

排水中 ^{125}I 濃度のモニタリング

川崎医療短期大学 放射線技術科

川崎医科大学 核医学教室*

村中 明 * 友光達志 * 柳元真一 * 古川高子
* 永井清久 * 曾根照喜 * 大塚信昭 * 福永仁夫
* 森田陸司 西村明久 西下創一

(昭和60年8月23日受理)

Monitoring of Waste Water Contaminated with ^{125}I

**Akira MURANAKA, Tatsushi TOMOMITSU,*
Shinichi YANAGIMOTO*, Takako FURUKAWA*,
Kiyohisa NAGAI*, Teruki SONE*,
Nobuaki OTSUKA*, Masao FUKUNAGA*,
Rikushi MORITA*, Akihisa NISHIMURA,
Soichi NISHISHITA**

Department of Radiological Technology, Kawasaki College of Allied Health Professions

**Div. of Nuclear Medicine, Dept. of Radiology, Kawasaki Medical School*

Kurashiki 701-01, Japan

(Received on Aug. 23, 1985)

Key words : モニタリング, ^{125}I 絶対測定法, 蒸発濃縮法, 検出限界

概 要

核医学施設における排水中の ^{125}I 濃度の簡単なモニタリング法とその精度を検討した。 ^{125}I を含む廃液100mlを蒸発皿に入れ、ガスバーナで2~4mlまで濃縮した。濃縮に要する時間は約1時間で、この時 NaI ($2 \times 10^{-4}\text{M}$) と NaOH ($2 \times 10^{-2}\text{M}$) を廃液中に加えると、濃縮過程における ^{125}I の損失はほとんど無視できた。濃縮した試料はプラスチック試験管に入れ、ウェル型 NaI シンチレーションカウンタで ^{125}I の同時計数を利用した絶対測定法を用いて測定した。この方法は標準線源を必要とせず、簡単に放射能の絶対値がもとめられるので管理測定に適していた。また、試料と自然計数を10分間ずつ測定したとすれば、検出限界は $2 \times 10^{-7}\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度であり、 ^{125}I の排水中濃度測定に十分な感度を有していた。以上のような ^{125}I 濃度測定法は、特別の器具や装置を必要とせず比較的短時間で測定できるので、日常のモニタリングに有用と考えられる。

1. はじめに

核医学施設において排水中の放射能濃度の管理を行う場合に、特に問題になりやすい核種は ^{125}I である。 ^{125}I は *in vitro* 検査の99%以上に使用されており、最近キット中の ^{125}I の量が増加する傾向がある。排水中に ^{125}I が廃棄されると、その物理的半減期が60日で貯留槽中での減衰もあまり期待できない。また、告示別表中の排水中の許容濃度は $2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ と日常臨床で使用される核種の中では最も厳しく、排水口から外へ排水する場合にはさらにこの濃度の1/10以下にして放出しなければならない。

$10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度の放射能濃度を日常モニタリングする場合、ウェル型NaIシンチレーションカウンタを使用して排水そのものを試料とすれば測定感度の面で十分な精度が得られず、排水を濃縮する必要がある。試料の濃縮・分離法として、イオン交換法、沈殿分離法、蒸発濃縮法等の試料調製方法があげられるが、最も簡便にできるのは蒸発濃縮法と考えられる。しかし、ヨウ素は一般に揮発しやすい物質として知られており、濃縮の過程における ^{125}I の損失の評価は正確なモニタリングのために必要不可欠である。

一方、 ^{125}I はその特異的な崩壊によって生ずるphotonの同時計数を利用して、簡単に放射能の絶対測定ができることが知られている¹⁾。この方法は標準線源を必要とせず、また試験管内試料の容量に影響されずに直接放射エネルギーがもとめられ、絶対値の必要な管理測定に適しているものと考えられる²⁾。

本研究においては、 ^{125}I 絶対測定法を用いて蒸発濃縮過程における ^{125}I の損失を種々の条件で検討するとともに、 ^{125}I の検出限界についても考察を加えた。

2. 実験の材料と方法

測定試料はCEAのラジオイムノアッセイの廃液およびNa ^{125}I 溶液を水道水で希釈し、 ^{125}I 放射能濃度約 $0.01 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ のものを原液

として用いた。

試料の調製は原液1mlをビーカーにとり、水道水を加えて100mlに希釈し、直径7.8cmの蒸発皿を用いて約2mlまで蒸発濃縮した。蒸発はガスバーナの上に石綿金網を敷き、その上に蒸発皿をのせて直接蒸発させる方法(直接法)と石綿金網の上にウォーターバスを置き、その上に蒸発皿をのせて間接的に蒸発させる方法(間接法)の二種類の方法を用いた。約2mlに濃縮した試料は直径1.4cmのプラスチック試験管にとり、蒸発皿を洗浄した水(約1mlの水で2回洗浄)を加えて測定試料(全量4ml以下)とした。濃縮過程における ^{125}I の損失を算出するために、原液1mlを直接プラスチック試験管にとりコントロールとした。また、濃縮過程における ^{125}I の損失を防ぐ目的で、何も試薬を加えない場合のほか、ビーカーにNaOH($2 \times 10^{-2}\text{M}$)を加え溶液をアルカリ性に保った場合、NaI($2 \times 10^{-4}\text{M}$)を担体として加えた場合、NaI($2 \times 10^{-4}\text{M}$)とCsCl($2 \times 10^{-3}\text{M}$)を加えCsIを生成させた場合、NaI($2 \times 10^{-4}\text{M}$)とNaOH($2 \times 10^{-2}\text{M}$)を加えた場合についても実験を行い、 ^{125}I の回収率を比較した。

試料の測定にはウェル型NaI(Tl)シンチレーション検出器にマルチチャンネル波高分析器(1024チャンネル)を接続した測定装置を使用し、 ^{125}I の絶対測定法を用いた。 ^{125}I の γ 線スペクトルは1個のphotonの検出による光電ピーク(singles peak: 約30 keV)と2個のphotonが同時計数されたサムピーク(coincidence peak: 約60 keV)にわかれ、ピークの計数率をそれぞれA(cpm)、B(cpm)とすれば、試料の崩壊率No(dpm)は

$$No = \frac{(A+2B)^2}{4B} \dots\dots\dots(1)$$

で計算できる¹⁾。また、この測定法では試験管の材質や容量の変化(0.1~4ml)に対しても $\pm 1.5\%$ 以内の精度で放射能の測定が可能である²⁾。

3. 結 果

Table 1 Comparison of recovery of ^{125}I in direct evaporation and indirect evaporation using water bath

		Direct evaporation		Indirect evaporation
Water temperature		91°C		71°C
Evaporation time (100 ml→2 ml)		53~67 min		126~137 min
Recovery of ^{125}I		SamPle(A) ^a	SamPle(B) ^b	SamPle(A)
without reagent		66%	69%	54%
+ NaOH	($2 \times 10^{-2}\text{M}$)	79%	97%	76%
+ NaI	($2 \times 10^{-4}\text{M}$)	85%	94%	82%
+ NaI	($2 \times 10^{-4}\text{M}$)			
CsCl	($2 \times 10^{-3}\text{M}$)	85%	99%	83%
+ NaI	($2 \times 10^{-4}\text{M}$)			
NaOH	($2 \times 10^{-2}\text{M}$)	100%	100%	96%

a. Waste water in radioimmunoassay of CEA

b. Na^{125}I solution

Table 1 に直接蒸発法と間接蒸発法による ^{125}I 溶液の濃縮における ^{125}I の回収率を比較した結果を示した。直接法では水温が約 90°C で 100 ml から約 2 ml まで濃縮するのに平均 62 分間かかるのに対し、間接法では水温が約 70°C で濃縮時間が平均 130 分間で直接法の 2 倍以上要した。

^{125}I の回収率はいずれの場合においても直接法の方が高温にもかかわらず間接法よりも大であった。試薬を加えず廃液をそのまま濃縮した場合には、 ^{125}I の回収率は直接法で 60~70%，間接法で 50~60% であり、濃縮中の ^{125}I の損失は非常に大であった。しかし、NaOH や NaI を加える事によって ^{125}I の損失は減少し、特に Na^{125}I 溶液の場合は著しい回収率の増加が認められた。NaI と CsCl を加えて CsI を生成する方法は、 Na^{125}I 溶液においては NaI 単独よりも効果があったが、CEA 廃液の試料においては NaI 単独と ^{125}I の回収率が変わらず、CsCl の効果は無かった。また、NaI と NaOH を同時に加えた場合には、直接法、間接法とも最も高い ^{125}I の回収率を示し、直接法においては試料の種類によらずほとんど ^{125}I の損失はなかった。

4. 考 察

今回の実験には、日常の in vitro 検査によって生ずる ^{125}I 廃液を含む排水中の ^{125}I 濃度のモニタリングを考慮し、測定試料として ^{125}I がほとんどタンパク質と結合していると考えられる CEA のラジオイムノアッセイ廃液と Na^{125}I 溶液の二種類を用いた。蒸発濃縮過程における

^{125}I の損失は、ガスバーナで直接高温で蒸発させる方がウォーターバスを用いた間接法よりも少なかった。この結果は、 ^{125}I の揮発は単に濃縮温度のみに依存するだけでなく、濃縮時間によって大きく影響されることを示している。

蒸発濃縮過程における ^{125}I の損失を防ぐために、左合³⁾は試料中に NaI と CsCl を加え CsI を生成させる方法が最も高い放射性ヨウ素の回収率が得られると報告している。この時の試料は Na^{131}I 溶液であり、我々の実験においても試料が Na^{125}I の場合には、NaI と CsCl を加えると ^{125}I の回収率は 99% と非常に高い値を示した。しかし、試料が CEA 廃液の場合には、試料に NaI のみを加えた場合と ^{125}I の回収率は変わらず CaCl の効果は無かった。また、左合の報告³⁾では試料 1 l を水温 44°C で 3.5 時間かけて濃縮しており、我々の実験結果よりも全般に低い ^{131}I の回収率が得られている。これらの結果は、放射性ヨウ素の回収率は試料中の放射性ヨウ素の化学的状態や濃縮条件（試料の量、水温、濃縮時間等）によって影響されることを示しており、実際の日常の放射性ヨウ素のモニタリングにこのような方法を応用する場合には、個々の施設の条件において放射性ヨウ素の回収率を実測すべきものと考えられる。

今回我々の行った実験では、直接法で試料中に NaI ($2 \times 10^{-4}\text{M}$) と NaOH ($2 \times 10^{-2}\text{M}$) を加えて濃縮する方法が、CEA 廃液と Na^{125}I 溶液の両者において ^{125}I の回収率がほぼ 100% と最も高い値が得られた。この方法では ^{125}I の損失を無視でき、また特別の装置を必要とせず約 1 時間で試料の調製が可能であり、日常の放

放射性ヨウ素のモニタリングに適していると考えられる。

濃縮した ^{125}I 試料の測定には同時計数を利用した絶対測定法を用いた。 ^{125}I の崩壊率は(1)式で簡単に計算でき、 ^{129}I の標準線源を用いた比較測定と良い相関を示す²⁾。絶対測定法では通常の測定法に比べて検出限界が高いことが推定される。そこで、 ^{125}I 溶液 100 ml を濃縮した試料と自然計数を10分間ずつ測定し、絶対測定法にて ^{125}I の放射能を求めた場合の検出限界を計算してみた。

^{125}I の γ 線スペクトルの singles peak と coincidence peak の正味の計数率と標準偏差をそれぞれ $A \pm \sigma_A$, $B \pm \sigma_B$ とすると(1)式から、 ^{125}I の崩壊率 N_0 とその標準偏差 σ は

$$N_0 \pm \sigma = \frac{(A+2B)^2}{4B} \pm \frac{(A+2B)^2}{4B} \sqrt{\frac{2(\sigma_A^2+4\sigma_B^2)}{(A+2B)^2} + \frac{\sigma_B^2}{B^2}} \dots\dots(2)$$

となる。検出可能な N_0 は σ の3倍以上とすると

$$\sqrt{\frac{2(\sigma_A^2+4\sigma_B^2)}{(A+2B)^2} + \frac{\sigma_B^2}{B^2}} \leq \frac{1}{3} \dots\dots\dots(3)$$

すなわち

$$\frac{2(\sigma_A^2+4\sigma_B^2)}{(A+2B)^2} + \frac{\sigma_B^2}{B^2} \leq \frac{1}{9} \dots\dots\dots(4)$$

を満足すれば良い。

一方、singles peak の試料の計数率を A_s , 自然計数率を C_A , また coincidence peak の試料の計数率を B_s , 自然計数率を C_B とすると

$$A \pm \sigma_A = A_s - C_A \pm \sqrt{\frac{A_s + C_A}{10}},$$

$$B \pm \sigma_B = B_s - C_B \pm \sqrt{\frac{B_s + C_B}{10}} \dots\dots\dots(5)$$

となる。ここで試料の実測値から、試料の容量が 1~4 ml では $B/A = 0.56 \sim 0.47$ となるので、式を簡単にするために $A=2B$ と仮定し、また

実測した自然計数率は $C_A = 30$ cpm, $C_B = 40$ cpm であるが $C_A = C_B = 40$ cpm と仮定すると(5)式は

$$A \pm \sigma_A = 2B_s - 80 \pm \sqrt{\frac{B_s}{5}},$$

$$B \pm \sigma_B = B_s - 40 \pm \sqrt{\frac{B_s + 40}{10}} \dots\dots\dots(6)$$

となる。

(6)式を(4)式に代入して、(4)式を満足する B_s を求めると $B_s \geq 52$ が得られる。 $B_s = 52$ cpm のとき $A = 24$ cpm, $B = 12$ cpm であり、(1)式より $N_0 = 48$ dpm, すなわち検出できる ^{125}I の最小濃度は $2.16 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。この計算にはいくつかの仮定が含まれているが、この検出限界から ^{125}I の排水中の濃度の管理測定には十分な感度を有しているものと考えられる。

文 献

- 1) J. S. Eldridge and P. Crowther: Absolute determination of ^{125}I in clinical application. Nucleonics 22: 56-59 (1964)
- 2) 村中 明, 他: ^{125}I 絶対測定法の核医学検査への応用, 川崎医療短期大学・紀要 第4号: 1-7 (1984)
- 3) 左合 勉: 低レベル γ 線 (X線) 放出核種を含む水の蒸発乾固による簡易モニタリング—特に放射性ヨウ素に関して—. Radioisotopes 30, 602-605 (1981)