009). 査読有
- ⑤ 飯野矢住代, 井上浩義: PET 検査施設における被ばく管理. *久留米大学医学部放射性同位元素施設紀要* 6, 1-4 (2008). 査読無
- ⑥ Kida Y, Higashimoto Y, Inoue H, Shimizu T, Kuwano K. A novel secreted protease from *Pseudomonas aeruginosa* activates NF-kappaB through protease-activated receptors. *Cell Microbiol.* 10 (7): 1491-1504 (2008). 査読有
- ⑦ Yamagishi SI, Matsui T, Nakamura K, Inoue H, Takeuchi M, Ueda S, Okuda S, Imaizumi T: Olmesartan Blocks Inflammatory Reactions in Endothelial Cells Evoked by Advanced Glycation End Products by Suppressing Generation of Reactive Oxygen Species. *Ophthalmic Res* 40 (1): 10-15 (2008). 査読有
- ⑧ Nakamura K, Yamagishi S, Adachi H, Matsui T, Kurita-Nakamura Y, Takeuchi M, Inoue H, Imaizumi T: Circulating advanced glycation end products (AGEs) and soluble form of receptor for AGEs (sRAGE) are independent determinants of serum monocyte chemoattractant protein-1 (MCP-1) levels in patients with type 2 diabetes. *Diabetes Metab Res Rev* 24 (2): 109-114 (2008). 査読有
- ⑨ Yamagishi S, Matsui T, Nakamura K, Inoue H, Takeuchi M, Ueda S, Fukami K, Okuda S, Imaizumi T: Olmesartan blocks advanced glycation end products (AGEs)-induced angiogenesis in vitro by suppressing receptor for AGEs (RAGE)

expression. *Microvasc Res* 75 (1):130-4 (2008). 査読有

⑩ Nakamura K, Yamagishi S, Adachi H, Matsui T, Kurita-Nakamura Y, Takeuchi M, Inoue H, Imaizumi T: Serum levels of soluble form of receptor for advanced glycation end products (sRAGE) are positively associated with circulating AGEs and soluble form of VCAM-1 in patients with type 2 diabetes. *Microvasc Res* 76 (1): 52-56 (2008). 査読有

⑪ Yamagishi S, Matsui T, Nakamura K, Takeuchi M, Inoue H: Telmisartan inhibits advanced glycation end-products (AGEs)-elicited endothelial cell injury by suppressing AGE receptor (RAGE) expression via peroxisome proliferator-activated receptor-gamma activation. *Protein Pept Lett* 15 (8), 850-853 (2008). 査読有

⑫ 井上浩義: 生体分子認識-放射性物質と非放射性物質の利用-. 久留米医学会雑誌 70 (6/7), 171-177 (2007). 査読有

〔学会発表〕 (計 2 件)

① 井上浩義: 高効率で環境にやさしい医療放射性廃液処理の確立. *Hiyoshi Research Portfolio*. 2010年2月1日, 横浜.

② 井上浩義: 医療用放射性物質の安全処理に関する研究発表. *Hiyoshi Research Portfolio*. 2009年2月1日, 横浜.

〔図書〕 (計 3 件)

① 井上浩義 (山岸昌一編集): 「ナースのための読み解く薬理学」第1章薬の基礎知識; 第2章薬の分類, *メディカルレビュー*, 2009. 総ページ 325.

② 井上浩義: 知りたい! 医療放射線 (編著), 慧文社, 2008. 総ページ 150.

③ 井上浩義, Lakshmi SD, 山岸昌一: ラクトフェリン 2007. p100-110, 日本医学館, 2007.

〔その他〕

ホームページ等

<http://web.keio.jp/~medchem/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井上 浩義 (INOUE HIROYOSHI)

慶應義塾大学・医学部・教授

研究者番号: 10213175

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

甲斐原 梢 (KAIBARA KOZUE)

九州共立大学・工学部・教授

研究者番号: 90080564

(H19: 研究分担者)