

令和 6 年 5 月 31 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K07598

研究課題名(和文) 甲状腺内用療法患者から排出される放射性ヨウ素の高効率除去に関する研究

研究課題名(英文) A study on the efficient removal of radioactive iodine discharged from patients undergoing thyroid internal therapy.

研究代表者

伊藤 茂樹 (Ito, Shigeki)

熊本大学・大学院生命科学研究部(保)・教授

研究者番号：80402395

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：高吸水性ポリマー1gと5%  $\beta$ -CDを組み合わせた保持生地を用いて、放射性ヨウ素を含む水溶液および人工尿を用いて、放射性ヨウ素の保持効果に関する試験を実施した。試験は、放射性ヨウ素を混入させた模擬廃液(2種類)を高吸水性ポリマー入り容器内で90日間放置し、経時的に廃液内の放射性ヨウ素放射能計測によって残留ヨウ素率を算出した。水分が除去された放置後15日目の残留ヨウ素率は水溶液では98%であった。人工尿では95%であった。 $\beta$ -シクロデキストリンと組み合わせた超吸水性ポリマーを組み合わせた、放射性ヨウ素溶液の吸着および分離生地は、放射性ヨウ素廃液処理剤として利用できることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の放射性廃液一括排水管理による方法は、簡便ではあるが、施設の膨大な改造費用を伴うばかりか、新たな処理法の確立が求められる。CDを用いて、個別に尿中 $^{131}\text{I}$ を回収する方法が開発できれば、施設の排水基準等の問題は解消され、 $^{131}\text{I}$ の許可使用量増量が可能となり、患者待機期間の大幅短縮から病床稼働率の大幅アップに繋がる。こうした甲状腺内用療法患者の個別管理は、国内のみならず、世界でも一般化できる手法と成り得る。加えて、これらの手法は原子力災害時に即時応用できる。すなわち、これまでの経験則による放射性廃棄物管理から脱却し、学術的根拠に基づく高効率放射性廃棄物管理法構築の突破口となり得る。

研究成果の概要(英文)：We conducted experiments on the retention effect of radioactive iodine using a holding fabric combining 1g of highly absorbent polymer and 5%  $\beta$ -cyclodextrin, with solutions containing radioactive iodine and artificial urine. The tests involved leaving two types of simulated waste solutions containing added radioactive iodine in containers with highly absorbent polymer for 90 days and calculating the residual iodine rate over time through radioactive iodine radioactivity measurement in the simulated waste solution. The residual iodine rate on the 15th day after dehydration was 98% for the aqueous solution and 95% for the artificial urine. It was evident that the highly absorbent polymer combined with  $\beta$ -cyclodextrin could be utilized as a radioactive iodine waste treatment agent for adsorption and separation of radioactive iodine solutions.

研究分野：Radiation protection

キーワード： $\beta$ -cyclodextrin radioactive iodine thyroid internal therapy

## 1. 研究開始当初の背景

放射性ヨウ素は体内に入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る危険性が高い。このため、 $^{131}\text{I}$ が発生する施設に対する排気・排水中の $^{131}\text{I}$ 濃度限度は、法令によって、他の放射性物質の1/100以下と他の物質よりも遥かに厳しく設定されている。現時点では、大掛かりな処理装置内で数か月程度保管して $^{131}\text{I}$ が減衰するのを待って、数トンの水を用いて希釈するなどの方法で処理する。したがって、処理装置内の $^{131}\text{I}$ が基準値を下回るまで、次の患者の治療開始は不可能となり、治療件数をこなすことができない。

環状オリゴ糖(シクロデキストリン:CD)は、これまで活性炭では実現することが出来なかった排水・排気上の $^{131}\text{I}$ 捕集剤として期待されている。これまでの研究代表者らによるCDに関する研究成果では、 $^{131}\text{I}$ イオンに対して実験室レベルで90%を超える除去効率を有することが判明した。しかしながら、基礎実験成果のみであり、生体からの様々な化合物に適応した $^{131}\text{I}$ 回収技術開発が必要である。医療分野においても、 $^{131}\text{I}$ 甲状腺内用療法患者からは、 $^{131}\text{I}$ 錯イオンとして尿中に排泄されるといわれる。しかしながら、尿中には他の多くの物質、化合物が含まれるため、除去効率が低いと予想されている。尿中の阻害物質を化学的前処理によって不活性化できれば、CDによる $^{131}\text{I}$ イオン吸着が高効率で実現すると考えた。

CDは可燃物であるので、その処理は容易であり、コストも極めて低い。これらの成果は実験室レベルであり、人体からの排泄物への応用には、 $^{131}\text{I}$ 化合物形態を明らかにし、化学的アプローチによるCDの最適吸着法を構築する必要がある。さらに、従来の一括排水管理による方法は、簡便ではあるが、施設の膨大な改造費用を伴うため、新たな処理法の確立が求められる。こうした甲状腺内用療法患者の個別管理は、国内のみならず、世界でも一般化できる手法と成り得る。加えて、これらの手法は原子力災害時に即時応用できる。すなわち、これまでの経験則による放射性廃棄物管理から脱却し、学術的根拠に基づく高効率放射性廃棄物管理法構築の突破口となり得る。

## 2. 研究の目的

本研究は、尿中 $^{131}\text{I}$ 化合物の高効率CD吸着法を開発し、従来の一括排水管理による方法から新たな患者個別汚水処理法を構築することである。

## 3. 研究の方法

研究の方法尿中 $^{131}\text{I}$ 化合物分析結果に基づく高効率CD吸着法構築するため、

1) 尿中でのCD吸着阻害成分を特定し、最適吸着方法を決定する。

最適条件である0.1%ヒドロキシプロピル化 $\beta$ -CD( $\beta$ -CDHP)水溶液を作成した。放射性ヨウ素を含んだ人工尿として尿素2%水溶液、アンモニア水(29%)1%水溶液、および各溶液400mLに約480kBqの $^{131}\text{I}$ -NaIを添加した。

強酸性陽イオン交換樹脂(アンバーライト、オルガノ社)を10g充填したカラムに流して(流速120mL/h)溶液中の陽イオンを交換樹脂に吸着して除去した。

処理後のそれぞれの溶液を10mLずつ( $^{131}\text{I}$ の放射能12kBqずつ)分取し、粒径20×50meshの活性炭(小)0.1gを分取した遠沈管に入れて密閉1, 3, 5, 8日間静置し、放射性ヨウ素の除去率を求めた。

2) 放射性ヨウ素を含んだ廃液から、ヨウ素を残留させつつ水分を分離するためのヨウ素吸着材としてSuperabsorbent polymer; SAPS及びCD有効であることを検証した。

#### 4. 研究成果

1) 尿中での CD 吸着阻害成分を特定し、最適吸着方法の構築

尿素およびアンモニアが CD 吸着阻害成分であると考えられた(図1)。そこで、イオン交換処理によって、いずれの溶液においても<sup>131</sup>I除去率が向上した。特に、尿素溶液では蒸留水と同程度の除去効率となった。

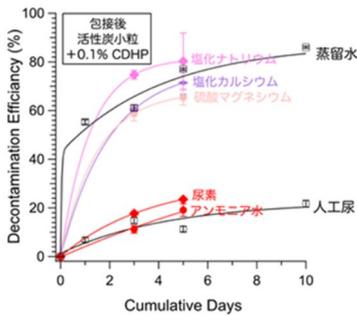


図1 CD 吸着阻害成分の比較

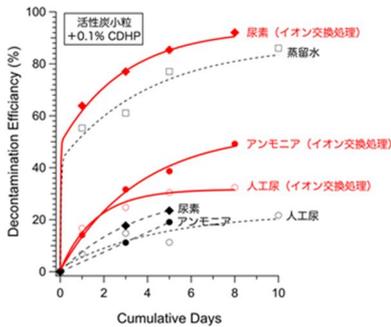


図2 放射性ヨウ素除去率の比較

2) 放射性ヨウ素を含んだ廃液中のヨウ素残留率

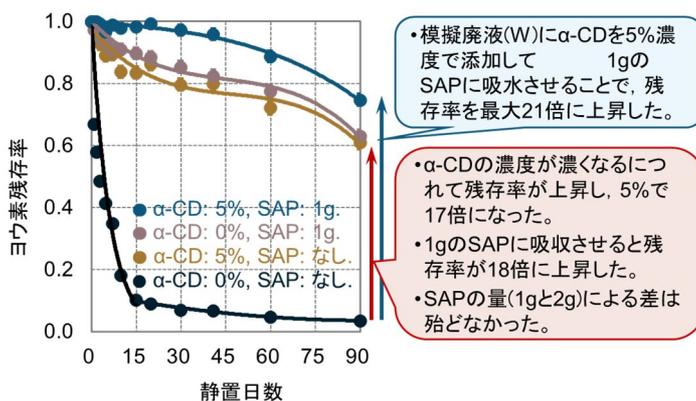


図3 ヨウ素残存率の経時変化

廃液をそのまま容器に入れて静置したとき、残存率は静置日数15日で0.1、90日で0.035まで低下していた。α-CDを添加して静置すると、CDの濃度に合わせて残存率も上昇し、5%濃度では17倍高くなった。SAPに吸収させた場合も残存率は上昇し、1gのSAPに吸収させると18倍高くなった。SAPの量による差は認められなかった。α-CDを5%濃度になるよう添加して1gのSAPに吸収させると、残存率は21倍に上昇した。このようにα-CD及びSAPには、ヨウ素の残存率を高める効果があることが確認できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Hirota Masahiro, Higaki Shogo, Ito Shigeki, Ishida Yoshiyuki, Terao Keiji	4. 巻 328
2. 論文標題 Effects of 2-hydroxypropyl -cyclodextrin on the radioactive iodine sorption on activated carbon	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry	6. 最初と最後の頁 659 ~ 667
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10967-021-07672-5	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 該当する

1. 著者名 Nishi Kodai, Hirota Masahiro, Higaki Shogo, Shiraishi Shinya, Kudo Takashi, Matsuda Naoki, Ito Shigeki	4. 巻 13
2. 論文標題 Reduction of thyroid radioactive iodine exposure by oral administration of cyclic oligosaccharides	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 6979-6979
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-023-34254-0	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 該当する

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 廣田昌大, 桧垣正吾, 伊藤茂樹
2. 発表標題 放射性ヨウ素の揮発を抑制しつつ水分を分離する廃液処理法の試み
3. 学会等名 第4回日本保健物理学会・日本放射線安全管理学会合同大会
4. 発表年 2022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	桧垣 正吾  (Higaki Shogo)  (50444097)	東京大学・アイソトープ総合センター・助教   (12601)	

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
---------	---------