HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	廃液中の131I放射能濃度測定
Author(s)	荒井, 博史; 花田, 博之; 山口, 成厚
Citation	北海道大学医療技術短期大学部紀要, 4, 57-63
Issue Date	1991-12
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/37535
Type	bulletin (article)
File Information	4_57-64.pdf

Instructions for use

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

廃液中の ^{131}I 放射能濃度測定

荒井　博史・花田　博之・山口　成厚

A Method for Measuring the Radioactive Concentration of ^{131}I in the Waste Fluid

Hiroshi Arai, Hiroyuki Hanada and Shigeatsu Yamaguchi

Abstract

Waste fluid from laboratories that use radioactive substances generally shows very low radioactive concentrations. Accordingly, a large quantity of waste fluid is required to obtain reliable radioactivity data. In measurements the waste fluid is evaporated to dryness because of the upper limit of measurable sample volume and the attenuation of low-energy photons and beta rays. This technique is however not applicable to the waste fluid containing radioiodine because this substance is volatile.

For this reason we have devised a new techniqe which evaporates waste fluid after precipitating radioiodine by the silver iodide capture method. Experiment are made to evaluate our method using 100 ml of aqueous solution of ^{131}I containing sand and cleanser as remnant. Into this solution 0.0001−60 mg of potassium iodide is added as carrier. The solution is evaporated to dryness after precipitating ^{131}I by silver nitrate.

A high recovery (>90%) of ^{131}I is achieved even for traces of potassium iodide carrier. For example, a value of 95% is obtained 0.001 mg of the carrier. No appreciable effect of the remnants on the recovery is found.

Thus, our method succeeds in fixing radioiodine, which leads to accurate measurements of radioactive concentration of waste fluid. Our method needs no skilled technigue. Hence, it is a very useful and practical method.

要　　旨

非密封放射性同位元素使用施設からでる排水の放射能は非常に微量で，濃度測定のためには蒸発乾固法などの濃縮操作が必要となる。しかし，蒸発乾固法は空気中に揮散しやすい放射性ヨウ素には適さない。我々は ^{131}I を含む廃液を濃縮する方法として，ヨウ化銀を沈殿させたのち蒸発乾固する方法を開発し，沈殿に必要な担体量および本方法による ^{131}I 回収率を求め検討した。

模擬残渣(砂，クレンザー)を混入した ^{131}I 溶液 100 ml に担体として 0.0001 mg から 60 mg までのヨウ化カリウムを添加し，硝酸銀を加えヨウ化銀を沈殿させ，蒸発乾固させた。

^{131}I 回収率は担体が微量でも高く，廃液 100

北海道大学医療技術短期大学部診療放射線技術学科
Department of Radiological Technology, College of Medical Technology, Hokkaido University

mlに対し担体量0.001 mgを添加すれば95%の回収率が得られ，^{131}Iのほとんどが沈殿に移行した。また，模擬残渣などの不純物による沈殿生成への影響はみられなかった。

本方法は操作が簡便であり，効率よく濃縮でき実用的である。これより，放射能濃度の正確な測定が可能になった。

1．はじめに

本学部非密封放射性同位元素(RI)使用施設では^{32}P，^{35}S，^{59}Fe，^{99m}Tc，^{131}I，^{125}I等9種類のRIが学生実験，実習及び研究に使用されている。

RI使用施設からでる排気および排水は，『放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律施行規則』で規定されている濃度限度以下でなければ，放出や排水ができない。

排気は排気施設のフィルターを通過したのち，大気中に放出される。

排水は貯留槽に一旦溜められ，満水になると廃液の放射能濃度を測定し，濃度限度以下であることを確認のうえ，一般下水口に排水する。本施設では，通常の実験・実習において使用したRIのうち1%が貯留槽に流れると想定している。しかし，放射性廃液およびその一次汚染水を直接貯留槽に流すことはなく，廃液容器に保管され，貯留槽には低レベル放射性廃液または非放射性の排水しか流さない。そのため，貯留槽内の廃液の放射能濃度は非常に低い。

この廃液の放射能を正確に測定するには大量の廃液を一度に測定すればよいが，測定装置構造の制約のため，それは困難である。また，β線及び低エネルギーγ線放出核種では，その廃液中での吸収が無視できないので，大量の廃液をそのままで測定することはできない。このため大量の廃液を濃縮して減容した試料を作成する必要がある。本施設でも使用RIにβ線放出核種が多いため廃液1000 mlを蒸発乾固法により濃縮乾固し，その残渣をGM計数装置で測定している。しかし，使用RIのうち放射性ヨウ素^{125}I，^{131}I以外のRIは残渣中に残るが，放射性ヨウ素は空気中に揮散しやすい[1]。その結果として放射性ヨウ素を含んだ廃液の放射能濃度は実際より低い値を示すことが予想される。

放射性ヨウ素を含む廃液の濃縮法には，従来から陰イオン交換樹脂吸着法[2]，ヨウ化銀捕集法[2-3]，蒸発乾固法[4-5]などが知られている。今回，我々は^{131}Iを簡便に効率よく濃縮するために，^{131}Iをヨウ化銀として沈殿させたのち蒸発乾固する方法を考案し，これに関する基礎的実験を行ったので報告する。

2．方法および結果

放射性ヨウ素として，日本アイソトープ協会供給の無担体のNa^{131}I溶液を蒸留水で希釈して使用した。

2.1　担体量と^{131}I回収率の基礎実験

放射性ヨウ素をヨウ化銀として沈殿させるのに必要な担体量を調べるための基礎実験を行った。

一般に微量のRIを取り扱うときには器壁等への吸着，ラジオコロイドの生成などが生じるので，これを避けるために担体を加える必要がある。この担体量と^{131}I回収率の関係を以下の方法で求めた。

^{131}Iヨウ化カリウム水溶液をつくるために，表1に示すように0.0001 mgから10 mgまでのヨウ化カリウムを担体としてそれぞれポリエチレン試験管(No.1～14)に入れ，ついで^{131}I水溶液(7.03 kBq/ml)1 mlを加えたのち蒸留水で全量を4 mlとした。これらにアンモニア水(1：1)0.05 mlと3.4%硝酸銀溶液1 mlを加えて攪拌し，ヨウ化銀の沈殿を生成させた。これらの試験管を3000 rpmで10分間遠心分離し，その上澄み液1 mlをオートウエルカウンター(ウエル型NaI(Tl)検出器：Aloka ARC-300)で10分間計測して，^{131}Iの水中残存放射能値を得た。測定エネルギー範囲は^{131}I光電

表1　基礎実験における添加薬品量と ^{131}I回収率

No	ヨウ化カリウム (mg)	^{131}I (mℓ)	蒸留水を加えて (mℓ)	アンモニア水 (mℓ)	硝酸銀 (mℓ)	^{131}I回収率 (%)
1	0.0001	1.0	4.0	0.05	1.0	95.3±0.4
2	0.0003	1.0	4.0	0.05	1.0	95.9±0.4
3	0.001	1.0	4.0	0.05	1.0	96.2±0.4
4	0.002	1.0	4.0	0.05	1.0	96.2±0.4
5	0.005	1.0	4.0	0.05	1.0	95.9±0.4
6	0.01	1.0	4.0	0.05	1.0	97.1±0.4
7	0.02	1.0	4.0	0.05	1.0	97.9±0.4
8	0.05	1.0	4.0	0.05	1.0	98.5±0.4
9	0.1	1.0	4.0	0.05	1.0	98.7±0.4
10	0.2	1.0	4.0	0.05	1.0	97.8±0.4
11	0.5	1.0	4.0	0.05	1.0	99.0±0.4
12	1	1.0	4.0	0.05	1.0	99.4±0.4
13	3	1.0	4.0	0.05	1.0	99.4±0.4
14	10	1.0	4.0	0.05	1.0	99.5±0.4
15	0	1.0	4.05	0	1.0	51.0±0.5

ピーク部の 364 keV±10%である。

また，担体を加えない場合との比較のため，硝酸銀のみを加えた ^{131}I 水溶液(すなわち，ヨウ化カリウムとアンモニア水は含まれていない)を作成し，前述と同じ方法で ^{131}I の水中残存放射能値を得た(表1：No. 15)。

つぎに，^{131}I の回収率を式(1)を用いて求めた。回収率は，この式に示すように，水溶液中の放射能のうち沈殿物に移行した放射能の割合である。沈殿物に移行した放射能は，使用した全放射能から水中に残存する放射能を差し引いた量である。本実験では，この全放射能を決定するため，基準試料をつくりこの計数値をあてた。したがって，式(1)は式(2)のように書き換えられ，回収率は水中残存放射能から求められる。

$$\text{回収率}=\frac{\text{沈澱物の放射能(cpm)}}{\text{使用した全放射能(cpm)}}\times 100(\%) \qquad (1)$$

$$=\frac{\text{基準試料値(cpm/ml)}-\text{水中残存値(cpm/ml)}}{\text{基準試料値(cpm/ml)}}\times 100(\%) \qquad (2)$$

ここで基準試料値は，^{131}I 水溶液 1 ml に蒸留水を加え全量を 5.05 ml とした溶液から 1 ml を採取したときの測定値である。

^{131}I 回収率は，表1右欄に示すように，ヨウ化カリウム(担体)が 0.0001 mg と大変微量でも 95%という高い値が得られている。また担体量がこれ以上増加すると回収率はさらに向上し，0.05 mg 以上の担体に対しては 98%以上と 100%に近い値が得られている(図1)。したがって，ほぼ全量の ^{131}I が沈殿に移行したことがわかる。

全量 5.05 ml に対して得られたこれらの結果を 1 ml あたりに換算すると，0.001 mg 以上の担体を使用すると，ほぼすべての ^{131}I が沈殿することがわかる。

担体を使用せず硝酸銀溶液のみで ^{131}I の沈殿を得たとき，その回収率は 49.0%と担体を添加した場合より大層低かった(表1：No. 15)。この結果から，たとえ微量の担体でも，それはヨウ素の沈殿を得るのに重要であることがわかる。

2.2　蒸発乾固法による担体量と ^{131}I 回収率

実際の廃液には砂や実験器具の洗浄に使用したクレンザーなどの種々の不純物が含まれている。このため本実験では砂 500 mg とクレンザー(ネージュ石鹸本舗製：主成分　研磨剤

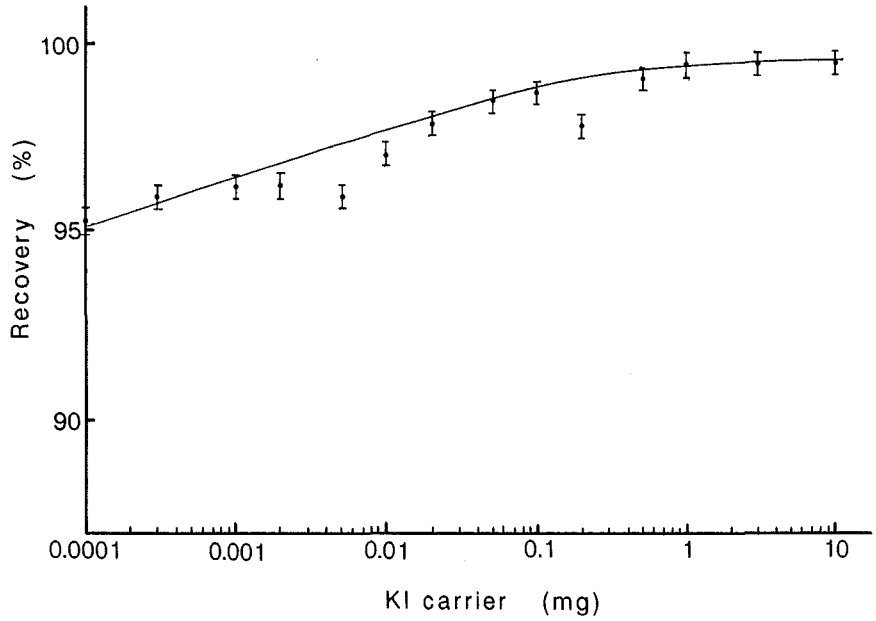

図1　基礎実験におけるヨウ化カリウム量と ^{131}I 回収率の関係

94%，界面活性剤3%)500 mgの模擬残渣を加えて実際に近い状態を作って，異なった量の担体における回収率に及ぼす不純物の影響を調べた。

表2に示すように，0.0001 mgから60 mgまでのヨウ化カリウムをそれぞれ模擬残渣を含む蒸発皿(No. 1～12)に加えた。さらに，これらに ^{131}I 水溶液(7.77 kBq/ml)0.1 ml，ついで蒸留水を加えて，全量を100 mlとした。これらの蒸発皿にアンモニア水(1：1)0.8 mlを添加したのち，3.4%硝酸銀溶液5 mlを滴下しながら攪拌してヨウ化銀の沈殿を生成させた。その後，これらの蒸発皿を沸騰させないよう注意しながらガスバーナーで加熱し，60～70分間で蒸発乾固させ，沈殿物および残渣をできる限り集めて試料測定皿に移した。なお，ヨウ化銀は光により黒化するので，実験中は室内の照明をできるだけ暗くして操作を行った。

沈殿物の放射能測定にはNaI(Tl)検出器(Harshaw　7.6 cmϕ×7.6 cm)とマルチチャネルアナライザ(Northern TN-1750 1024チャネル)を用いた。測定は ^{131}I 光電ピークの364 keVを中心に±12%のウインドウで10分間計測した。

さらに，担体，硝酸銀溶液を添加しないで ^{131}I 沈殿を得る試料(従来法　表2：No. 13)と硝酸銀溶液だけを加えて ^{131}I 沈殿を得る試料(無担体法　表2：No.14)についても同様の蒸発乾固を行い，それらの放射能を計測した。これら二方法と担体を用いた我々の方法との比較を行った。

沈殿物の放射能と全放射能の測定値から回収率を式(1)にしたがって求めた(表2：右欄)。ここで，全放射能は模擬残渣(砂500 mg，クレンザー500 mg)を入れた試料測定皿に ^{131}I 水溶液0.1 mlを滴下し，定温乾燥器内で45±3℃で60分間乾燥した試料の計数値である。なお，この乾燥において ^{131}I が空気中に揮散しないことを以下の実験にて確認している。

全放射能測定に用いたものと同様な試料を120分間定温乾燥器内で乾燥して5分から30分ごとに重量および放射能を測定した。その結

表 2　蒸発乾固法における添加薬品量と ^{131}I回収率

No	ヨウ化カリウム (mg)	^{131}I (mℓ)	蒸留水を加えて (mℓ)	アンモニア水 (mℓ)	硝酸銀 (mℓ)	^{131}I回収率 (%)
1	0.0001	0.1	100.0	0.8	5.0	90.6±0.7
2	0.001	0.1	100.0	0.8	5.0	95.4±0.7
3	0.005	0.1	100.0	0.8	5.0	94.7±0.7
4	0.01	0.1	100.0	0.8	5.0	96.9±0.7
5	0.02	0.1	100.0	0.8	5.0	97.0±0.7
6	0.05	0.1	100.0	0.8	5.0	96.6±0.7
7	0.1	0.1	100.0	0.8	5.0	95.8±0.7
8	0.2	0.1	100.0	0.8	5.0	96.7±0.7
9	1	0.1	100.0	0.8	5.0	98.3±0.7
10	2	0.1	100.0	0.8	5.0	96.5±0.7
11	10	0.1	100.0	0.8	5.0	98.6±0.7
12	60	0.1	100.0	0.8	5.0	99.8±0.8
13	0	0.1	100.58	0	0	38.1±0.4
14	0	0.1	100.08	0	5.0	77.9±0.6

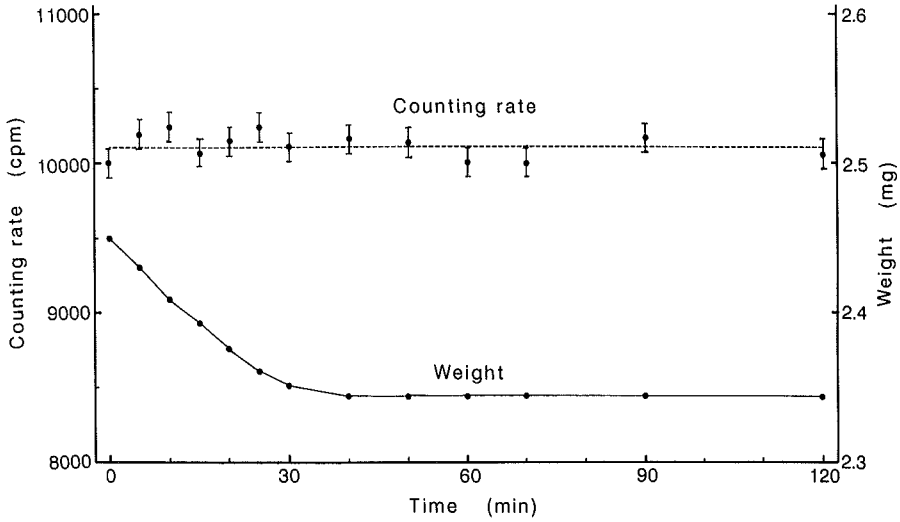

図 2　乾燥時間による重量と計数率の変化

果，開始してから 40 分までは重量が減少したが，それ以降は，重量の変化はみられなかった(図 2)。しかし，計数率は重量の変化に全く依存せず，ある一定値を示している(図 2)。このことは ^{131}I の空気中へ揮散していないことを示すデータである。

回収率は，表 2 右欄に示すように担体量の増加とともに向上し，回収率は高くなり，0.001 mg で 95%，0.01 mg 以上では多少の変動があるが 96～99%となった(図 3)。

担体，硝酸銀溶液を添加しない従来法では 38.1%という低い回収率(表 2:No.13)しか得られず，したがって残り 61.9%の ^{131}I は揮散したとみられる。また，硝酸銀溶液を加えただけの無担体法では 77.9%の回収率(表 2 ：No. 14)が得られるが，この値は我々の手法による結

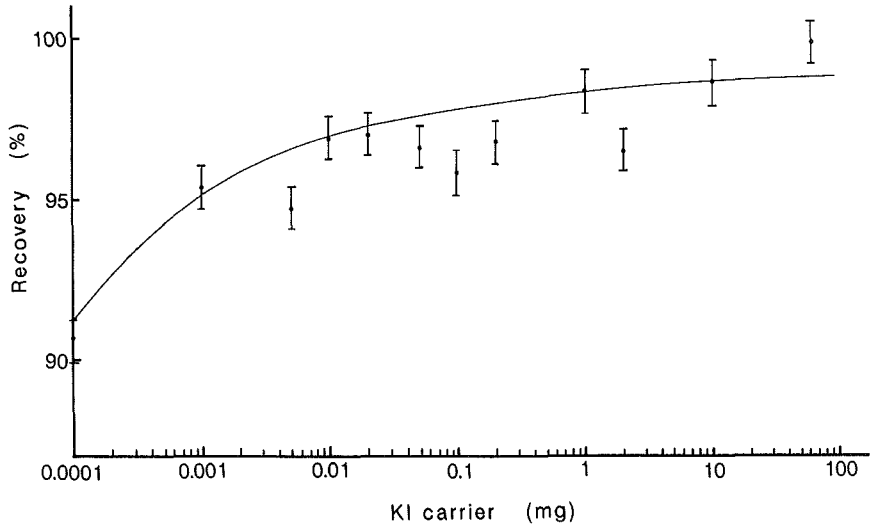

図3　蒸発乾固法におけるヨウ化カリウム量と ^{131}I 回収率の関係

果より相当低い数値である。

3．考　　察

今回，我々は ^{131}I を含む廃液を濃縮して測定するためにヨウ化銀捕集法と蒸発乾固法の二つの方法を組み合わせて使用した。

ヨウ化銀沈殿は一般的に濾過法により得られるが，今回我々が蒸発乾固法を使用したのは次の二つの理由からである。第1は，貯留槽の廃液には，砂，クレンザーなど大きい粒子の不純物が多く含まれので，濾紙では目詰まりをおこして濾過効率が著しく低下するため実用的ではないからである。第2は，廃液には，^{131}I の他にも多種類の RI も含まれ，それらがイオンの状態にあるときには濾紙を通過する可能性が推測される。

蒸発乾固実験においても担体と硝酸銀を加えない従来法では，約40%の ^{131}I しか沈殿に移行せず，残りの約60%が I_2 の形で空気中に揮散してしまうことが確認された。これは従来の測定が放射能濃度を過少に評価していたことを示すものである。

しかし，担体としてヨウ化カリウムを用いて ^{131}I 沈殿をさせると，廃液100 ml あたり0.0001 mg で約90%，0.001 mg で95%，0.01 mg 以上では96～99%と微量の担体に対しても高い ^{131}I 回収率が得られて，^{131}I のほとんど全てが沈殿に移行したことがわかる。廃液100 ml に対する以上のデータを廃液1 ml あたりに換算すると，担体量 10^{-6}mg で約90%，10^{-5}mg で95%，0.0001 mg 以上で96～99%の回収率となり，不純物を含まないの前節2.1の結果とほぼ一致した。したがって，模擬残渣（砂とクレンザー）の ^{131}I 沈殿の影響に及ぼさない。

次に，我々の結果をすでに報告されている異なった方法によるデータと比較しよう。左合[4]は，ヨウ化ナトリウムを担体として添加したのち，塩化セシウムを用いて ^{131}I を沈殿させて，96%の ^{131}I 回収率を得ている。また，川江ら[5]は ^{125}I を対象として，これと同じ方法を用いて ^{125}I を沈殿させ，98%の ^{125}I 回収率を得ている。したがって，我々の方法は彼らの方法と比べても差はみられない。

蒸発乾固法では蒸発皿内の沈殿物および残渣を試料測定皿に移すが，そのすべてを移すことは困難である。しかし，図3の回収率のデータ

からみて，95%以上の沈殿物を試料測定皿に移すことは可能と思われる。

4．結　　論

非密封放射性同位元素使用施設からは，非常に微量かつ空気中に揮散しやすい ^{131}I を含む放射性廃液が排水される。その放射能濃度を正確に測定するためには，廃液の濃縮操作が必要である。その濃縮方法として，ヨウ化銀を沈殿させたのち蒸発乾固する方法を開発した。

この方法では廃液 100 ml あたり 0.001 mg 以上のヨウ化カリウム担体を使用すると 95% の ^{131}I 沈殿が得られて，^{131}I の揮散をほぼ完全に防ぐことに成功した。したがって，廃液中の ^{131}I の放射能濃度を正確に測定できる。また，砂やクレンザー等の不純物による沈殿生成への影響はみられなかった。

本方法は操作が簡便で，特別な器具も必要とせず，非常に有効でかつ実用的な方法である。

稿を終えるにあたり，ご助言，ご協力いただきました本学医療技術短期大学部診療放射線技術学科鈴木茂人教授に心より感謝申し上げます。

参考文献

1）武藤利雄，高田　茂，伊藤信彦，他：放射性物質の飛散の測定 —— 溶液の一般的操作における飛散率の核種間相互比較 ——，RADIOISOTOPES，31，641－647，1982.

2）科学技術庁：「放射能測定シリーズ 4・放射性ヨウ素分析法」，15－25，1979，日本分析センター，東京.

3）桐田博史，本多哲太郎，木村敏正，他：海水中の ^{131}I の迅速定量，RADIOISOTOPES，25，484－488，1976.

4）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 —— とくに放射性ヨウ素に関して ——，RADIOISOTOPES，30，602－605，1981.

5）川江　豊，和田真由美，森　季代美，他：蒸発乾固濃縮によるアイソトープ施設排水中の ^{125}I のモニタリング，RADIOISOTOPES，36，286－289，1987.