

《ノート》

マイクロ波脱水操作中の動物廃棄物からの放射性核種の移行

Escape of Radionuclides from Carcass during Microwave
Dehydration Process

真田 茂* 折戸 武郎* 森 厚文** 菊田 洋子***
安東 醇* 久田 欣一****

Shigeru SANADA*, Takeo ORITO*, Hirofumi MORI**,
Yoko KIKUTA***, Atsushi ANDO and Kinichi HISADA****

*School of Paramedicine, **Radioisotope Center,

***Institute of Radioisotopic Sciences,

****Department of Nuclear Medicine, School of Medicine, Kanazawa University

I. 緒 言

日本アイソトープ協会では、昭和54年度より、放射性動物廃棄物を集荷する際、ホルマリン漬けのものは集荷を停止し乾燥処理を施されたものを集荷するように変更した。

現在、動物廃棄物の乾燥処理法にはマイクロ波脱水法^{1~3)}、凍結乾燥法⁴⁾がある。また、最近加圧蒸気乾燥法についても報告されている⁵⁾。各事業所ではこれらの方針のいずれかを採用しているはずである。

適切な放射線管理を行う上で、廃棄動物体内からの放射性同位元素(RI)の移行の状態を知ることは重要である。すなわち、乾燥処理の過程で廃棄動物体内からコールドトラップされた凝縮水および排気中に移行する RI の割合をあらかじめ充分知っておく必要がある。

われわれは γ 放射核種と ^3H および ^{14}C 標識化合物について、マイクロ波脱水処理を行った場合、放射性廃棄動物体内からどのように移行するかを知るため測定研究を行ったので報告する。

II. 方法および材料

(1) 使用機器

マイクロ波脱水装置は DEHYD- β N-2 型(新日本無線株式会社製)であり、その概要を Fig. 1 に示す。マイクロ波の発振周波数は $2,450 \pm 50$ MHz、発振出力は最大 1.2 kW で、1 度に 1~4 kg の処理能力を持つ。試料容器(Fig. 2)は、直径 28 cm、高さ 11 cm の平底円筒型で、紙製内容器に収容した動物廃棄物を入れたのち、脱水中の試料の飛散を防止するためフィルターペーパーで覆う。

γ 放射核種の測定は Ge(Li) 半導体検出器で γ 線スペクトロメーターを行い、 ^3H および ^{14}C の測定は液体シンチレーションカウンターで行った。

(2) γ 放射核種の移行

$^{22}\text{NaCl}$, $\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$, ^{67}Ga -クエン酸, ^{75}Se -セレノメチオニン, Na^{131}I , $^{134}\text{CsCl}$, $^{201}\text{TlCl}_3$, および ^{203}Hg -クロルメロドリンの 8 種の RI について行

* 金沢大学医療技術短期大学部
** 金沢大学アイソトープ総合センター
*** 金沢大学放射性同位元素医薬学総合研究室
**** 金沢大学医学部核医学科

受付: 55 年 7 月 8 日

最終稿受付: 55 年 8 月 20 日

別刷請求先: 金沢市小立野 5-11-80 (番号 920)

金沢大学医療技術短期大学部
診療放射線技術学科 真田 茂

Key words: Microwave dehydration system, Escape of radionuclides, ^{14}C , ^3H , ^{131}I

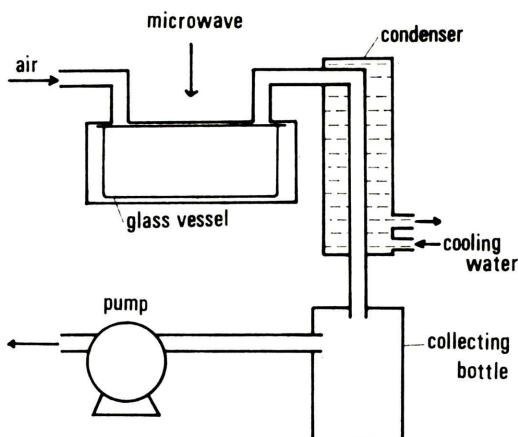


Fig. 1 Schematic diagram of microwave dehydration system.

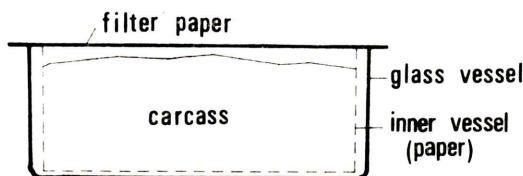


Fig. 2 Dehydration vessel.

った。

ラットにこれらのRIを $1\mu\text{Ci}$ (37 kBq)から $11.5\mu\text{Ci}$ (426 kBq)静注し、約30分後に屠殺し脱水処理を行った。1回の処理量は約1kg(ラット3~5匹)で上記RI3~4種づつ3回に分けて行った。このとき、 ^{203}Hg と ^{75}Se のフォトピークの弁別が困難なのでこの2核種は別々に脱水処理を行った。フィルターペーパーは、約 $8\times 8\text{ cm}$ の大きさに折りたたんでポリ袋に封入して測定し、コールドドトラップされた凝縮水はその全量を容量1lのポリエチレンびんに入れて測定した。脱水処理時の排気中のRIについてはFig. 3に示すように2枚の活性炭濾紙を捕水ビンと排気ポンプとの間に挿入して捕集した。活性炭濾紙は東洋濾紙製55mmφCP-7、ホルダーは柴田化学製濾紙ホルダーB型である。排気中へ移行したRIの全放射能強度(A_t)は次のように求めた。すなわち、1枚目の濾紙の放射能強度(A_1)と2枚目の濾紙の放射能強度(A_2)

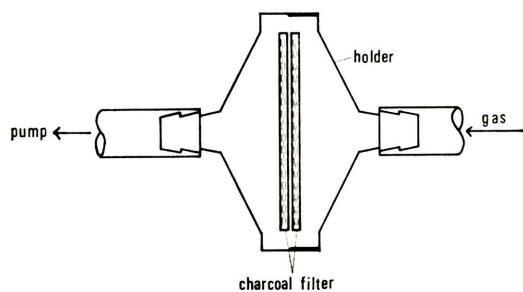
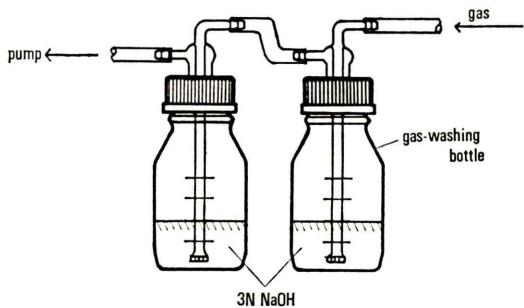


Fig. 3 Scheme of collecting γ -emitting radionuclide.

より1枚目の濾紙の捕集効率が、 $(A_1-A_2)/A_1$ で求められ、これより全放射能強度(A_t)は $A_t=A_1^2/(A_1-A_2)$ で求められる。これらの定量は以下のように行なった。まずフィルターペーパーおよび活性炭濾紙に既知量の前記RIをほぼ均一に付着させ標準試料を作成した。ポリエチレンびんについては、約1kgの動物死体を脱水処理したとき捕水される650mlの水で希釈したものを標準試料とした。採取試料はこれらの標準試料と同一の幾何学的条件で測定することにより定量を行なった。標準試料の測定時間は300秒、採取試料は20000秒あるいは30000秒で行った。

(3) ^3H および ^{14}C の移行

[$6\text{-}^3\text{H}$] チミジン、L-[U- ^{14}C] ロイシン、L-[1- ^{14}C] ロイシン、および[2- ^{14}C] チミジンの4種の標識化合物についてそれぞれ $2.5\mu\text{Ci}$ (92.5 kBq)から $8\mu\text{Ci}$ (296 kBq)をラットに静注し、約30分後に屠殺し脱水処理を行なった。1回の処理量は約1kgで行った。フィルターペーパーはその約1/16(38.5 cm²)の大きさのものを2ヶ所より切り取り、測定バイアル中で液体シンチレーターに浸し測定した。凝縮水は、その1mlを分取し測定した。排気中の放射能強度について ^3H 標識化合物は $^3\text{H}_2\text{O}$ 、 ^{14}C 標識化合物は $^{14}\text{CO}_2$ が主であると考え¹⁾、それらの捕集はFig. 4のように2段の3N NaOHトラップにより行なった。捕集後、各トラップの3N NaOHを6倍に希釈し0.5Nとした後その1mlを測定した。排気中へ移行した ^3H および ^{14}C の全放射能強度(A_t)は γ 放射核種の場合と同様、 $A_t=A_1^2/(A_1-A_2)$ で求めた。

Fig. 4 Scheme of collecting ^3H and ^{14}C .

III. 結果および考察

(1) γ 放射核種の移行

γ 放射核種のフィルターペーパー、凝縮水および排気中への移行の割合を Table 1 に示す。

^{75}Se , ^{131}I , および ^{203}Hg はフィルターペーパー、凝縮水、排気中のいずれからも検出された。 ^{131}I は I_2 として、 ^{203}Hg はクロルメロドリンが分解し Hg としてラット体内から揮発したと考える。 ^{75}Se はイオウと化学的性質が似ており、硫化物を加熱すると亜硫酸ガス SO_2 が発生するのと同様に、セレノメチオニンが分解し、二酸化セレン SeO_4 のようなガスとして移行したと考える。

^{67}Ga および ^{201}Tl は、フィルターペーパー、凝縮水、排気中のいずれからも検出されなかった。 ^{22}Na および ^{134}Cs はフィルターペーパーのみから検出された。これらの RI は同時に脱水処理したグループである。 ^{22}Na および ^{134}Cs を脱水処理

したときは、フィルターペーパーに灰化したラット組織の小片の付着がみられ、 ^{67}Ga および ^{201}Tl の脱水処理のときはみられなかった。すなわち、処理量あるいは乾燥の状態など、脱水処理の状況により、灰化小片あるいは水蒸気と共に噴出したミスト状の粒子が飛散しフィルターペーパーに捕捉される場合がある。その結果、それ自身は飛散しにくいと考えられる RI もこれらに伴って移行するものと考えられる。

^{51}Cr については 2 回行っており、1回は ^{67}Ga および ^{201}Tl と、もう 1 回は ^{22}Na および ^{134}Cs と同時に行った。前者においては ^{67}Ga および ^{201}Tl と同様、フィルターペーパー、凝縮水、排気中いずれからも検出されず、後者においては ^{22}Na および ^{134}Cs と同様、フィルターペーパーのみから検出され前記の推測を裏づける結果となった。また、この点、物理的な飛散を防止するというフィルターペーパーの効果が十分認められた。なお、測定器の検出限界は、RI の種類および試料の形状によっても異なるが、一つの試料につき $10^{-3} \sim 10^{-5} \mu\text{Ci}$ ($0.37 \sim 37 \text{ Bq}$) であった。

(2) ^3H および ^{14}C の移行

^3H および ^{14}C のフィルターペーパー、凝縮水および排気中への移行の割合を Table 2 に示す。

[$6\text{-}^3\text{H}$] チミジンを静注したものは、他の標識化合物と比較すると、凝縮水への移行率が $1.0 \sim 3.1\%$ と高く、逆に排気中への移行率は $2.6 \times 10^{-2} \sim 4.8 \times 10^{-2}\%$ と低い値を示した。チミジンは代謝

Table 1 Escape percentage of γ -emitting radionuclides to filter paper, condensed water and exhaust gas.

Labelled compounds	Weight loss (%)	Administered dose (μCi)	Filter paper (%)	Condensed water (%)	Exhaust gas (%)
$^{22}\text{NaCl}$	65.0	3	9.9×10^{-2}	ND	ND
$\text{Na}_2^{51}\text{CrO}_4$	65.0	1	1.1×10^{-2}	ND	ND
	64.0	1.2	ND	ND	ND
^{67}Ga -citrate	64.0	3	ND	ND	ND
^{75}Se -selenomethionine	65.0	6.5	3.2×10^{-2}	4.9×10^{-1}	*
	64.0	4	9.0×10^{-2}	1.0	3.1×10^{-1}
Na^{131}I	64.0	3	2.8×10^{-4}	6.1×10^{-3}	4.4×10^{-3}
	64.0	3	ND	8.6×10^{-3}	2.4×10^{-2}
$^{134}\text{CsCl}$	65.0	11.5	1.2×10^{-1}	ND	ND
$^{201}\text{TlCl}_3$	64.0	3	ND	ND	ND
^{203}Hg -chloromerodrin	64.0	1	9.1×10^{-3}	1.3×10^{-2}	6.6×10^{-1}

ND: not detected *: Sample is not analyzed.

Table 2 Escape percentage of ^3H and ^{14}C to filter paper, condensed water and exhaust gas.

Labelled compounds	Weight loss (%)	Administrated dose (μCi)	Filter paper (%)	Condensed water (%)	Exhaust gas (%)
[6- ^3H] Thymidine	74.0	3	6.8×10^{-3}	2.8	4.3×10^{-2}
	69.2	6	4.7×10^{-3}	3.1	4.0×10^{-2}
	65.0	2.5	2.4×10^{-3}	2.0	4.8×10^{-2}
	62.3	3	2.4×10^{-3}	1.0	2.6×10^{-2}
	61.8	2.5	1.8×10^{-3}	1.5	3.8×10^{-2}
[2- ^{14}C] Thymidine	62.3	4	3.7×10^{-3}	7.3×10^{-2}	1.2
	60.3	3	8.3×10^{-3}	4.1×10^{-2}	3.6
L-[1- ^{14}C] Leucine	69.2	8	4.6×10^{-4}	1.1×10^{-2}	0.11
	65.0	4	7.9×10^{-4}	1.0×10^{-2}	0.45
	60.5	8	9.0×10^{-4}	1.3×10^{-2}	0.75
L-[U- ^{14}C] Leucine	74.0	4	5.3×10^{-3}	8.2×10^{-2}	*
	62.8	8	6.9×10^{-3}	7.6×10^{-2}	1.5
	61.8	4	1.5×10^{-3}	5.5×10^{-2}	0.11

* Value cannot be calculated.

が速く静注30分後ではそのほとんどがDNAに合成され全身に分布しており⁶⁾、脱水処理により分解し $^3\text{H}_2\text{O}$ として移行したと考えられる。[2- ^{14}C]チミジンの場合、これとは逆に凝縮水への移行率は $4.1 \times 10^{-2} \sim 7.3 \times 10^{-2}\%$ と低く、排気中への移行率は1.2~3.6%と高い値を示した。また、L-[1- ^{14}C]ロイシンおよびL-[U- ^{14}C]ロイシンを静注したものも同様の傾向を示した。これは、 ^{14}C のほとんどが $^{14}\text{CO}_2$ の形で移行すると考えられ、凝縮水に伴ってコールドトラップされずにそのまま排気中に移行したためであろう。L-[1- ^{14}C]ロイシンを静注したものは凝縮水へ $1.0 \times 10^{-2} \sim 1.3 \times 10^{-2}\%$ 、排気中へ $1.1 \times 10^{-1} \sim 7.5 \times 10^{-1}\%$ の移行であり、L-[U- ^{14}C]ロイシンを静注したものは、凝縮水へ $5.5 \times 10^{-2} \sim 8.2 \times 10^{-2}\%$ 、排気中へ $1.1 \times 10^{-1} \sim 1.5\%$ 移行した。すなわち、特定位標識されたロイシンより均一標識されたロイシンの方が大きな移行を示した。ロイシンは静注後5分以内にほとんど血中から消失し組織にとり込まれる⁷⁾。組織が熱分解して CO_2 が発生するとき、このように標識状態の相違によって ^{14}C の移行に差異がみられるのは、ロイシンの炭素骨格のうち、一定の割合ですべての炭素が CO_2 として分解するのではなく、炭素骨格中の位置によって異なるためと考える。

フィルターペーパーへの ^3H および ^{14}C の移行

はL-[1- ^{14}C]ロイシンが最も小さく、他の3種には有意な差異は認められなかった。 $[6-^3\text{H}]$ チミジンについては、脱水前に比し脱水後の重量減少の大きいものほど、移行が大きかった。

(3) 捕水された水および排気に関する放射線管理上の問題点

凝縮水および排気中の放射性同位元素濃度が、排気または排水中の許容濃度を超える場合は、そのままでは一般環境へ放出できない。そこで、これらが許容濃度を超えないような処理動物体内的放射能強度の最大値を以下のようにして求めた。

まず、凝縮水への移行率($\alpha\%$)より、処理動物1kgあたりに許容される放射能強度の最大値(A_w)を $A_w = MPC_w \times \frac{1}{10} \times V_w \times \frac{100}{\alpha} \times \frac{1000}{W}$ で求めた。ここで MPC_w は告示別表1の最大許容水中濃度($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)、 V_w は凝縮水量(cm^3)、 W は脱水前の処理動物重量(g)である。次に排気中への移行率($\beta\%$)より許容される放射能強度の最大値(A_a)を $A_a = MPC_a \times \frac{1}{10} \times V_a \times \frac{100}{\beta} \times \frac{1000}{W}$ で求めた。ここで MPC_a は告示別表1の最大許容空気中濃度、 V_a は脱水処理中の排気量(cm^3)、 W は脱水前の処理動物重量(g)である。排気量については、当施設の排気ポンプ流量が $38 \text{ m}^3/\text{min}$ であり、また1kg程度の脱水処理に約1時間かかるとして $2.28 \times 10^9 \text{ cm}^3$ とした。このようにして算出し

Table 3 Permissible concentration of radionuclides in carcasses. (Aw , Aa)

Labelled compounds	Weight* (g)	Weight loss (%)	Vw** (ml)	Aw*** (μ Ci/kg)	Aa**** (mCi/kg)
^{75}Se -selenomethionine	1000	64.0	650	19	3.3
	1000	65.0	650	40	—
Na^{131}I	1000	64.0	650	220	15
	1000	64.0	660	150	3.4
^{203}Hg -chloromerodrin	1000	64.0	660	99	0.7
	1000	74.0	650	69	1100
$[6\text{-}^3\text{H}]$ Thymidine	1040	69.2	670	63	1100
	1000	65.0	665	100	940
	610	62.3	400	200	2900
	1100	61.8	660	120	1100
	610	62.3	400	720	32
	780	60.3	510	1300	8.4
$L[-1\text{-}^{14}\text{C}]$ Leucine	1040	69.2	670	4400	180
	1000	65.0	665	5200	51
	810	60.5	515	3900	37
$L-[U\text{-}^{14}\text{C}]$ Leucine	1000	74.0	650	640	—
	860	62.8	565	690	19
	1100	61.8	660	870	190

* Weight of carcasses before dehydration

** Volume of condensed water

*** Calculation from escape percentage to condensed water

**** Calculation from escape percentage to exhaust gas

た値 (Aw , Aa) を Table 3 に示す。

凝縮水への移行率から算出した値によると γ 放射核種について、 ^{75}Se は 19~40 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (0.73~1.48 MBq/kg), ^{131}I は 150~220 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (5.55~8.14 MBq/kg), ^{203}Hg は 99 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (3.66 MBq/kg) を超えて含有する動物廃棄物の処理にあたっては、凝縮水はそのままでは排水中の許容濃度を超える可能性があると推測できる。また、凝縮水への移行を検出できなかった他の RIについて、検出限界値をもって算出すると、このうち MPC w の最も小さい ^{134}Cs が 590 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (21.8 MBq/kg), 最も大きい ^{51}Cr が 130 mCi/kg (4.81×10^3 MBq/kg) となった。 ^3H および ^{14}C 標識化合物について、 $[6\text{-}^3\text{H}]$ チミジンは 63~200 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (2.33~7.46 MBq/kg), $[2\text{-}^{14}\text{C}]$ チミジンは 0.72~1.3 mCi/kg (26.6~48.1 MBq/kg), $L-[1\text{-}^{14}\text{C}]$ ロイシンは 3.9~5.2 mCi/kg (144~192 MBq/kg), $L-[U\text{-}^{14}\text{C}]$ ロイシンは 0.64~0.87 mCi/kg (24.8~32.2 MBq/kg) を超えて含有する動物廃棄物は同様に、凝縮水が排水中の許容濃度を超える可能性がある。凝縮水の廃棄はここに示した数

値を目やすとして、そのまま排水するかあるいは希釈、貯留などの処理が必要かどうかを判断することができる。

次に排気中への移行率から算出した値は、 ^{75}Se が 3.3 mCi/kg (122 MBq/kg), ^{131}I が 3.4~15 mCi/kg (126~562 MBq/kg), ^{203}Hg が 0.7 mCi/kg (25.9 MBq/kg) となった。その他の γ 放射核種について検出限界値で算出すると、MPC a の最も小さい ^{22}Na が 680 mCi/kg (2.53×10^4 MBq/kg), 最も大きい ^{51}Cr が 180 Ci/kg (6.73×10^6 MBq/kg) となった。また、 $[6\text{-}^3\text{H}]$ チミジンは 940~2900 mCi/kg (3.48×10^4 ~ 10.7×10^4 MBq/kg), $[2\text{-}^{14}\text{C}]$ チミジンは 8.4~32 mCi/kg (3.11×10^2 ~ 11.8×10^2 MBq/kg), $L-[1\text{-}^{14}\text{C}]$ ロイシンは 37~180 mCi/kg (13.7×10^2 ~ 66.6×10^2 MBq), $L-[U\text{-}^{14}\text{C}]$ ロイシンは 19~190 mCi/kg (7.0×10^2 ~ 7.0×10^3 MBq/kg) と、いずれも凝縮水の移行率から算出した数値より 10^1 ~ 10^4 倍大きな値を示した。一般的にこのような大量投与を必要とする実験はほとんど考えられない。また、各施設の 1 日最大使用量あるいは、排水および排気に

かかる許容濃度が8時間の平均で規制をうけることなどから、凝縮水の廃棄についてわれわれが算出した値を目やすにすれば、脱水処理に関する限り法規制値を超えることはないと考える。

IV. 結 語

市販のマイクロ波脱水装置を使用し、脱水処理中の動物廃棄物からのRIの移行について調べた。その結果、⁷⁵Se, ¹³¹I および ²⁰³Hg など揮発性のRIは投与量の0.01~1%程度が凝縮水あるいは排気中へ移行した。³H標識化合物は1.0~3.1%が凝縮水、0.03~0.05%が排気中へ移行し、¹⁴C標識化合物は0.1~3.6%が排気中、0.01~0.08%が凝縮水へ移行した。これらの結果をもとに、今回実験したRIについて、脱水処理中の排気および脱水処理後の凝縮水の廃棄が、放射線管理上、適切に行なわれるよう動物廃棄物に含まれる放射能強度に関し検討した。

本研究を行う上で、御協力していただきました第一化学薬品株式会社、ならびに中川製作所に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 松岡 理、小泉 彰、福田 俊：放射性動物死体の処理に関する基礎的研究（第1報）。保健物理 **14**: 11-17, 1979
- 2) 小泉 彰、福田 俊、松岡 理：放射性動物死体の処理に関する基礎的研究（第2報）。保健物理 **15**: 25-31, 1980
- 3) 斎藤智雄、西山由美子、疋田彰夫、他：マイクロ波脱水システムによる放射性廃棄動物の処理。Radioisotopes **28**: 15-19, 1979
- 4) 須田博文、石毛和人、横田繁昭、他：市販凍結乾燥機による汚染動物の乾燥処理。Radioisotopes **28**: 319-321, 1979
- 5) 石谷良一、新原将之：加圧蒸気乾燥法による放射性汚染動物の乾燥処理。Radioisotopes **29**: 88-90, 1980
- 6) Staroscik RN, Jenkins WH, Mendelsohn: Availability of tritiated thymidine after intravenous administration. NATURE **202**: 456-458, 1964
- 7) 鈴木 旺、松村 剛、山科郁男、出羽 力：ホワイト生化学II、第5版、広川書店株、東京 1975, p. 687