

令和 6 年 5 月 7 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19H04304

研究課題名（和文）先端医療検査の発展に潜むMRIガドリニウム造影剤に起因した環境負荷低減技術の開発

研究課題名（英文）Development of environmental impact reduction technology related to MRI gadolinium contrast agent

研究代表者

井上 一雅（Inoue, Kazumasa）

東京都立大学・人間健康科学研究科・教授

研究者番号：20508105

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,000,000円

研究成果の概要（和文）：ガドリニウム造影剤の環境動態を調査するため東京都内の水再生センター処理水、河川水および水道水を調査した。濃縮操作を行い質量分析計で分析をした結果、ガドリニウム造影剤は現在の下水処理では除去されずに河川等に放流されていた。放流されたガドリニウム造影剤の一部は浄水場を経由して水道水中に含まれている可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義  
大都市部におけるガドリニウム造影剤の環境動態を明確化することは、今後の環境負荷低減技術の検討において有用となる。

研究成果の概要（英文）：The environmental dynamics of gadolinium contrast agents were investigated in treated water from water reclamation centers, river water, and tap water in Tokyo. Gadolinium contrast agents were not removed by current sewage treatment and were discharged into rivers. It was suggested that some of the released gadolinium contrast agent may have passed through the water treatment plant and ended up in the tap water.

研究分野：環境動態解析

キーワード：ガドリニウム造影剤 MRI 希土類元素

## 様式 C-19、F-19-1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、アメリカ、フランスおよびドイツなどの先進国を中心として都市部の河川水や沿岸海水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。例えばドイツ東部の河川では、平均で **0.106 ppb** の高濃度なガドリニウム（ガドリニウム濃度異常）が検出されている。ガドリニウムは、光ファイバー、光磁気ディスクや原子炉の反応制御などに利用されている。しかし、環境水として流出した物質はキレート構造を有するガドリニウム造影剤の化学構造を有しており、現代医療における画像診断で必要不可欠な MRI 検査に用いられているガドリニウム造影剤が原因であると考えられている。ガドリニウム造影剤は、MRI 検査用に開発されてから約 30 年が経過しているが、近年の高齢社会の進展により使用量が急激に増加していることが背景にある。さらに、今後も増加傾向を示し、環境に放出されるガドリニウムが増加するのは確実な状況にある。ガドリニウムは原子番号 64 の重金属である。重金属の多くは、生体内必須元素と拮抗することで強い毒性を示す。実際に、重金属である鉛、カドミウム、水銀およびヒ素などは人体に強い毒性を示すことで有名である。ガドリニウムについても同様に低濃度で強い毒性を示すことが報告されている。そのため、造影剤としての利用においては、人体に対する安全性を確保するためキレート構造が付与されており、人体投与から尿中排泄までの安全性が確保されている。しかし、キレート構造は強い紫外線照射により分解されることが知られている。つまり、人体から尿中に排泄されたガドリニウムは、河川等において太陽光にさらされるため分解する可能性が非常に高い。

### 2. 研究の目的

これまでのガドリニウム造影剤に関する研究は、人体投与から尿中排泄までの安全性（ガドリニウムの人体内残留）に関する研究が医学系研究者により盛んに行われてきた。一方で、尿中に排泄されてから下水処理施設を通過して環境水として放出されるガドリニウム造影剤に関する一連の研究は実施されていない。環境水として放出されるガドリニウム造影剤が将来的に重大な環境汚染を引き起こす可能性があることを認識し、その存在分布を明確にする必要がある。本研究では、MRI 用ガドリニウム造影剤の使用量増加を背景に生じている水質汚染問題に対して、東京都下水道局の全面的な協力のもと、水再生センター、河川および水道水中に含まれる環境調査を実施することを目的とした。

### 3. 研究の方法

採取した水試料は固相充填カラムを用いて濃縮操作を行った。キレート樹脂の回収率について予備実験を行い、pH4~5 の際にガドリニウムの回収率が 90% を超え、かつ他の希土類元素の回収率も高いことが明確となり、本研究では測定サンプルを作成するための試料の pH は  $4.5 \pm 0.5$  として調整を行った。測定サンプルを作成した後、高感度で多元素分析が可能な ICP-MS (Agilent 7850) を用いてガドリニウム濃度 (ppt: ng/L) の定量を行った。ICP-MS を用いた測定によって求められた希土類元素パターンから人為的に増加したガドリニウム (Gd) と理論上のバックグラウンド濃度 (Gd\*) との相対存在度 (Gd/Gd\*) と試料中のガドリニウム濃度 (Gd<sub>anth</sub>) を算出した。

### 4. 研究成果

都内主要河川において実施した調査では、本研究で調査を行った 66 地点 (図 1) のうち、44 地点で Gd/Gd\* が 1.4 を超えており、東京都の河川の大部分で明らかなガドリニウムの人為的介入を確認した。河川におけるガドリニウム濃度の平均値は、東京都全域で 22.52 ppt を示し、23

区内および23区外では31.62 pptおよび9.37 pptを示した。高濃度なガドリニウムを計測したのは仙川および多摩川であり、それぞれ139.92 pptおよび122.11 pptであった。各河川におけるガドリニウムの濃度分布は局地的に上昇する傾向を示した。その多くの地点は下水処理施設の下流域であり、本研究で観測された河川水中のガドリニウムは、下水処理施設を經由して環境中に放出されていると考えられた。

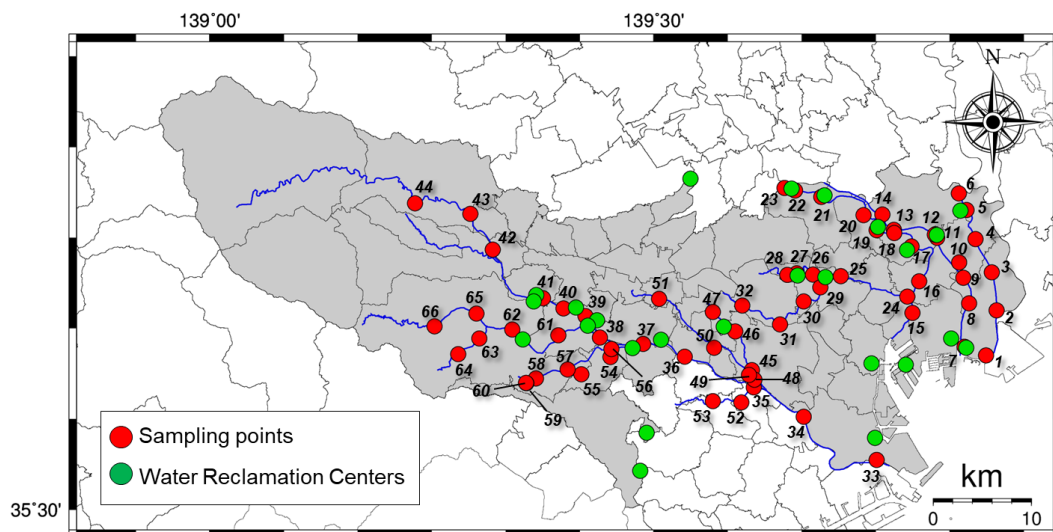


図1 採水調査地点

河川における調査結果を踏まえて、東京都に設置されている25ヶ所の下水処理施設から放流される処理水を調査した。下水処理施設における平均ガドリニウム濃度は、109.52 pptを示し、河川における結果と比較して4倍ほど高い濃度であった。東部水再生センター、有明水再生センターおよび八王子水再生センターでは、MRI設置台数が比較的少ないにもかかわらず、非常に高い濃度を示し、422.39 ppt、301.88 pptおよび211.19 pptであった。これは、下水処理量が少ないことにより放流水中のガドリニウムが希釈されないためであり、ガドリニウム濃度がMRI設置台数だけでなく、下水処理量にも大きく依存する可能性が考えられた。ガドリニウム濃度と下水処理量で正規化したMRI設置台数との相関係数は0.66であり、環境中に存在するガドリニウムはMRI検査用のGd造影剤に起因している可能性があると考えられた(図2)。加えて、23区内外における相関係数は、それぞれ0.78および0.75であり、23区内で高くなった。これは23区内におけるMRI装置あたりの検査数が238件であり、23区外の218件よりも多いことで、MRI装置あたりの河川におけるGd濃度上昇への寄与も多くなると考えられるためであると考えられた。

水道水をターゲットとした調査で、東京都における河川を水源とする公園の水道水35地点のうち32地点で、人為的なガドリニウムを示す指標であるGd/Gd\*が基準指数の1.4を超え、飲用水中へのガドリニウムの人為的介入を明確にした。人為的な介入がない場合でもガドリニウムは微量ではあるが、一定量存在することを確認した。

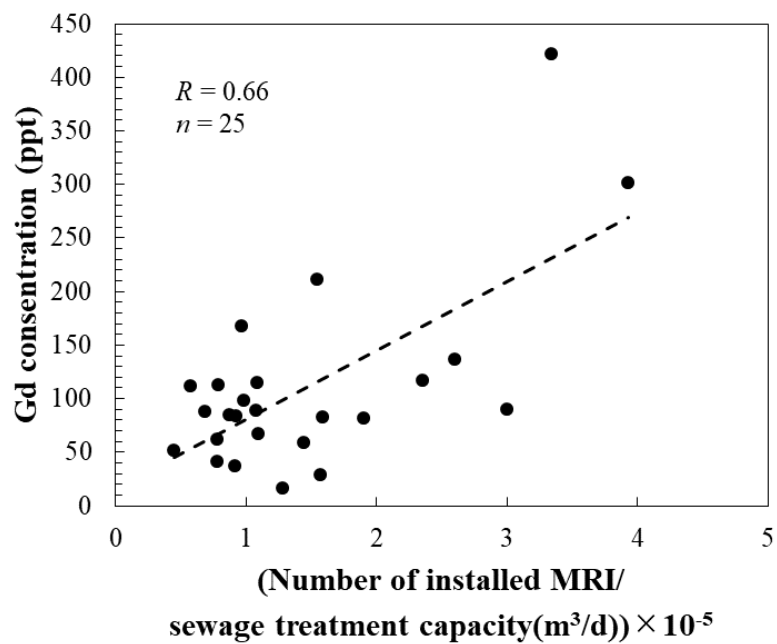


図2 水再生センター処理水中のガドリニウム濃度と MRI 設置台数の相関関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Inoue Kazumasa, Fukushi Masahiro, Sahoo Sarata Kumar, Veerasamy Nimelan, Furukawa Akira, Soyama Sho, Sakata Ami, Isoda Ryo, Taguchi Yoshiaki, Hosokawa Shota, Sagara Hiroaki, Natarajan Thennarassan	4. 巻 174
2. 論文標題 Measurements and future projections of Gd-based contrast agents for MRI exams in wastewater treatment plants in the Tokyo metropolitan area	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Marine Pollution Bulletin	6. 最初と最後の頁 113259 ~ 113259
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marpolbul.2021.113259	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Inoue Kazumasa, Fukushi Masahiro, Furukawa Akira, Sahoo Sarata Kumar, Veerasamy Nimelan, Ichimura Ken, Kasahara Shogo, Ichihara Mai, Tsukada Mizuho, Torii Minori, Mizoguchi Manami, Taguchi Yoshiaki, Nakazawa Shuto	4. 巻 154
2. 論文標題 Impact on gadolinium anomaly in river waters in Tokyo related to the increased number of MRI devices in use	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Marine Pollution Bulletin	6. 最初と最後の頁 111148 ~ 111148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marpolbul.2020.111148	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Inoue K, Fukushi M, Furukawa A, Sahoo SK, Verrasamy N, Kurokawa M, Kondo H, Shimizu H, Tsuruoka H, Mitsumoto T, Koyama K, Hosokawa S	4. 巻 -
2. 論文標題 Detection of anthropogenic gadolinium in river waters in Hokkaido, Japan	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Education for Radiological Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 磯田凌、井上一雅、高島賢、福土政広
2. 発表標題 大阪市内の下水道処理施設における人為起源 Gd 濃度の実態調査
3. 学会等名 日本放射線技術学会第76回東京支部春期学術大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 花岡慶秋, 井上一雅, 福士政広
2. 発表標題 福岡市の主要河川における希土類元素ガドリニウムの濃度調査
3. 学会等名 第73回日本放射線技術学会東京支部春季学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 市村賢, 井上一雅, 福士政広
2. 発表標題 MRI造影剤に起因した都市河川水中に含まれるガドリニウム濃度の調査
3. 学会等名 関東甲信越診療放射線技師学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯盛貴斗, 井上一雅, 福士政広
2. 発表標題 北海道内の河川水中のガドリニウム濃度分布調査
3. 学会等名 関東甲信越診療放射線技師学術大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 市村賢, 井上一雅, Veerasamy Nimelan, 笠原彰倅, 福士政広
2. 発表標題 東京都内の都市河川水中に含まれるガドリニウム濃度の調査
3. 学会等名 第13回日本診療放射線学教育学会学術集会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	福士 政広  (Fukushi Masahiro)  (70199199)	東京都立大学・人間健康科学研究科・客員教授    (22604)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------