

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：13601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K00581

研究課題名(和文) 環状オリゴ糖を用いた新しい放射性ヨウ素回収・保持システム開発に向けた基礎的研究

研究課題名(英文) Fundamental research for development of new radioiodine collection and holding system using cyclic oligosaccharide

研究代表者

廣田 昌大(Hirota, Masahiro)

信州大学・学術研究院総合人間科学系・助教

研究者番号：50443073

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：放射性ヨウ素は、飛散しやすいことに加えて、経口・吸入摂取により体内に取り込まれると、甲状腺に集積して甲状腺がんや甲状腺機能低下症等を誘発することが懸念されていることから、特に慎重な管理が求められている放射性同位元素のひとつである。環状構造を持つオリゴ糖であるシクロデキストリンは、ヨウ素を選択的に環内に取り込み、安定的に保持することが知られている。本研究では、シクロデキストリンを用いて気中に飛散した放射性ヨウ素、及び液中に含まれる放射性ヨウ素を効率的に回収する技術の構築に向けて、シクロデキストリンの放射性ヨウ素回収・保持に関する基本特性の解明に取り組んだ。

研究成果の概要(英文)： Radioiodine are widely used in the fields of life science and nuclear medicine. The radioiodine is also one of nuclides which cause environmental contamination after a nuclear accident. The radioiodine is taken into the human body through not only ingestion but also inhalation because of volatility of iodine. The iodine accumulates in a thyroid in a human body. Therefore, the serious internal exposure may occur when the radioiodine is taken into the body.

Cyclodextrin (CD) is a hollow truncated cone-shaped macromolecule consisting of D-glucose molecules. It is known that the CD selectively includes the iodine in a wet state.

The purpose of this study is to elucidate the basic characteristic of cyclodextrin on the collection and retention of radioiodine for the construction of the technique to collect the radioiodine included in the gas and the liquid effectively.

研究分野：放射線防護、放射線安全管理、放射化学、放射線計測

キーワード：放射性ヨウ素 シクロデキストリン 飛散 捕集 回収 放射線防護 放射線安全管理

## 1. 研究開始当初の背景

放射性ヨウ素は、原子力発電において核分裂生成物として発生するほか、核医学では甲状腺疾患の治療・診断薬として使用されている。放射性ヨウ素が体内に移行すると、甲状腺癌や機能低下症を誘発するなど、身体に深刻な影響を与えたと考えられている。このため、放射性ヨウ素を扱う作業室内の空気中濃度や、施設から排出される空気中並びに水中濃度は、法令によって、他の一般的な放射性物質よりも 1/100 ~ 1/1,000 以下と厳しく設定されている。

従来、空気中への放射性ヨウ素の飛散を防止するために、一般的に放射性ヨウ素を含む線源や汚染物を密閉容器等に封入する方法が取られて来た。また、空気中に飛散した放射性ヨウ素に対しては、主に活性炭フィルターを用いて除去する方法が用いられて来た。しかしながら、これらの方法では、事故によって容器が破損した場合の放射性ヨウ素の漏洩や、大気中に漏洩した放射性ヨウ素の拡散を防ぐことは困難であった。さらに、甲状腺疾患の診断・治療のために患者に投与された放射性ヨウ素  $^{131}\text{I}$  については、患者の排泄物を一般環境に排出することが可能になるまでに数か月 ~ 半年間保管して放射能が減衰するのを待つか、数トンもの水を用いて最大 10 億倍に希釈する必要があった。排泄物を処理する装置は非常に高額であり、容易に増設することは困難であることから、多くの医療機関において 1 月あたりに対応できる患者数が数名程度に限られ、患者が治療を受けるまでに長期間待たされるケースも見られた。液体中のヨウ素を選択的に回収し、安定的に保持することが出来る回収材があれば、放射能が減衰するまで保管しなければならない廃棄物の量を大幅に減量させることが出来るため、低コストで放射性廃液の処理が可能になること、及び甲状腺疾患の患者が長期間待つことなく治療を受けることなどが可能になると考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、従来、ヨウ素の回収剤とし

て用いられて来た活性炭では実現することが出来なかった「原子力災害時に放射性ヨウ素の環境中への大規模な漏洩を防ぐ」、「万一放射性ヨウ素が環境中に漏洩しても、広範囲に拡散する前に回収する」、並びに「核医学において放射性ヨウ素が投与された患者の排泄物を低コストで効率的に処理する」などを可能にする新しい放射性ヨウ素の回収・保持材の開発に向けて、環状オリゴ糖(シクロデキストリン:CD)の放射性ヨウ素回収・保持に関する基本特性を解明することである。

## 3. 研究の方法

原子力災害時に放射性ヨウ素の環境中への大規模な漏洩を防ぐことについては、次の実験により、実現可能性を検討した。

溶解度を高める化学修飾がなされた水溶性の  $\alpha$ -シクロデキストリン( $\alpha$ -CDHP)及び  $\beta$ -シクロデキストリン( $\beta$ -CDHP)を 0、0.1、1、10%の濃度で蒸留水に溶解させて、CD 水溶液を作製した。これに  $\text{Na}^{131}\text{I}$  水溶液を投入して十分に攪拌した後、滑らかなステンレス製試料皿上に 0.5ml ずつ分注した。比較のため、グルコースについても同様に試料皿を作製した。2~3 週間に渡って試料皿をフード内に静置して自然乾燥させつつ、分注直後から数日おきに  $\gamma$  線測定装置を用いて測定した。この間の各試料皿の減衰補正された計数値の推移から、CD による  $^{131}\text{I}$  の保持率を評価した。なお、 $^{131}\text{I}$  の保持率が高いほど、放射性ヨウ素の漏洩が低いことを意味する。

万一放射性ヨウ素が環境中に漏洩しても、広範囲に拡散する前に回収することについては、次の実験により、実現可能性を検討した。

容積が 204L のグローブボックス内で、試料皿に  $\text{Na}^{131}\text{I}$  標準溶液と濃硝酸を滴下して  $^{131}\text{I}$  を酸化させた。30 分経過後に、蒸留水に水溶性  $\alpha$ -CD を重量百分率が 1%と 10%となる様に投入した CD 水溶液 200ml を噴霧した。さらに 30 分経過後に、グローブボックスに接続したエアポンプを用いて 22L/min の流量でグローブボッ

クス内の空気を 30 分間吸引するとともに、グローブボックスから流出した空気を活性炭フィルターに通すことによって空気中に含まれる  $^{131}\text{I}$  を捕集した。捕集終了後、活性炭フィルターをオートウェル  $\gamma$  カウンタで測定した。比較のために、CD 水溶液を噴霧せず、 $^{131}\text{I}$  を気化させてから 60 分後に、エアーポンプを用いてグローブボックス内の空気を吸引し、活性炭フィルター上に  $^{131}\text{I}$  を捕集する実験、及び水溶液の CD 濃度が 0% (蒸留水) を噴霧する同様の実験も行った。

核医学において放射性ヨウ素が投与された患者の排泄物を低コストで効率的に処理することについては、次の実験により、実現可能性を検討した。

大きさが異なる 3 種類の活性炭 (標準粒度: 20×50 メッシュ (小粒 S)、8×30 メッシュ (中粒 M)、4×8 メッシュ (大粒 L))、CD の内径が異なる 3 種類の CDHP ( $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ )、及び CD の内径が異なる 3 種類の CDP ( $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ ) を準備した。5 ml のエッペンチューブに、活性炭を 0.04 g 投入した後、CDHP 濃度が 0%、0.1%、1%、10%、及び  $\text{Na}^{131}\text{I}$  の放射能濃度が 25 kBq/ml の水溶液を 4 ml 注入した。同様に 5 ml のエッペンチューブに CDP を 0.04 g 投入した後、 $^{131}\text{I}$  の放射能濃度が 25 kBq/ml の水溶液を 4 ml 注入した。5 日間静置した後、上澄み液 1 ml をそれぞれ栄研チューブ 3 号に取り、オートウェル  $\gamma$  カウンタを用いて放射能濃度を測定した。測定値を、エッペンチューブに注入する前の放射能濃度で除すことによって  $^{131}\text{I}$  の残存率を算出し、活性炭、CDHP 添加活性炭、CDP による  $^{131}\text{I}$  のヨウ素の吸着能を評価した。

#### 4. 研究成果

原子力災害時に放射性ヨウ素の環境中への大規模な漏洩を防ぐことについて検討した実験結果は、次の通りとなった。

本実験結果について、図 1 に示す。蒸留水中の  $^{131}\text{I}$  の保持率は、時間とともに低下して、分注から 2 週間経過後には 0.32、3 週間経過後には

0.3 であった。CDHP 水溶液中の  $^{131}\text{I}$  の保持率は、 $\alpha$ -CDHP の場合、濃度が 10% のときは 3 週間後で 0.9、1% のときは 0.85、0.1% のときは 0.72 であった。また、 $\beta$ -CDHP の場合、濃度が 10% のときは 3 週間後で 0.9、1% のときは 0.8、0.1% のときは 0.72 であった。一方、Glc 水溶液中  $^{131}\text{I}$  の保持率は、濃度が 10% のときは 2 週間後で 0.8 であったが、濃度が 1% のときは 0.5、0.1% のときは 0.45 であるとともに、さらに低下して行く傾向が見られた。溶液中に Glc の分子が存在するだけでも  $^{131}\text{I}$  の飛散は減少したが、ヨウ素を内側に包み込む効果がある CD を用いることにより、飛散は大幅に減少した。線源や汚染水中に CDHP を添加することによって、放射性ヨウ素の飛散低減に有効であることが分かった。

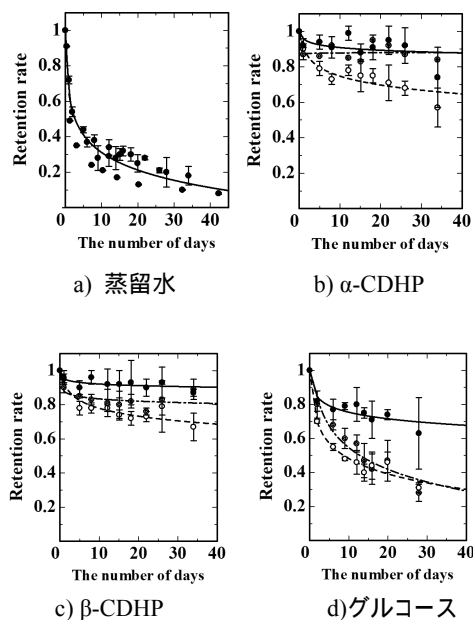


図 1. 各水溶液における  $^{131}\text{I}$  保持率の変化

万一放射性ヨウ素が環境中に漏洩しても、広範囲に拡散する前に回収することについて検討した実験結果は、次の通りとなった。

水溶液を噴霧しなかった場合に、活性炭上に捕集された  $^{131}\text{I}$  に対するカウントは 315,500、蒸留水が噴霧された場合のカウントは 308,600 とほとんど変わらなかったのに対して、CD 濃度が 1% の水溶液が噴霧された場合のカウントは約 2/3 の 205,000、10% の水溶液が噴霧された場合

のカウントは約 1/6 の 56,000 と大きく低下した。CDを含んだ水溶液を噴霧することで、空気中に飛散した放射性ヨウ素を回収することが出来る可能性があることが分かった。原発事故等で、放射性ヨウ素が大気中に漏洩しても、本成果を活用することで、広範囲への拡散を防止できる可能性があることが分かった。

核医学において放射性ヨウ素が投与された患者の排泄物を低コストで効率的に処理することについて検討した実験結果は、次の通りとなった。

図 2 に示される様に、水溶液から活性炭のみを用いて  $^{131}\text{I}$  を除去したときの  $^{131}\text{I}$  残存率は、回収剤が小粒 S、中粒 M、大粒 L の活性炭のとき、それぞれ 0.173、0.276、0.253 であった。粒度が小さい活性炭 S の残存率が最も低かった。CDP を用いて除去したときの  $^{131}\text{I}$  残存率は、 $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$ -CDP について、それぞれ 0.340、0.418、0.984 であった。CD の内径が小さくなるにつれて残存率は低下した。水溶液に  $\alpha$  又は  $\beta$ -CDHP を添加して活性炭に  $^{131}\text{I}$  を吸着させたところ、何れのケースにおいても、活性炭のみの場合と比べて  $^{131}\text{I}$  残存率は低くなる場合があった。一方、 $\gamma$ -CDHP を添加した場合については、活性炭のみを用いた場合と比べて  $^{131}\text{I}$  残存率は高くなった。水溶液に、濃度が 0.1%となる様に  $\alpha$  又は  $\beta$ -CDHP を添加したところ、活性炭のみの場合と比べて  $^{131}\text{I}$  の残存率が低くなった。一方、1%となる様に添加したところ、 $^{131}\text{I}$  残存率は活性炭のみの場合とほとんど変わらないか高くなり、10%となる様に添加したところ、 $^{131}\text{I}$  残存率は活性炭のみの場合と比べて高くなった。図 3 に示される様に、25 kBq/ml の  $^{131}\text{I}$  水溶液に小粒活性炭を重量比 1%投入し、5 日間静置したときの  $^{131}\text{I}$  残存率は 0.173 であったが、これに重量比 0.1%の  $\alpha$ -CDHP を添加したところ、 $^{131}\text{I}$  残存率は 1/2 以下の 0.080 となり、 $\alpha$ -CDHP は、活性炭の放射性ヨウ素の吸着能を 2 倍以上高めることが分かった。CD を用いることで、水溶液中の放射性ヨウ素の濃度を最大で 30%程度まで、また、活性炭と水

溶性 CD を用いることで最大で 10%まで低下させることが出来た。なお、CD は、ヨウ素を選択的に吸着することから、不純物が含まれる水溶液中の放射性ヨウ素に対しても、一定の効果があることを別の実験により確認している。本成果を活用することで、放射性廃液の中から放射性ヨウ素を効果的に吸着除去できる可能性があることが分かった。

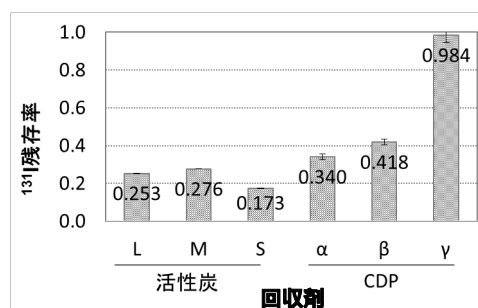


図 2. 回収剤が活性炭及び CDP のときの  $^{131}\text{I}$  除去率

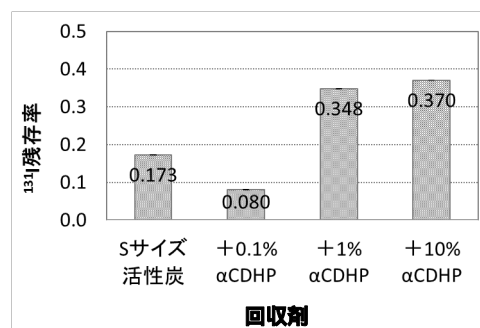


図 3. S サイズの活性炭に  $\alpha$ -CDHP を添加した時の  $^{131}\text{I}$  残存率

## 5 . 主な発表論文等

(雑誌論文) (計 1 件)

- (1) 廣田昌大、桧垣正吾、伊藤茂樹、高木思野、石田善行、寺尾啓二、活性炭の放射性ヨウ素吸着能向上に関する基礎的研究、Isotope News(日本アイソトープ協会)、査読無、No.751、2017、75-76、  
[https://www.jrias.or.jp/books/pdf/201706\\_S\\_YUNINSYA\\_HIROTA\\_HOKA.pdf](https://www.jrias.or.jp/books/pdf/201706_S_YUNINSYA_HIROTA_HOKA.pdf)

(学会発表) (計 5 件)

廣田昌大、桧垣正吾、伊藤茂樹、高木思野、石田善行、寺尾啓二、シクロデキストリンを添加した活性炭による放射性ヨウ素の捕集効率に与えるヨウ素濃度の影響、日本保健

物理学会第 50 回研究発表会 / 日本放射線安全管理学会第 16 回学術大会合同大会、2017 年

Masahiro Hirota, Shogo Higaki, Shigeki Ito, Shino Takagi, Yoshiyuki Ishida, Keiji Terao, A study on the improvement of adsorption capacity of activated carbon for radioiodine、放射線災害・医科学研究拠点 第 1 回国際シンポジウム、2017 年

廣田昌大、桧垣正吾、伊藤茂樹、高木思野、石田善行、寺尾啓二、活性炭の放射性ヨウ素吸着能向上方法の検討（その 1）～基本性能の評価～、日本放射線安全管理学会 第 15 回学術大会、2016 年

廣田昌大、桧垣正吾、伊藤茂樹、高木思野、石田善行、寺尾啓二、活性炭の放射性ヨウ素吸着能向上に関する基礎的研究、日本アイソトープ協会平成 28 年度放射線安全取扱部会年次大会、2016 年

廣田昌大、桧垣正吾、伊藤茂樹、石田善行、高木思野、寺尾啓二、放射性ヨウ素飛散防止剤としてのシクロデキストリンの放射線耐性、日本放射線安全管理学会 第 14 回学術大会、2015 年

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

廣田 昌大 (Masahiro HIROTA)

信州大学・学術研究院総合人間科学系・助教

研究者番号 : 50443073