

労災疾病臨床研究事業費補助金

多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発

平成27年度 総括・分担研究報告書

研究代表者 栗原 治

平成28（2016）年 5月

目次

I. 総括研究報告	3
多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発	4
栗原 治 (放射線医学総合研究所)	
II. 分担研究報告	8
1. 臨界事故時における外部被ばく線量評価に関する研究	9
研究分担者	辻村 憲雄 (日本原子力研究開発機構)
	金 ウンジュ (放射線医学総合研究所)
	矢島 千秋 (放射線医学総合研究所)
研究協力者	吉田 忠義 (日本原子力研究開発機構)
	星 勝也 (日本原子力研究開発機構)
2. アクチノイド核種等における内部被ばく線量評価に関する研究	
2-1 生体試料における前処理法の高速化	22
研究分担者	金 ウンジュ (放射線医学総合研究所)
	谷 幸太郎 (放射線医学総合研究所)
	栗原 治 (放射線医学総合研究所)
2-2 バイオアッセイ法の迅速化のための文献調査及び	
酸循環分解装置酸循環分解装置を用いた分析法の検討	31
研究分担者	藤田 博喜 (日本原子力研究開発機構)
	横山 裕也 (日本原子力研究開発機構)
3. 皮膚汚染における線量評価に関する研究	36
研究分担者	辻村 憲雄 (日本原子力研究開発機構)
	矢島 千秋 (放射線医学総合研究所)
	谷 幸太郎 (放射線医学総合研究所)
	栗原 治 (放射線医学総合研究所)
研究協力者	吉田 忠義 (日本原子力研究開発機構)
	星 勝也 (日本原子力研究開発機構)

I. 総括研究報告

労災疾病臨床研究事業費補助金研究 総括研究報告書

多様な被ばく状況に適用可能な迅速線量評価手法の開発

研究代表者 栗原 治（放射線医学総合研究所）

研究要旨

緊急被ばく医療の対象となり得る事象として、(1) 臨界事故時外部被ばく、(2) アクチノイド核種等内部被ばく、及び、(3) 皮膚汚染に対して、高被ばく者の迅速なトリアージを可能とする線量評価手法の開発に着手した。初年度の研究成果として、(1) では ^{252}Cf 中性子線源を用いた高線量中性子照射場の構築及び汎用 NaI サーベイメータを用いる中性子被ばく線量換算係数の評価、(2) では尿バイオアッセイの迅速化のための前処理法の改良及び迅速線量評価の適用性検討、(3) では汎用 GM サーベイメータに対する計数率-皮膚線量率換算係数を任意の汚染形状に対して評価した。これらの成果を最終年度に作成するマニュアルに反映させる予定である。

研究分担者

放射線医学総合研究所：

金 ウンジュ 研究員
矢島 千秋 主任研究員
谷 幸太郎 研究員

日本原子力研究開発機構：

辻村 憲雄 主任研究員
藤田 博喜 課長代理
横山 裕也 技術員

研究協力者

放射線医学総合研究所：

大野 雅子 技術員

日本原子力研究開発機構：

吉田 忠義 技術副主幹
星 勝也 技術員

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発、整備し、その成果を広く展開することである。本研究では、臨界事故の代表例たるウラン加工施設での臨界事故あるいは汚染（放出）事故の代表例たる原子力発電所事故の際に、対象者の選別（トリアージ）及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組まざるを得なかった状況を鑑みるに、緊急被ばく医療対応の迅速性と向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。

B. 研究方法

本研究では、緊急被ばく医療の対象とな

り得る下記の事象に対する迅速線量評価手法の開発を以下の手順で進める。本研究は3年間の予定で実施し、最終年度には得られた成果に基づきマニュアルを整備する。

(1) 臨界事故時外部被ばく

^{252}Cf 中性子線源を用いるピンポイント高線量中性子照射を可能とする実験体系を構築し、これを用いて中性子捕獲によって体内で生成される ^{24}Na や ^{38}Cl に対する様々な放射線検出器の応答を実験的に評価する。また、計算シミュレーションにより、種々の中性子スペクトルに対する個人線量計の応答を評価する。

(2) アクチノイド核種等内部被ばく

アクチノイド核種等の体内汚染に際し、医療介入線量から誘導される排泄物中の放射能を迅速に弁別するための分析法を開発する。また、核種分離を省略した分析法の有効性を判断するため、使用済核燃料中の核種組成比を評価する。

(3) 皮膚汚染

高汚染を模擬した実験体系を用いて GM サーベイメータなどの応答を評価するとともに、検出器の応答から皮膚の等価線量への換算係数を汚染面積毎に整備する。

C. 研究結果

(1) 臨界事故時外部被ばく

中性子の照射によって、水槽型ファントムに封入した塩化ナトリウム水溶液中に生成された ^{24}Na 等が放出する γ 線による 1cm 線量当量率を、国内で広く使用されている線量当量率サーベイメータ（日立アロカメ

ディカル社製 TCS-172B）で測定した。実験で得られた γ 線 1cm 線量当量率と水溶液中の ^{24}Na 等濃度の関係、並びに中性子吸収線量と人体内 ^{24}Na 濃度（文献値）から、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 1.4~5.9 $\mu\text{Sv/h}$ という関係を得た。

その他、既設の ^{252}Cf 中性子照射装置を利用した高線量で試料を照射することが可能な実験装置の製作や、個人線量計（TLD バッジ）を例に多様な中性子場に対する応答関数を評価した。

(2) アクチノイド核種等内部被ばく

試料回収が容易な尿を用いたバイオアッセイについて、最も時間を要する分析工程となる前処理の高速化を図るため、共沈法（リン酸共沈、シュウ酸共沈）及び有機物分解装置を用いる方法を試験し、最適な分析条件を探索した。その結果、従来法と比較して約半分程度の時間で尿バイオアッセイが可能になるとともに、安定した回収率が得られることを確認した。また、検出限界値も従来法とほぼ同等である結果（U, Pu/Am とともに 1 mBq/試料）を得た。また、文献調査から尿試料中の核種分離に Eichron 社製レジンは有効であることや、ICP-MS 法による実試料中 ^{241}Am の検出下限値は数十 mBq 程度と見込まれることを確認した。加えて、分析環境の整備を進めた。

(3) 皮膚汚染

$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 及び ^{137}Cs の平板線源の上に直径 10 mm~70 mm の穴を開けたステンレス板を乗せ高汚染を模擬した実験体系を用い、国内で広く使用されている端窓式 GM サーベイメータ（アロカ製 TGS-113 型及びその

同型シリーズ) の計数率と皮膚線量率を実験及び計算によって評価した。その結果、汚染サイズに対する計数率-線量率換算係数の依存性の程度を明らかにするとともに、汚染サイズが不明な場合、 $10 \text{ kcpm} = 1 \text{ mGy/h}$ とすれば保守的な線量評価が可能であることを示した。

D. 考察

(1) 臨界事故時外部被ばく

γ 線 1cm 線量当量率-中性子線量換算係数は、 ^{24}Na に比べて半減期の短い ^{38}Cl の相対的な寄与の程度や被検者の体格によって影響する可能性があるため今後調査する。また、より高い感度を要する場合には、線量当量率サーベイメータではなく可搬型の γ 線スペクトロメータを用いることも考えられ、今度調査を進める。

(2) アクチノイド核種等内部被ばく

トリアージ線量評価として実効線量で 100 mSv をカットオフとした場合、尿バイオアッセイ法は体内汚染による実効線量係数の最も高い $^{239/240}\text{Pu}$ に適用可能である。尿排泄率の日変動を考慮しても、スポット尿の分析により 100 mSv は担保可能であると予想される。

(3) 皮膚汚染

上記の換算係数は $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 及び ^{137}Cs だけでなく、原子炉事故に問題となる $^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$ や ^{131}I にも適用可能であると考えられる。一方、端窓式 GM サーベイメータの測定可能レンジは高々 100 kcpm であるため、上記の換算に基づく線量率 10 mSv/h までの汚染しか対応しない。そのため、より高線量

率の汚染に対しては電離箱式サーベイメータを使用する必要がある、今後調査を進める。

E. 結論

本研究では緊急被ばく医療の対象となり得る事象-(1) 臨界事故時外部被ばく、(2)アクチノイド核種等内部被ばく及び(3)皮膚汚染-に対し、多数の被検者から高被ばく者を迅速に選別 (トリアージ) するための被ばく線量評価手法の開発に着手し、幾つか有用な知見が得られた。本研究の特徴は、多様な被ばく状況に対応した、また、汎用の装置を用いた線量評価手法の構築することであり、緊急被ばく医療対応の実行性向上に資すると考える。

F. 健康危険情報

該当無し

G. 研究発表

1. 論文発表

- [1] C. Li, A. Ansari, C. Bartizel, P. Battisti, D. Frank, U. Gerstmann, I. Giardina, C. Guichet, D. Hammond, M. Hartmann, R. L. Jones, E. Kim, E. Ko, R. Morhard, D. Quayle and B. Sadi. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of a recent exercise. *Radiat. Prot. Dosim* (in press).
- [2] H. Itadzu, O. Kurihara and T. Iguchi. Practical self-absorption correction method for various environmental samples in a 1000 cm³ Marinelli container to perform accurate radioactivity determination with HPGe detector. *RADIOISOTOPES*, 64, 661-671 (2015).

2. 学会発表

- [1] 辻村憲雄, 吉田忠義, 高田千恵; 臨界事故ドシメトリのための TLD バッジの応答関数の評価, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2A09, (2016).
- [2] 吉田忠義, 星勝也, 辻村憲雄, 岡田和彦; 皮膚汚染における線量評価法の検討—様々な汚染サイズに対する端窓 GM 管の計数率と VARSKIN の活用—, 日本放射線安全管理学会第 15 回学術大会, P29, (2015).

H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

なし

II. 分担研究報告

労災疾病臨床研究事業費補助金研究
分担研究報告書

臨界事故時における外部被ばく線量評価に関する研究

研究分担者	辻村 憲雄	(日本原子力研究開発機構)
	金 ウンジュ	(放射線医学総合研究所)
	矢島 千秋	(放射線医学総合研究所)
研究協力者	吉田 忠義	(日本原子力研究開発機構)
	星 勝也	(日本原子力研究開発機構)

研究要旨

臨界事故時に、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となるような高線量の被ばくを受けた者を迅速に選別し、その被ばく線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することを目的に、(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率の測定に基づく高線量被ばく者のスクリーニング法、(2) 放射化箔や毛髪などの試料に対して、高線量の中性子照射を行うための簡易的な実験装置の開発、さらに(3) スクリーニング又は線量評価に使用される様々な核反応についての中性子スペクトル依存の程度の定量化に係る研究を実施した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 中性子の照射によって、水槽形ファントムに入れた塩化ナトリウム水溶液中に生成された ^{24}Na 等が放出する γ 線による 1cm 線量当量率を、国内で広く使用されている線量当量率サーベイメータ(日立アロカメディカル製 TCS-172B)で測定した。実験によって得られた γ 線 1cm 線量当量率と水溶液中の ^{24}Na 等濃度の関係、並びに中性子吸収線量と ^{24}Na 濃度の関係(文献値)から、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 1.4~5.9 $\mu\text{Sv/h}$ という関係を得た。この換算は、 ^{24}Na に比べて半減期の短い ^{38}Cl の相対的な寄与の程度や、身体サイズによっても変化すると予想されるため、今後その調査を進める。
- (2) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所に既設の ^{252}Cf 中性子照射装置を利用して、放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性子を照射するための実験装置を製作した。本装置は、公称放射能 1 GBq の ^{252}Cf 中性子線源を保持する案内管の周囲を連続回転するもので、距離 3.0~10 cm、8 時間の運転によって中性子吸収線量 88~950 mGy の照射が可能である。
- (3) 日本原子力研究開発機構核燃料サイクル工学研究所で個人モニタリングに使用している個人線量計(TLD バッジ)を例に、スクリーニング及び中性子線量評価に使用する様々な核反応について、計算シミュレーションによって任意のエネルギー及び入射角度の中性子に対する応答関数を評価し、文献の中性子スペクトルを用いて多様な中性子スペクトルに対する依存の程度を明らかにした。

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量の被ばくが想定される様々な事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。事故の代表例たるウラン加工施設での臨界事故の際に、対象者の選別（トリアージ）及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組みざるを得なかった状況を鑑みるに、本研究は、緊急被ばく医療対応の迅速性と実行性の向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。

背景

臨界事故時における高線量被ばく者の選別及び当該被ばく者の線量評価は、個人線量計や放射化生成物（体内中 ^{24}Na 、毛髪中 ^{32}P 等）の測定に一般に基づく[1]。

このうち、選別（スクリーニング）は、個人線量計等にあらかじめ備え付けておいた放射化箱の測定（簡易な測定器による放射化の程度の測定）によって通常行われる。しかしながら、こうした備えがない場合、あるいは個人線量計そのものを携帯していない場合、被ばく者の選別は容易ではない。例えば、1999年の東海村 JCO 臨界事故では、全身カウンタ(WBC)による体内中 ^{24}Na 放射能の測定によって被ばく者を識別（と線量評価）したという実例[2]はあれども、大人数のスクリーニングには WBC は明らかに不向きであり、より簡便かつ実用的な識別手段を確立しておくことが望ましい。

一方、スクリーニングに続いて線量評価を行う場合、個人線量計の指示値や放射化生成物の量を、吸収線量に変換する係数が

必要になる。この換算係数は、原子炉を利用する照射実験等に基づき、これまで決定されてきた。例えば、臨界事故時の線量評価プログラムが整備されている日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」と記す）核燃料サイクル工学研究所では、1980年代に日本原子力研究所(当時)の NSRR, 2000年代にフランス原子力庁の SILENE 並びに原子力機構の TRACY といった原子炉で照射実験を行った。しかしながら、近年、これらの原子炉（特に SILENE 等の液体燃料を用いるパルス炉）が相次いで閉鎖されるなど、臨界事故時の線量評価を研究の目的とした原子炉のアベイラビリティは、国内外を問わず急速に失われつつある。このため、原子炉に替わる照射実験手段を確保しておく必要がある。加えて、換算係数は、中性子スペクトル依存、すなわち臨界事故が発生した装置の構造や周囲の遮へいによって変化するため、その依存の程度をあらかじめ明らかにしておくことは、迅速な対応の観点で望ましい。

B. 研究方法

平成 27 年度は以下の研究を行う。実験は、原子力機構核燃料サイクル工学研究所の計測機器校正施設で行う。

(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率に基づくスクリーニング

中性子曝露によって体内に生成される ^{24}Na 等が γ 線放出核種であることに着目し、これによる体表面の γ 線 1cm 線量当量率を一般的な線量当量率サーベイメータで観測することによって、高線量被ばくを受けた者かどうかを識別する方法を検討する。

体幹部を模擬する水槽形ファントム（高さ 300 mm×幅 300 mm×奥行 150 mm）に塩化ナトリウム水溶液を入れ、 ^{252}Cf 中性子線源（公称放射能 1 GBq, 中性子放出率 1.19×10^8 n/s）を用いて、線源中心-ファントム表面間距離 75 mm で計 3 時間の中性子照射を行い、塩化ナトリウム水溶液中に $^{23}\text{Na}(n,\gamma)$ 及び $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)$ 反応によりそれぞれ ^{24}Na 及び ^{38}Cl を生成させる。ここで使用する塩化ナトリウム水溶液は、塩化ナトリウム 1,011 g を内容積 10,780 cm^3 のファントムに入れ、蒸留水 10,500 cm^3 で満杯にしたものである。照射終了後、ファントム表面（300×300 mm^2 の面）中央で ^{24}Na 及び ^{38}Cl の γ 線の 1cm 線量当量率を、国内で広く使用されている日立アロカメディカル製 TCS-172B 線量当量率サーベイメータ（25.4 mm 径×25.4 mm NaI(Tl)シンチレータ、エネルギー補償機能付き）で測定する。外部出力をデジタルチャートレコーダーで、照射終了 10 分後から約三日間にわたって連続して記録する。

塩化ナトリウム水溶液中に生成される ^{24}Na 等の放射能を、二種類の方法によって評価する。第一の方法は、照射終了後にピペッタで採取した塩化ナトリウム水溶液 5.0 ml についての γ 線スペクトロスコピーである。使用する検出器は、PGT 社製 IGC-10200 型高純度 Ge 半導体検出器（以下、「HPGe」と記す）であり、観測されたパルス波高スペクトルから ^{24}Na （半減期：14.96 時間）の 1.369 MeV γ 線と ^{38}Cl （同：37.24 分）の 1.643 MeV γ 線のピーク面積をそれぞれ算出し、放射能に換算する。第二の方法は、モンテカルロ計算シミュレーション（モンテカルロ粒子輸送計算コード

MCNP4C2）による。中性子線源及び照射装置の計算モデル（詳細は後述する）に塩化ナトリウム水溶液で満たした水槽形ファントムを追加し、溶液中での $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ 及び $^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{38}\text{Cl}$ 反応率を、MCNP 計算による溶液中の平均中性子フルエンス、Na と Cl の原子数密度、及びそれぞれの反応の微視的断面積の積から求める。また、同じ MCNP の計算モデルを用いて、 ^{24}Na と ^{38}Cl から放出される γ 線を溶液中で一様に発生させたときのファントム表面での γ 線フルエンス（率）を計算し、それに ICRP Publ. 74 の換算係数を乗じて γ 線の 1cm 線量当量（率）を求める。

(2) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

中性子線量当量率サーベイメータ等の校正に使用している既設の中性子照射装置を利用して、毛髪などの生体試料や放射化箔に高線量の中性子を照射するための装置を製作する。

既設装置は、公称放射能 1 GBq の ^{252}Cf 中性子線源と、それを地下の遮へい容器から案内管に沿って空気圧で打ち上げ、床から 120 cm の高さに電磁石で保持する機構からなる[3]。図 1 に当該装置の線源保持部分の外観写真を示す。研究では、MCNP4C2 を用いて、 ^{252}Cf 線源及びその保持機構を精密に再現する計算モデル（図 2）を作成し、中性子線源近傍における中性子フルエンス率及び中性子吸収線量率分布を計算する。さらに、その計算結果に基づき、試料を均一に照射するための装置を製作する。

(3) 線量評価における中性子スペクトル依存性の検討

スクリーニング又は線量評価に利用される核反応は、前述した $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$ 反応を含め、中性子エネルギー（すなわち中性子スペクトル）にその反応の程度が大きく依存する。その依存の程度について、原子力機構核燃料サイクル工学研究所で個人モニタリングに使用する個人線量計（TLD バッジ）を例に検討する。

TLD バッジは、ABS 樹脂ケースに TLD（Panasonic UD-808P 及び UD-809P）とインジウムチップ（約 360 mg）を内蔵する構造からなり、前者は、 γ 線と中性子の線量評価、後者のうち ^{116}mIn は有意な被ばくを受けた者のスクリーニング[4]に、 ^{115}mIn は約 1 MeV 以上のエネルギーを持つ中性子による線量の評価に使用される。ここでは、MCNP4C2 を用いてその精密な計算モデル（図 3）を構築し、熱中性子～15 MeV を適当な間隔で分割した 21 群の中性子を、15～30 度間隔の入射角度（正面を 0 度）で水槽形ファントムの前面中央に設置した TLD バッジに一樣に入射させ、TLD 素子（ $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ ）中での $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 及び $^6\text{Li}(n,\alpha)$ 反応率、並びにインジウムチップ中での $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{mIn}$ 及び $^{115}\text{In}(n,n')^{115}\text{mIn}$ 反応率を計算する。次に、計算によって求めたこれら反応の応答関数と、臨界事故時線量評価プログラム RADAPAS[5]に組み込みの計 140 の中性子スペクトル（金属又は溶液系での ^{235}U の核分裂+様々な遮へい（普通コンクリート、重コンクリート、鉄及び鉛）及び中性子フルエンス-吸収線量換算係数のフォールディングによって、それぞれの反応についての吸収線量当たりのレスポンスを求める。入射方向は、前方（AP）、後方（PA）、右側方（RLAT）及び

左側方（LLAT）からの一方向入射とする。（倫理面への配慮）

本研究は、特定個人を対象とするものではないので人権擁護上の配慮等を特に必要としない。

C. 研究結果

(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率に基づくスクリーニング

図 4 に、塩化ナトリウム水溶液で満たしたファントム表面で観測された γ 線 1cm 線量当量率の時間変化を示す。横軸は、照射終了時刻からの経過時間であり、照射終了 10 分後にバックグラウンドを差し引いた正味値で最大約 0.6 $\mu\text{Sv/h}$ が観測された。図中の実線は、 ^{24}Na 及び ^{38}Cl の壊変定数を基に double exponential 関数でフィッティングした曲線であり、 ^{24}Na による長期成分と ^{38}Cl による短期成分からなる実測線量率の経時変化をよく説明する。

塩化ナトリウム水溶液中に生成された ^{24}Na 及び ^{38}Cl の放射能濃度について、HPGe による測定と MCNP による計算の結果を比べたものを表 1 に示す。測定値と計算値はほぼ一致した。また、MCNP で計算したファントム表面での γ 線 1cm 線量当量率をこの放射能濃度で規格化した結果を表 2 に示す。照射終了 10 分後における γ 線 1cm 線量当量率の計算値 (0.62 $\mu\text{Sv/h}$) は、実測値（約 0.6 $\mu\text{Sv/h}$ ）とほぼ一致した。

表 1 及び表 2 に示したそれぞれの MCNP 計算値の比較から、照射終了 10 分後における γ 線 1cm 線量当量率 1 $\mu\text{Sv/h}$ は、 $^{24}\text{Na} : 10 \text{ Bq/cm}^3 + ^{38}\text{Cl} : 12 \text{ Bq/cm}^3$ に相当するという関係が得られた。

(2) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

図5に、既設中性子照射装置の線源周囲における中性子組織吸収線量率の計算結果を示す。横軸は、線源中心からのラジアル距離である。線源保持部分の構造の非対称（高圧空気パージ用の窓が向いた側か否か等）によって、線量率に数%程度の変化が生じるため、図では、線源から等距離の円周に沿って平均した値を示した。中性子放出率 $1.10 \times 10^8 \text{ n/s}$ （平成28年3月31日）の場合、距離 3.0～10 cm で、120～11 mGy/h の中性子吸収線量率が得られる。

本計算結果に基づき新たに製作した装置を図6に示す。本装置は、試料を取り付ける中空円筒を線源の周りで等速回転することによって、線源保持部分の非対称構造に関係なく、試料を均一に照射することが可能である。

(3) 線量評価における中性子スペクトル依存性の検討

計算によって求めた単位中性子フルエンス当たりの TLD（前面に Cd フィルターを配置した素子）指示値を図7、同じく単位中性子フルエンス当たりの $^{115\text{m}}\text{In}$ 及び $^{116\text{m}}\text{In}$ 放射能（曝露直後）を図8に示す。図7の●プロットは、加速器を用いた単色中性子場及び黒鉛パイル減速熱中性子場で取得した実験値であり、計算値とほぼ一致した。TLD と $^{116\text{m}}\text{In}$ は、熱中性子領域を除き、ほぼ同様の応答関数を持つ。これらの応答関数を用いて、臨界事故時に想定される合計140個の中性子スペクトルに対して、計算した TLD バッジの中性子吸収線量当たりのレスポンスを図9(a)～(c)に示す。横軸は、RADAPAS 組み込みの中性子スペク

トルの番号、縦軸は、中性子吸収線量 1 Gy 当たりの(a) TLD 指示値、(b) $^{116\text{m}}\text{In}$ 放射能（曝露直後）、(c) $^{115\text{m}}\text{In}$ 放射能（曝露直後）である。いずれのレスポンスも中性子スペクトルに大きく依存することが分かる。実際の臨界事故では、この中から事故と線源条件に近いスペクトル番号のものを選択すればよい。

D. 考察

(1) 体表面の γ 線 1cm 線量当量率に基づくスクリーニング

RADAPAS [5]によれば、体内での捕獲 γ 線による寄与を含む中性子吸収線量 1 Gy は ^{24}Na 比放射能 $1.0 \times 10^4 \sim 4.2 \times 10^4$ (^{24}Na Bq/ ^{23}Na g)に相当する。この比放射能は、人体中の安定 Na の質量パーセント濃度 0.14 wt% (体重 70 kg で 100 g の ^{23}Na [1]) を、生体組織の比重 1 を仮定して 0.0014 g/cm^3 と換算すると、 $^{24}\text{Na} : 14 \sim 59 \text{ Bq/cm}^3$ に相当する。この中性子吸収線量と ^{24}Na 濃度の関係 ($1 \text{ Gy} = ^{24}\text{Na} : 14 \sim 59 \text{ Bq/cm}^3$) と、C.(1)で示した γ 線 1cm 線量当量率と ^{24}Na 等濃度の関係 ($1 \mu\text{Sv/h} = ^{24}\text{Na} : 10 \text{ Bq/cm}^3 + ^{38}\text{Cl} : 12 \text{ Bq/cm}^3$) の比較から、最終的に、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 $1.4 \sim 5.9 \mu\text{Sv/h}$ という関係が得られる。ただし、(i) 照射時間が短い場合、 ^{38}Cl による線量率寄与が相対的に増加すること、(ii) 胴体部分はファントムよりもさらに大きいこと、を考えると、同じ中性子吸収線量であっても、体表面の γ 線 1cm 線量当量率はさらに増加すると予想され、今後、これらについて調査を進める必要がある。

また、バックグラウンド放射線レベルが

高い場合は、上記の線量率測定だけによる高線量被ばく者の識別は困難かもしれない。近年、線量当量率だけでなく γ 線スペクトル測定も可能なサーベイメータが市販されているので、それらを利用するスクリーニング法、あるいは ^{24}Na 及び ^{38}Cl がともに β 線放出核種である点に着目したスクリーニング法について今後検討を進める。

(2) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性を照射するための実験装置を製作した。本装置は、距離 3.0~10 cm での 8 時間運転によって中性子吸収線量 950~88 mGy の中性子照射が可能であり、毛髪などの生体試料の放射化実験に十分対応可能である。放射化箔による中性子フルエンス率及び線量率の確認試験を、装置の作動試験を兼ねて今後行う。

(3) 線量評価における中性子スペクトル依存性の検討

TLD バッジを例に、中性子線量評価に使用する様々な核反応について、計算シミュレーションによって、その中性子スペクトルに対する依存の程度を明らかにした。同じ計算手順を利用して、毛髪の放射化 ($^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$) 等についてもデータを今後整理し、これら複数の核反応を組み合わせたり、相互検証したりするなどして、中性子スペクトル依存の程度を補正する手段について今後検討を進める。

E. 結論

(1) 体表面の線量率に基づくスクリーニング

^{252}Cf 中性子線源を用いる中性子の照射によって、水槽形ファントム (高さ 300 mm × 幅 300 mm × 奥行 150 mm) に封じた塩化ナトリウム水溶液中に生成された ^{24}Na 等が放出する γ 線による 1cm 線量当量率を、国内で広く使用されている日立アロカメディカル製 TCS-172B 線量当量率サーベイメータで測定した。実験によって得られた γ 線 1cm 線量当量率と水溶液中の ^{24}Na 等濃度の関係、並びに中性子吸収線量と ^{24}Na 濃度の関係 (文献値) から、中性子吸収線量 1 Gy = 体表面の γ 線 1cm 線量当量率 1.4~5.9 $\mu\text{Sv/h}$ という関係を得た。この換算は、 ^{24}Na に比べて半減期の短い ^{38}Cl の相対的な寄与や、身体サイズによっても変化すると予想されるため、今後その調査を進める。

(2) ^{252}Cf を用いる高線量中性子照射装置

原子力機構核燃料サイクル工学研究所に既設の ^{252}Cf 中性子照射装置を利用して、放射化箔や毛髪などの試料に対して高線量の中性を照射するための実験装置を製作した。本装置は、公称放射能 1 GBq の ^{252}Cf 中性子線源を保持する案内管の外周を連続回転するもので、距離 3.0~10 cm, 8 時間の運転によって中性子吸収線量 950~88 mGy の照射が可能である。

(3) 線量評価における中性子スペクトル依存性の検討

原子力機構核燃料サイクル工学研究所で個人モニタリングに使用している個人線量計 (TLD バッジ) を例に、スクリーニング及び中性子線量評価に使用する様々な核反応について、計算シミュレーションによって任意のエネルギー及び入射角度の中性子

に対する応答関数を評価し、文献の中性子スペクトルを用いて多様な中性子スペクトルに対する依存の程度を明らかにした。

ドシメトリのための TLD バッジの応答関数の評価, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2A09, (2016).

文献

- [1] International Atomic Energy Agency, Dosimetry for Criticality Accidents—A Manual, IAEA Technical Report Series No. 211, (1982).
- [2] T. Momose, N. Tsujimura, T. Tasaki, K. Kanai, O. Kurihara, N. Hayashi, K. Shinohara, Dose Evaluation Based on ^{24}Na Activity in the Human Body at the JCO Criticality Accident in Tokai-mura, J. Radiat. Res. **42**, Suppl., S95–S105 (2001).
- [3] N. Tsujimura, T. Yoshida, T. Momose, Calculations of Anisotropy Factors for Radionuclide Neutron Sources due to Scattering from Source Encapsulation and Support Structures, Radiat. Prot. Dosim. **126**, 168–173 (2007).
- [4] C. Takada, N. Tsujimura, S. Mikami, Recalibration of Indium Foil for Personnel Screening in Criticality Accidents, Radiat. Prot. Dosim. **144**, 575–579 (2011).
- [5] F. Takahashi, Program for Rapid Dose Assessment in Criticality Accident, RADAPAS, JAEA-Data/Code 2006-019 (2006).

H. 知的財産権の出願・登録状況（予定を含む）

なし

G. 研究発表

口頭発表

辻村憲雄, 吉田忠義, 高田千恵; 臨界事故

表 1 照射終了後における塩化ナトリウム水溶液中の放射能濃度 (Bq/cm³)

	照射時間 (分) : 冷却時間 (分)	²⁴ Na	³⁸ Cl
HPGe	180 : 0	6.0 (± 9.1%)	—
MCNP*	180 : 0	6.4 (± 0.3%)	9.3 (± 0.3%)
	180 : 10	6.3 (± 0.3%)	7.7 (± 0.3%)

* 断面積ライブラリに JENDL 3.3 を使用

表 2 MCNP 計算によるファントム表面での γ 線 1cm 線量当量率 (網掛けは測定と同条件)

照射時間(分) : 冷却時間(分)	距離 (cm)	²⁴ Na (μ Sv/h)			³⁸ Cl (μ Sv/h)			²⁴ Na+ ³⁸ Cl (μ Sv/h)
		1.369 MeV	2.754 MeV	合計	1.642 MeV	2.168 MeV	合計	
180 : 0	1.0	0.16	0.27	0.43	0.089	0.15	0.24	0.66
	2.0	0.14	0.23	0.37	0.078	0.13	0.21	0.58
	3.0	0.12	0.21	0.33	0.069	0.11	0.18	0.51
	5.0	0.098	0.16	0.26	0.055	0.090	0.14	0.41
	10.0	0.060	0.098	0.16	0.033	0.054	0.087	0.25
180 : 10	1.0	0.16	0.27	0.42	0.074	0.12	0.20	0.62
	2.0	0.14	0.23	0.37	0.065	0.11	0.17	0.54
	3.0	0.12	0.21	0.33	0.057	0.094	0.15	0.48
	5.0	0.097	0.16	0.26	0.045	0.074	0.12	0.38
	10.0	0.059	0.098	0.16	0.028	0.045	0.073	0.23



図1 中性子照射装置の線源保持部分（線源位置：×印）

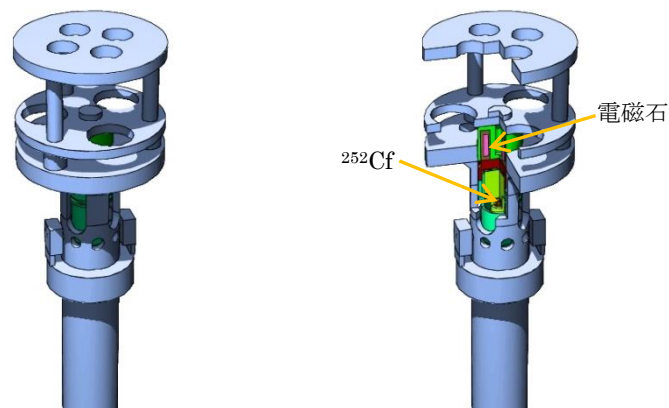
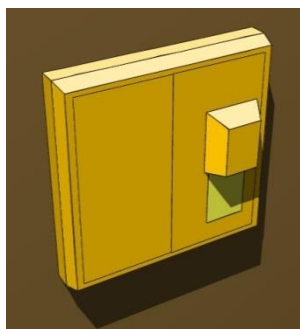
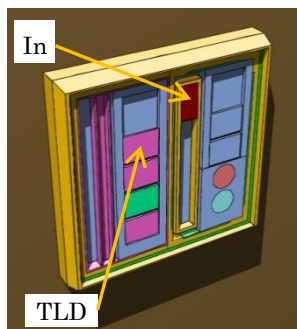


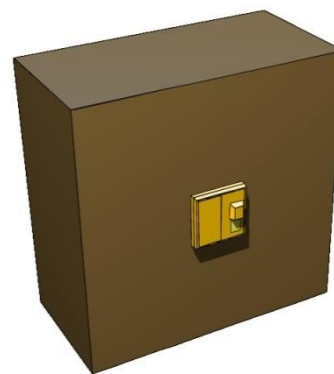
図2 中性子照射装置（線源保持部分）周囲の中性子フルエンス分布のシミュレーション計算モデル（右図は内部構造が見えるよう部分カットした）



(a) TLD バッジ外観



(b) 表面カバー及びCdシールドと取り除いたもの。TLDは矢印で示した位置の裏側にある。



(c) TLD バッジを水槽形ファントム表面に固定

図3 TLD バッジの応答のシミュレーション計算モデル

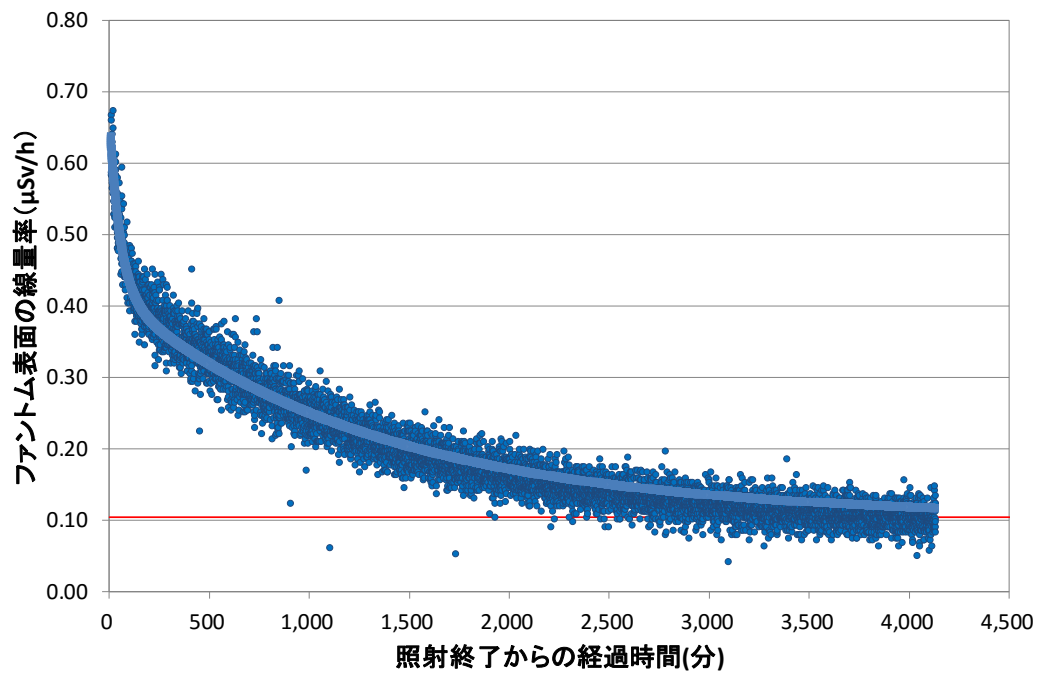


図 4 中性子照射した塩化ナトリウム水溶液を満たしたファントム表面で観察された γ 線 1cm 線量当量率 (照射終了 10 分後～約 4,000 分後)

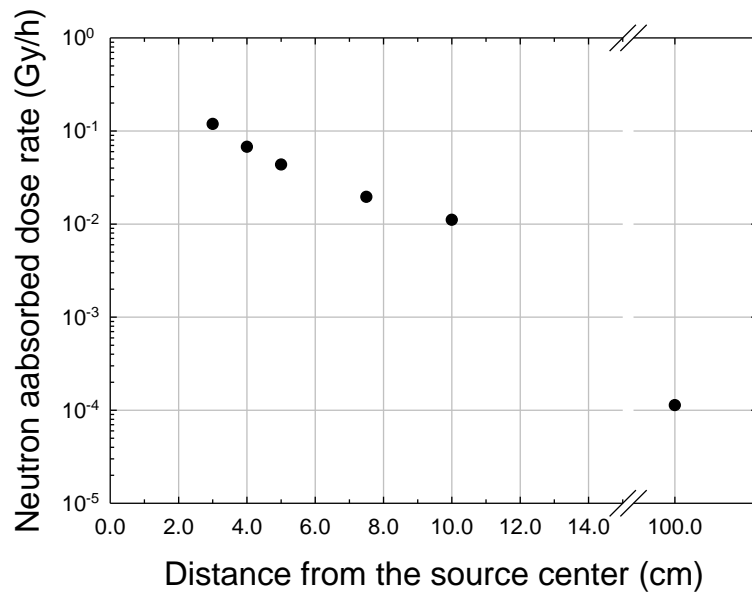


図5 中性子照射装置の線源保持部分外周における平均中性子吸収線量率(中性子放出率: 1.1×10^8 n/s)

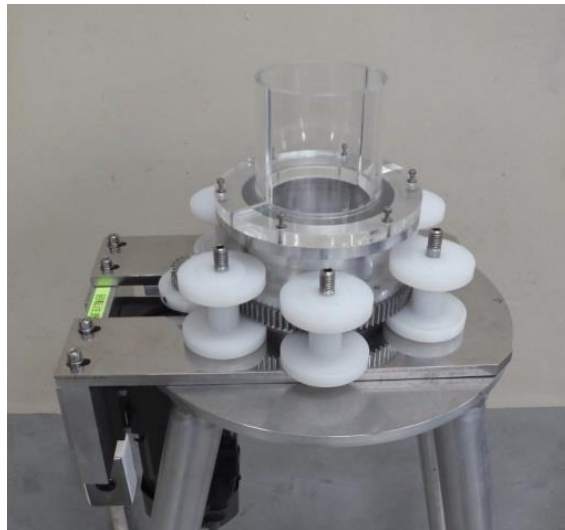


図6 製作した高線量中性子照射装置

図1の照射装置の ^{252}Cf 線源案内管の外周に取り付けて使用する。試料は図の(等速回転する)中空円筒内側に貼付する。

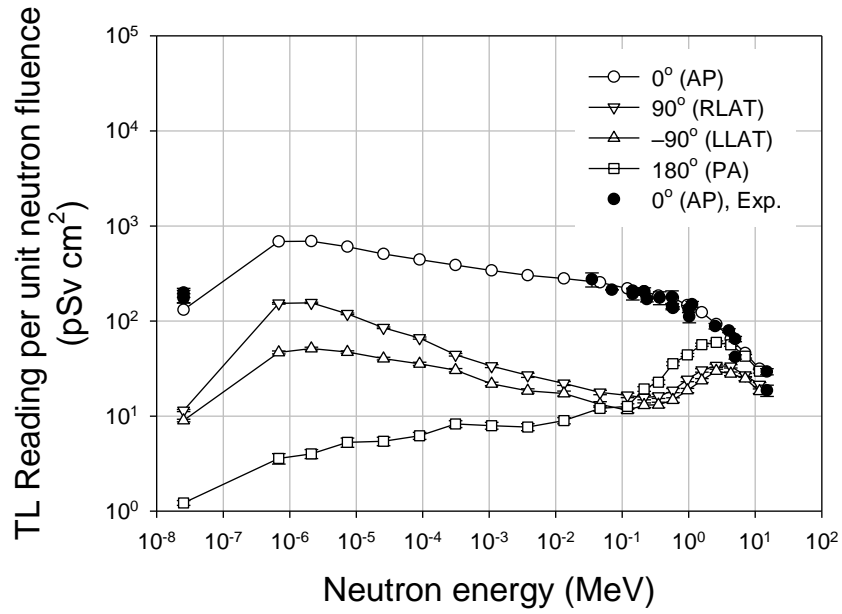


図7 単位中性子フルエンス当たりの TLD バッジ (前面側に Cd フィルターを配置した TLD 素子) の応答 (指示値の単位は, カウント数を γ 線量当量に換算した見掛けのものである)

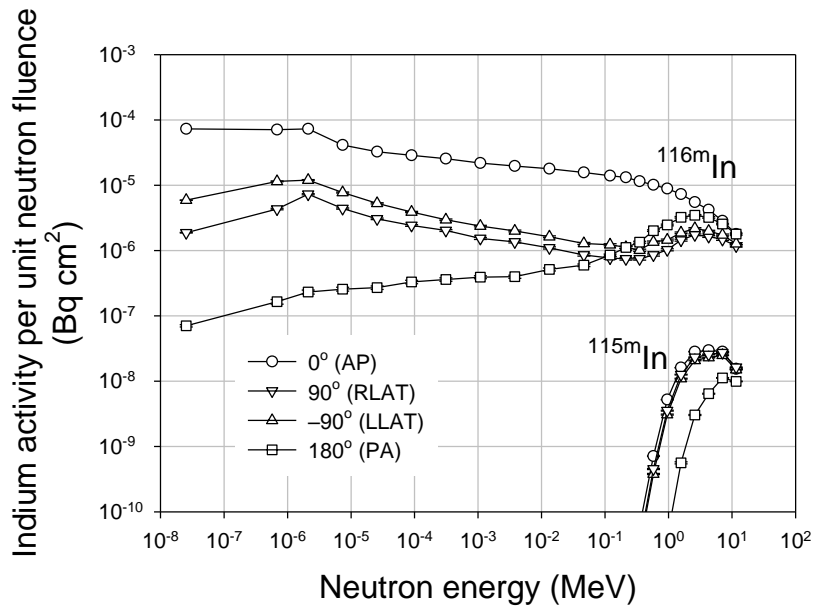


図8 単位中性子フルエンス当たりの TLD バッジ内蔵 In に生成される ^{115m}In 及び ^{116m}In 放射能 (曝露直後)

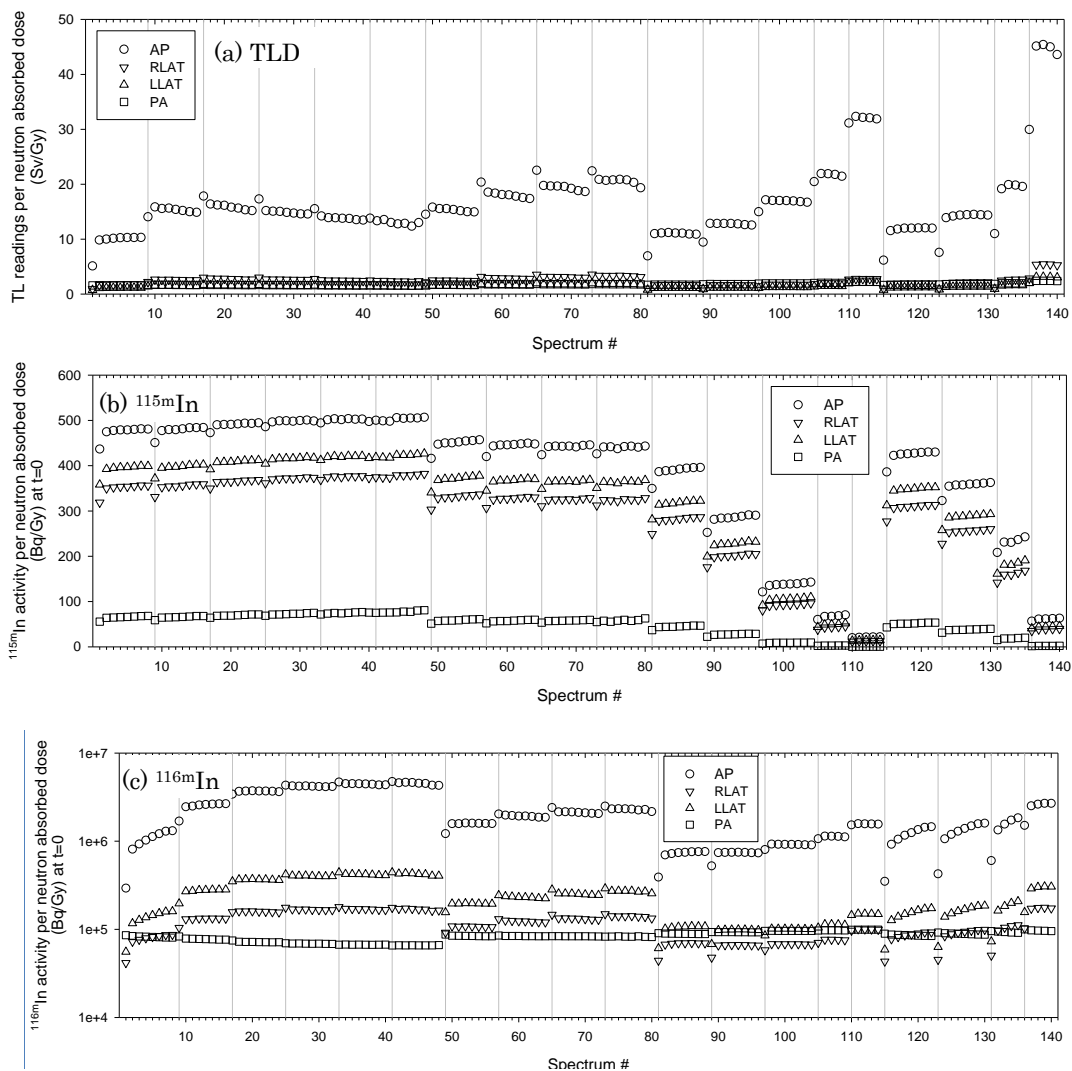


図9 種々の中性子スペクトルに対する中性子吸収線量当たりの TLD 指示値, ^{115m}In 及び ^{116m}In 放射能

横軸は RADAPAS 組み込みのスペクトル番号

番号	線源： ^{235}U	追加遮へい
1~8	金属及び溶液 (半径 17.4~50.0 cm)	なし
9~48	同上	普通コンクリート 10~50 cm
49~80	同上	重コンクリート 10~50 cm
81~114	同上	鉄 5~50 cm
115~140	同上	鉛 5~50 cm

労災疾病臨床研究事業費補助金研究 分担研究報告書

アクチノイド核種等における内部被ばく線量評価に関する研究 生体試料における前処理法の高速化

研究分担者 金ウンジュ（放射線医学総合研究所）
谷 幸太郎（放射線医学総合研究所）
栗原 治（放射線医学総合研究所）

研究要旨

高線量被ばく者に対するトリアージが必要となる一つの状況として、プルトニウムを初めとするアクチノイド核種による内部被ばくがある。アクチノイド核種の多くは α 放射体であるため、排泄物試料の分析（バイオアッセイ）が内部被ばく線量評価の有効な手段となる。しかしながら、バイオアッセイ法は被検者からの試料回収に加えて、前処理（有機物分解）、核種分離、放射能測定などの分析工程に多大な時間を要する短所がある。そこで本研究では、試料回収が容易な尿を用いたバイオアッセイについて、最も時間を要する分析工程となる前処理の高速化を図るため、共沈法（リン酸共沈、シュウ酸共沈）及び有機物分解装置を用いる方法を試験し、最適な分析条件を探索した。その結果、従来法の約半分程度の時間で尿バイオアッセイが可能になるとともに、回収率及び検出限界値においても、従来法とほぼ同等の回収率及び検出下限値（U, Pu/Am とともに 1 mBq/試料）を確認した。トリアージ線量評価として実効線量で 100 mSv をカットオフとした場合、本手法は体内汚染による実効線量係数の最も高い $^{239/240}\text{Pu}$ に十分適用可能である。その際、スポット尿を試料に用いることも考えられる。

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。本研究は、照射事故の代表例たるウラン加工施設での臨界事故あるいは汚染（放出）事故の代表例たる原子力発電所事故の際に、対象者の選別（トリアージ）及び線量評価の事前の入念な準備なしに取り組まざるを得なかった状況を鑑みるに、緊急被ばく医療対応の迅速性と実効性の向上を図る上で喫緊かつ必須なものである。本報告では、高線量被ばく患者を生じる可能性が特に高い事故の内、アクチノイド核

種等による内部被ばく事故においてトリアージとして行うバイオアッセイ法に関して述べる。

バイオアッセイ法は、被検者から採取された生体試料（主として排泄物）中に含まれる放射性核種を定量する方法であり、 α/β 放出核種の定量に利用される。一般的に、生体試料中のアクチノイド核種（その多くが α 放出核種）を対象としたバイオアッセイ法は、最初に生体試料中に含まれる不純物（有機物成分）を分解する前処理、次に測定対象核種を精製するための核種分離、そして放射能測定三段階で行われる。尿試料の前処理には強酸化剤による湿式灰化法が一般的に使われてきたが、この方法で尿試料 500 ml をバイオアッセイするのに要する時間が 40～50 時間を要しており、その大

半が前処理に要する時間(通常, 28 時間)となる。そこで本研究では, 前処理の時間短縮を図るために, 尿試料中の対象核種を選択的に沈殿させて回収する沈殿法を試験し, 最適な条件を探索した。また, 得られた検出限界値がトリアージの観点から十分であるかを検討した。

B. 研究方法

尿中の着目核種を有機物等の妨害成分から選択的に分離するための共沈剤としては, リン酸塩及びシュウ酸塩が用いられる[1]。表 1 に従来法及び今回検討した共沈剤に使用した試薬を示した。図 1 と図 2 に, 尿中ウラン (U) とプルトニウム (Pu) /アメリシウム (Am) の分析手順について, 従来法と共沈法を組み込んだ手順を示した。リン酸共沈法を用いた分析では, 先ず, 尿試料 500 ml に着目核種に応じたトレーサー (^{232}U , ^{242}Pu , ^{243}Am) 及び濃硝酸 100 ml を添加し, 尿試料が 200 ml になるまで濃縮した。その後, 濃縮した溶液に共沈剤として塩化カルシウム (CaCl_2) 水溶液及びリン酸 (H_3PO_4) を滴下し, アンモニア水を加えてリン酸塩と共に着目核種を沈殿させた。次に, この沈殿物は遠心分離機を用いて分離し (3000 rpm, 30 分間), 分離後の沈殿物中に含まれている着目核種以外の成分 (妨害成分) は濃硝酸及び過酸化水素水を用いた湿式灰化法と乾式灰化法により除去した。さらに本研究では, 共沈法により得られた沈殿物

中の妨害成分の除去方法として, 密閉型マイクロ波有機分解装置 (CEM 社製, Discover SP-D) を用いた分解も行い, 妨害成分の除去に要する時間を 5 時間程度に短縮できることを確認した。

前処理の後, 着目核種の抽出をするために, 陰イオン交換樹脂や抽出クロマトグラフィーレジンをを用いて核種分離を行った。U の核種分離は, 前処理後の試料を 8M HCl 溶液に溶解させたものを, 陰イオン交換樹脂 (DOWEX 1×8: 100~200 mesh) を充填したカラムに流し, 樹脂に U を吸着させ, その後, 8M HCl で洗浄し Th 成分を除去した。次に 0.5M HNO_3 溶液をカラムに流し, U を溶離させた。Pu 及び Am の核種分離では, Pu は亜硝酸ナトリウムを用いて価数調整した後, 陰イオン交換樹脂を充填したカラムに流し, Pu をイオン交換樹脂に吸着させた。その後, 8M HCl で Th 等を除去し, さらに 8M HCl-0.1M NH_4I 溶離液で Pu を溶離させた。樹脂に吸着されない Am は, さらに DGA レジン (50-100 μm) [2, 3]を用いて核種分離を行った。

上述のような「前処理」や「核種分離」後の試料溶液は, ステンレスディスク板に着目核種を電着させた後, Si 半導体検出器によって真空条件下で放射能測定を行い, 測定時間は 86400 秒とした。本研究で使用した Si 半導体検出器 (ULTRA シリーズ BU-017-450-100, ORTEC 製) は直径 1 インチであり, 幾何効率を含めた検出効率は 28%であった。

表 1 従来法と本研究で検討した共沈法

	従来法	本研究
方法	湿式灰化法	共沈法及び灰化法(湿式及び乾式)
試薬	HNO_3 , H_2O_2	リン酸共沈: CaCl_2 , H_3PO_4 シュウ酸共沈: $(\text{COOH})_2$, $(\text{NH}_4)_2(\text{COO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 鉄共沈: Fe_2Cl_3 , NH_4Cl
手法	強酸化剤を用いた有機物分解 (加熱法)	共沈法により対象核種を沈殿, マイクロ波マッフル炉あるいは密閉型マイクロ波有機物分解装置(SP-D)により沈殿物中の有機物を分解
核種分離	陰イオン交換樹脂(DOWEX)	陰イオン交換樹脂(DOWEX) 抽出クロマトグラフィーレジン(DGA, UTEVA)

表 2 従来法と本研究で検討した共沈法での回収率及び分析時間

前処理法	U	Pu	Am
従来法	75% (39h)	80% (40h)	75% (48h)
リン酸共沈法	75% (29h)	---	---
シュウ酸共沈法	---	50% (30h)	75% (31h)
リン酸共沈法+有機物分解装置	65% (19h)	85% (24h)	85% (24h)

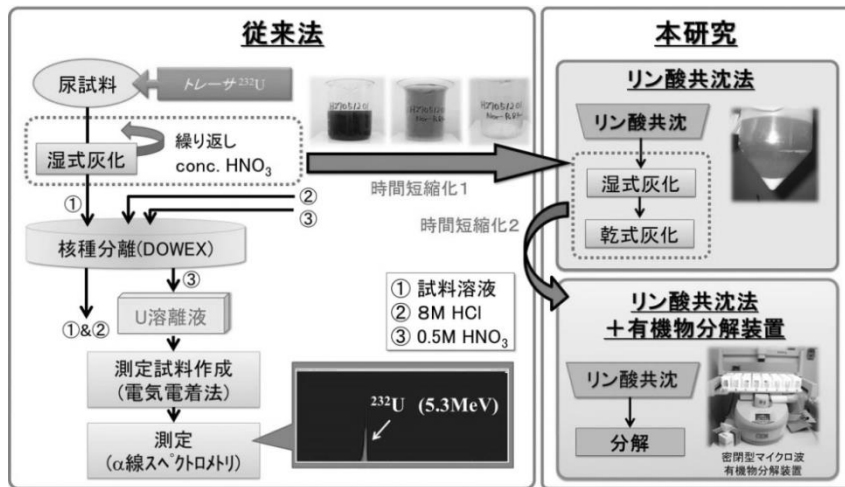


図 1 尿中ウラン分析手順—従来法と本研究

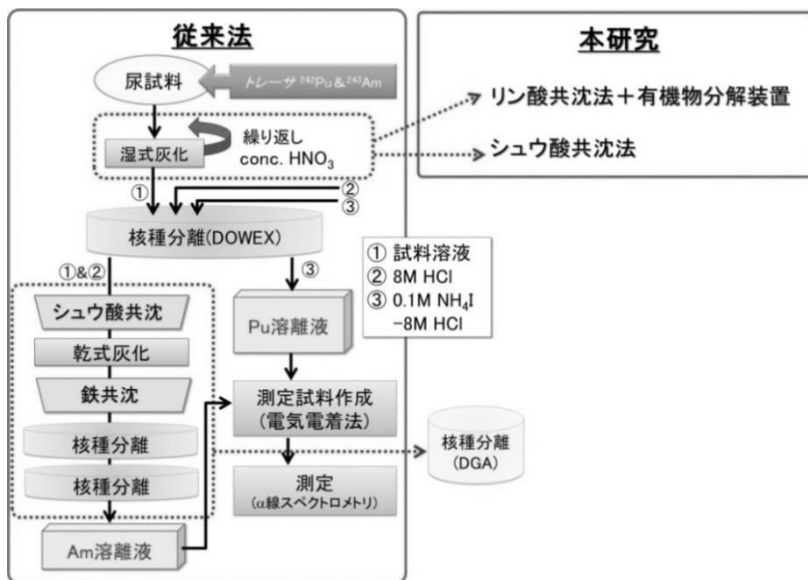


図 2 尿中プルトニウム/アメリシウム分析手順—従来法と本研究

C. 研究結果

尿試料中のアクチニド核種の分析において、従来法と共沈法を用いる手法に要する時間を比較した結果、従来法で約 28 時間要した前処理は、リン酸塩やシュウ酸塩を用いた共沈法により約 18 時間まで短縮された。さらに、有機物分解装置の使用により約 12 時間まで短縮されることが可能となった。表 2 に、両手法の平均的な回収率を示した。U 分析の場合、共沈法を用いる手法は 75% の回収率であり、従来法とほぼ同程度であった。有機物分解装置を追加した手法では回収率が若干低下した (65%)。Pu と Am の分析では、リン酸共沈法と有機物分解装置を組み合わせた場合の回収率は 85% となり、従来法よりも若干ではあるが向上した。他方、シュウ酸塩を使用した共沈法では回収率は Pu で 50%、Am で 75% となり、従来法よりも低い結果となった。検出下限値は、U、Pu/Am ともに 1 mBq (1 日測定) 程度を担保できることを確認した。

D. 考察

アクチニド核種の中でも体内汚染による内部被ばく線量係数の高い $^{239/240}\text{Pu}$ に対する既存の測定技術の典型的な検出限界値[4]を表 3 に示す。 α 線スペクトロメトリによる尿バイオアッセイの検出限界値は 1 mBq l⁻¹ である。本研究では尿試料として 500 ml を供試量としているものの、複数試料を同時に分析することも可能であり、また、放射能測定に用いた Si 半導体検出器をより大きな有感領域を有するものに変更することで、1 mBq l⁻¹ は十

分担保できるものと思われる。各測定技術の検出限界値に相当する実効線量は次式で計算される。

$$E_{MDA} = \frac{MDA}{R(t)} \cdot e(50)$$

ここで、MDA は検出下限値 (Bq)、 $R(t)$ は摂取から t 日目の残留率または 1 日排泄率 (Bq/Bq intake)、 $e(50)$ は実効線量係数 (Sv/Bq) である。 ^{239}Pu の吸入摂取における上記実効線量を図 3 に示す。タイプは、吸入により呼吸気道に沈着した化合物の血中への移行速度の程度を分類したものであり、タイプ M は中位の移行速度 (10% が 10 分間、90% が 140 日の生物半減期で吸収)、タイプ S (0.1% が 10 分間、99.9% が 7000 日の生物半減期で吸収) は遅い移行速度を意味する[5]。Pu では、特に情報が得られない場合は、不溶性の酸化物はタイプ S、それ以外はタイプ M に分類することが推奨されている。表 4 には図 3 の 1 日目の実効線量を示した。

トリアージの観点から 100 mSv をカットオフ線量とすると、肺モニタを用いる体外計測 (*in vivo* X線スペクトロメトリ) は、 ^{241}Am を Pu のトレーサーとして使用できない場合は、検出感度が低すぎるために要件を満たさない。便バイオアッセイは排泄率が高いために、低い線量まで評価することが可能であるが、試料回収に際しての被検者への負担が大きく、また、日々の変動が大きいことから数日分の試料が必要であることを鑑みると、多数を対象としたトリアージのための線量評価手法としては尿バイオアッセイの方が適していると思われる。

表 3 $^{239/240}\text{Pu}$ に対する既存の測定技術の典型的な検出限界値

測定方法	測定対象	検出限界値	測定時間
<i>in vivo</i> X線 スペクトロメトリ	肺部または胸部	2000 Bq	30分～1時間
α 線スペクトロメトリ	尿	1 mBq l ⁻¹	前処理2日+計測1日程度
	便 (24時間)	1 mBq	

参考文献[4]から一部改編

より迅速なトリージ線量評価を行うために、摂取直後のスポット（1回）尿を用いることを検討した。表5に100 mSvに相当する吸入摂取量及び1日目の1日排泄量を示す。スポット尿に含まれる放射能は1日排泄量の5分の1程度となると見込まれるが、これに必要な検出感度はタイプMでは100 mBq程度、タイプSでは5 mBq程度となる。化学分析を行う生体試料量はその量が少なければ前処理に要する時間を短縮できるが、1日尿と比較するとスポット尿に含まれる放射能のばらつきは大きく、内部被ばく線量評価のためのガイドラインによれば、ばらつきの尺度となるSF（Scattering Factor）は1日尿では1.1に対し、スポット尿では2.0とされている[6]。また、スポット尿を用いる場合、標準人の1日の尿量（1.4 l）あるいはクレアチニン補正を行い1日排泄量に補正をして線量評価を行うことになる。ただし、肺に

沈着したPuが血中に移行してから尿中に排泄される機構を考えると、1日の尿中排泄にも時間変化を伴うと考えられる。図4に国際放射線防護委員会（ICRP）が開発したPuの体内動態モデルを示す。同モデルに呼吸気道モデル[5]を結合し、独自開発コード[7]を用いて摂取から0.1日毎の尿中排泄率を計算した（図5）。ただし、1日平均に対する比として同図には示している。この結果から、摂取から1日間の尿中排泄率は時刻によって顕著に変化し、スポット尿を容積等で単純に補正した場合、内部被ばく線量を過小あるいは過大評価する可能性が示唆された。なお、摂取から1日間の0.1日毎の尿中排泄率10データの幾何標準偏差は1.3であった。以上から、スポット尿による尿バイオアッセイは、その不確実性を考慮すればトリージ線量評価に適用することは可能である。

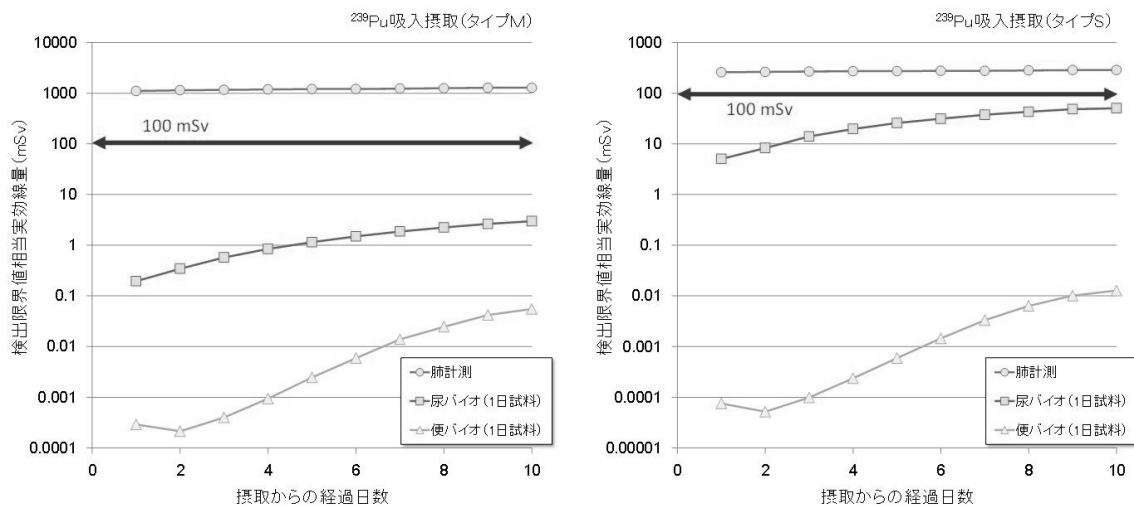


図3 各モニタリング手法の典型的な検出限界値に相当する実効線量

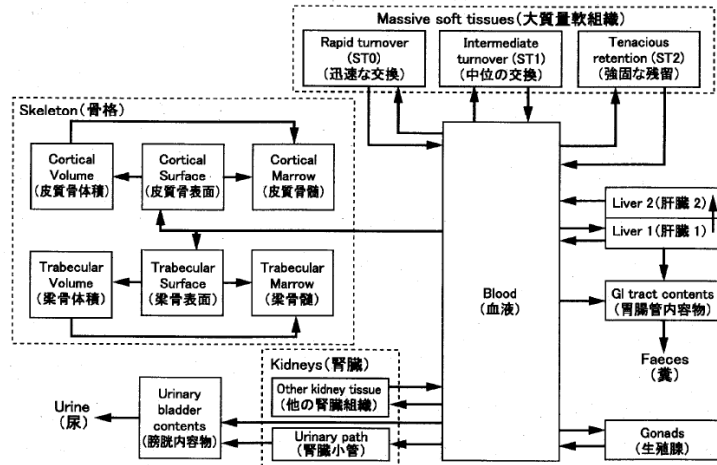


図4 プルトニウムの体内動態モデル[4]

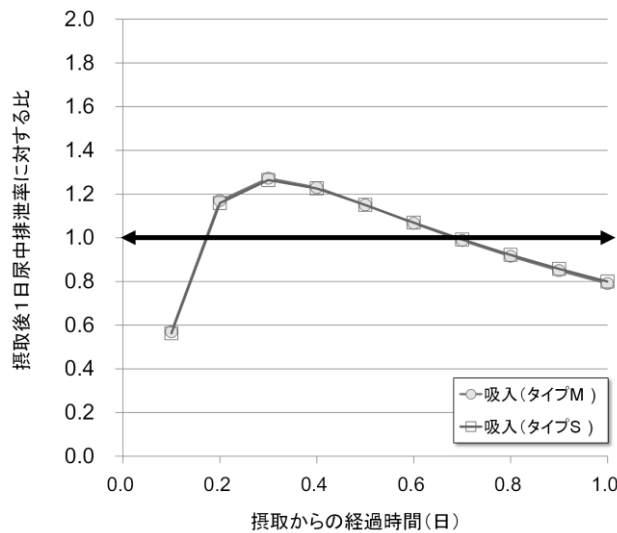


図5 摂取後1日間に於ける尿中排泄率の変動

E. 結論

アクチノイド核種による内部被ばく線量評価を行うための一法として尿バイオアッセイを選定し、従来の分析手順で時間を要していた試料前処理に共沈法を採用し、これと有機物分解装置と併用することにより、分析時間の大幅な時間短縮を実現した。本法による検出下限値 (U, Pu/Am ともに 1 mBq/試料) は、これまでに報告されている典型的な数値と同等であり、安定した回収率が得られることを確認した。高線量被ばく者のトリアージレベルを実効線量で 100 mSv に設定した場合、これに相当する $^{239/240}\text{Pu}$ の摂取後 1 日間の尿中排泄量

はタイプ M で約 100 mBq、タイプ S で約 5 mBq であり、本法による尿バイオアッセイにより十分検出可能である。さらなる分析時間の短縮のためには、スポット尿を用いる方法が考えられる。なお、本報告では内容の記載を割愛したが、開発した分析手法を尿バイオアッセイに関する国際相互比較試験に適用し、その有効性を確認した[8]。また、他の国際相互比較試験 (PROCORAD) にも参加し、試料の分析を進めているところである。さらに、今年度の他の成果として、前処理を必要としないγ線スペクトロメトリ法に要する試料の自己吸収補正法の開発[9]や、核燃料燃焼計算コード

(ORIGEN)により種々の燃焼度におけるプルトニウム同位体組成比を計算し、その結果をまとめた。

参考文献

- [1] J. Lehto and X. Hou. Chemistry and analyses of radionuclides. WILEY-VCH (2011).
- [2] S. L. Maxell and D. J. Fauth. Rapid analysis of emergency urine and water samples. J. Radioanal. Nucl. Chem. 275, 497-502 (2008).
- [3] E. P. Horwitz, R. Chiariza, M. L. Dietz, H. Diamond, D. M. Nelson. Separation and preconcentration of actinides from acid media by extraction chromatography. Anal. Chem. Acta., 281, 361-372 (1993).
- [4] ICRP. Individual monitoring for internal exposure of workers Replacement of ICRP Publication 54. ICRP Publication 78. Ann. ICRP 27(3-4) (1997).
- [5] ICRP. Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. Ann. ICRP 24 (1-3), (1994).
- [6] H. Doerfel, A. Andrasi, M. R. Bailey, V. Berkovski, E. Blanchardon, C. M. Castellani, C. Hurtgen, B. LeGuen, I. Malatova, J. Marsh, J. Stather. General guidelines for the estimation of committed effective dose from incorporation monitoring data (Project IDEAS-EU Contract No. FIKR-CT2001-00160). FZKA 7243 (2006).
- [7] K. Tani, S. Iwai and T. Kosako. Biokinetic analysis code development and applications to visualize the distribution on intake activity. Radiat. Prot. Dosim., 157, 323-330 (2013).
- [8] C. Li, A. Ansari, C. Bartizel, P. Battisti, D. Frank, U. Gerstmann, I. Giardina, C. Guichet, D. Hammond, M. Hartmann, R. L. Jones, E. Kim, E. Ko, R. Morhard, D. Quayle and B. Sadi. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of a recent exercise. Radiat.

Prot. Dosim (in press).

- [9] H. Itadzu, O. Kurihara and T. Iguchi. Practical self-absorption correction method for various environmental samples in a 1000 cm³ Marinelli container to perform accurate radioactivity determination with HPGe detector. RADIOISOTOPES, 64, 661-671 (2015).

G. 研究発表

- [1] C. Li, A. Ansari, C. Bartizel, P. Battisti, D. Frank, U. Gerstmann, I. Giardina, C. Guichet, D. Hammond, M. Hartmann, R. L. Jones, E. Kim, E. Ko, R. Morhard, D. Quayle and B. Sadi. GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of a recent exercise. Radiat. Prot. Dosim (in press).
- [2] H. Itadzu, O. Kurihara and T. Iguchi. Practical self-absorption correction method for various environmental samples in a 1000 cm³ Marinelli container to perform accurate radioactivity determination with HPGe detector. RADIOISOTOPES, 64, 661-671 (2015).

H. 知的財産権の出願・登録情報（予定を含む）

なし

付録 ORIGEN による使用済核燃料中のアクチニド核種の放射能比

表 A に示す軽水炉の炉形や燃焼度の各条件について、ORIGEN2.2-UPJ（我が国の軽水炉の燃料仕様を反映したライブラリを組み込んだ ORIGEN2 の改良版）により使用済核燃料中のアクチニド核種の放射能比を計算した。表 B に計算結果の一例を示す。燃焼度や濃縮度が高くなるほど、比較的半減期の短い ^{238}Pu （87.7 年）や ^{241}Pu （14.35 年）の放射能割合が高くなる傾向がある。炉形（PWR、

BWR）による差異は小さい。また、 β 核種である ^{241}Pu の $\text{Pu}(\alpha)$ （ α 核種である ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の合計）に対する放射能比は停止直後で 30~50 であり、東電福島第一原発でも類似した結果である[1]。 ^{238}Pu は ^{239}Pu と比べて特性 X 線（ L_{α} 、 L_{β} 、 L_{γ} ）の放出割合が高く、また、 ^{241}Pu は β 核種であるため、それぞれ肺計測やバイオアッセイにおいて注意が必要である。例えば、 ^{239}Pu 線源で校正された肺モニタの検出下限値に相当する実効線量は、 ^{238}Pu や ^{240}Pu ではより低く値となる。

表 A ORIGEN の計算条件とした軽水炉の炉形及び燃焼度

計算条件 No.	炉型	濃縮度 (%)	比出力 (MW/t)	燃焼期間 (D)	燃焼度 (MWD/t)
1	PWR	3	35	800	28000
2	PWR	3	35	1000	35000
3	PWR	3	35	1200	42000
4	PWR	3	40	800	32000
5	PWR	3	40	1000	40000
6	PWR	3	40	1200	48000
7	PWR	4	35	800	28000
8	PWR	4	35	1000	35000
9	PWR	4	35	1200	42000
10	PWR	4	40	800	32000
11	PWR	4	40	1000	40000
12	PWR	4	40	1200	48000
13	BWR	3	35	800	28000
14	BWR	3	35	1000	35000
15	BWR	3	35	1200	42000
16	BWR	3	40	800	32000
17	BWR	3	40	1000	40000
18	BWR	3	40	1200	48000
19	BWR	4	35	800	28000
20	BWR	4	35	1000	35000
21	BWR	4	35	1200	42000
22	BWR	4	40	800	32000
23	BWR	4	40	1000	40000
24	BWR	4	40	1200	48000

表 B (1) PWR, 濃縮度 3%, 比出力 35 MW/t, 燃焼度 28000 MWD/t の各核種の放射能強度 (Bq per 1 ton U)

核種	冷却期間											
	停止直後	180日	1年	2年	3年	4年	5年	7年	10年	20年	30年	50年
U235	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.78E+08	7.79E+08
U236	8.19E+09	8.19E+09	8.19E+09	8.19E+09	8.19E+09	8.19E+09	8.19E+09	8.20E+09	8.20E+09	8.20E+09	8.21E+09	8.22E+09
U238	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10
PU238	5.79E+13	6.16E+13	6.29E+13	6.35E+13	6.32E+13	6.27E+13	6.22E+13	6.13E+13	5.98E+13	5.53E+13	5.11E+13	4.37E+13
PU239	1.29E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13	1.31E+13
PU240	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13	1.69E+13
PU241	4.86E+15	4.74E+15	4.63E+15	4.41E+15	4.20E+15	4.01E+15	3.82E+15	3.47E+15	3.00E+15	1.85E+15	1.15E+15	4.38E+14
PU242	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10	5.38E+10
NP237	8.56E+09	8.78E+09	8.78E+09	8.79E+09	8.80E+09	8.80E+09	8.82E+09	8.84E+09	8.90E+09	9.18E+09	9.55E+09	1.04E+10
AM241	3.96E+12	7.75E+12	1.16E+13	1.88E+13	2.56E+13	3.22E+13	3.84E+13	4.99E+13	6.52E+13	1.02E+14	1.24E+14	1.43E+14

表 B (1) BWR, 濃縮度 3%, 比出力 35 MW/t, 燃焼度 28000 MWD/t の各核種の放射能強度 (Bq per 1 ton U)

核種	冷却期間											
	停止直後	180日	1年	2年	3年	4年	5年	7年	10年	20年	30年	50年
U235	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.77E+08	6.78E+08
U236	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.38E+09	8.39E+09	8.39E+09	8.39E+09	8.40E+09
U238	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10	1.18E+10
PU238	4.71E+13	5.01E+13	5.12E+13	5.16E+13	5.14E+13	5.10E+13	5.06E+13	4.98E+13	4.87E+13	4.50E+13	4.16E+13	3.55E+13
PU239	1.02E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13	1.04E+13
PU240	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13	1.64E+13
PU241	3.78E+15	3.69E+15	3.60E+15	3.43E+15	3.27E+15	3.11E+15	2.97E+15	2.70E+15	2.33E+15	1.44E+15	8.91E+14	3.40E+14
PU242	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10	4.94E+10
NP237	7.47E+09	7.67E+09	7.67E+09	7.68E+09	7.68E+09	7.69E+09	7.70E+09	7.72E+09	7.76E+09	7.98E+09	8.27E+09	8.95E+09
AM241	2.94E+12	5.89E+12	8.84E+12	1.45E+13	1.98E+13	2.49E+13	2.97E+13	3.87E+13	5.05E+13	7.92E+13	9.61E+13	1.11E+14

参考文献

[1] 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也. 福島第一原子力発電所の燃料組成評価. JAEA-Data/Code 2012-018 (2012).

については同様の方法を使用してきた。

しかし、上記の方法は、大量の供試量を分析でき、低レベルの放射能濃度を測定できるが、分析、測定に長時間が必要となる。このため、学術雑誌等を閲覧し、最新の文献調査を行い、迅速アクチノイド核種分析法に応用可能な分析・測定法を調査した。

(2) 分析環境の整備

B-1 で調査した文献調査結果から、Eichrom 社製レジン及び誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 法を応用可能であることが分かった。

Eichrom 社製レジンとしては、TEVA, DGA, TRU レジンを組み合わせることで、U, Pu, Am, Cm 等が分析可能であるため、これらのレジンを使用するために必要な周辺器材に関する情報を取得した。また、各レジンの特性に関する情報を取得した。

ICP-MS 法で測定するためには、測定時に妨害となる元素を把握する必要があるため、この妨害元素等に関する情報を収集した。

(3) 分析、測定法の検討

Eichrom 社製レジンの使用方法について、コールド試験を行った。各レジンをそれぞれ組み合わせて使用するための必要な器材の組み立てを行い、その後、純水による通液を行い、使用に関する問題点等を把握した。

ICP-MS 法については、Agilent Technologies 社製 8800 トリプル四重極 ICP-MS を使用した。Isotope Products 社製 Am - 241 標準溶液を使用して検量線を作成し、その検量線から検出下限値を算出

した。検量線作成に使用した標準溶液の濃度は、0, 0.41, 4.1, 41 mBq/mL とした。

尿試料の有機物分解において、株式会社アクタック社製酸循環分解装置「エコプレシステム」を適用するための基礎実験を行った。エコプレシステムとは、酸循環分解容器 (PFA 容器) 内に試料と試薬を入れ、グラフィートブロック加熱システム (OD-98-002) で加熱し、分解するシステムである。酸循環分解容器は、試料分解中の揮発性元素を回収しながら試薬を容器内で循環利用するため、損失やコンタミネーションを防止することができる。300 mL 用酸循環分解容器を使用した場合には、同時に 20 個の試料を加熱することが可能である。このエコプレシステムで尿試料 100 mL を分解した後、溶液の色を観測した。試薬としては濃硝酸 20 mL、過酸化水素水 5 mL を加えた。ここでの分解条件としては、株式会社アクタックと議論をし、①210°C まで 30 分間で昇温→②210°C で 10 分間加熱→③140°C まで 5 分間で降温→④210°C まで 5 分間で昇温→⑤210°C で 30 分間加熱→⑥160°C まで 5 分間で降温、を 1 サイクルとした。その後、サンドバス上で試料溶液をシロップ上になるまで加熱し、純水を使用して 100 g となるように試料を調製した。島津製作所製紫外可視分光光度計 (UV-1800) により、200 nm の吸光度を測定した。原子力機構で定常的に行っている尿中ウラン分析法で有機物分解した試料溶液とその吸光度を比較した。また、一連のエコプレシステムでの Am の回収率を求めするために、Am - 241 標準溶液を添加した尿試料を分解し、蒸発乾固後に純水で 100 g とし、ゲルマニウム半導体検出器により 1

万秒測定し、その濃度を求めた。

C. 研究結果

(1) 関連文献調査

国内外の文献を調査した結果、Eichrom社製レジンはTEVA, DGA, TRUレジンを組み合わせることで、迅速にアクチノイド核種を分析できることが分かった。その組み合わせとしては、Pu, Np分析としてはTEVAレジンを、Am, Cm分析としてはTEVAレジン+DGAレジンを、U分析としてはTEVAレジン+TRUレジンであった。しかし、これらのレジンについては、購入価格が高く、それらの使用量の最適化の必要なことも分かった。

(2) 分析環境の整備

Eichrom社製レジンを使用して分析するためには、DGA Resin, TEVA Resin, TRU Resin, ポリカーボネート真空吸引システム, 20mL Cartridge Reservoirs, Yellow Outer Tips, Inner Support Tube, PTFE 遠沈管, 真空ポンプ等の器材が必要であるため、これらを購入した。また、各レジンの特性に関する情報も収集し、分析するための基礎データとして整備した。

ICP-MS法によるAm-241測定において、Pu-241, Pu-240+水素-1, Bi-209+S-32等が試料溶液中に存在すると、Am-241濃度を過大評価することが分かった。このため、分析法を検討する際には、これらの測定時に妨害となる元素を出来るだけ除去する必要がある。さらに、8800トリプル四重極ICP-MSでは反応ガスを導入することで、測定時に目的元素以外を除去できることが分かった。

(3) 分析、測定法の検討

各レジンを使用してのコールド試験を行った結果、整備した器材等を組み合わせることで、使用上での問題点は特になかった。

Am-241標準溶液による検量線を図1に示す。検量線から算出した検出下限値は0.51 mBq/mLであり、最終溶液100 mLで、分析回収率が60%だとすると、尿試料当たりの検出下限値は0.85 mBq/試料となった。なお、ICP-MS測定における計数率の相対標準誤差は、41 mBq/mLの標準溶液測定時で8.6%であった。

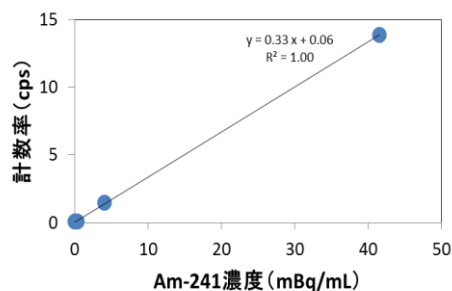


図1 Am-241濃度に対するICP-MS計数率

エコプレシステムでの尿試料の有機物分解の色の変化を図2に示す。図2からは、茶褐色の尿試料溶液が、1サイクル後に溶液の色が黄色に変化し、2サイクル後には透明になっていることが分かった。3サイクル及び4サイクル後でも、2サイクル後の試料溶液の色と変化はなかった。これらの溶液をサンドバス上でシロップ上になるまで加熱し、純水で100 gに定量した試料溶液の吸光度を測定した。その結果、1サイクル後で、通常のウラン分析法による有機物分解と同等の吸光度が得られた。なお、シロップ上になるまで加熱する際に、突沸等は発生しなかった。

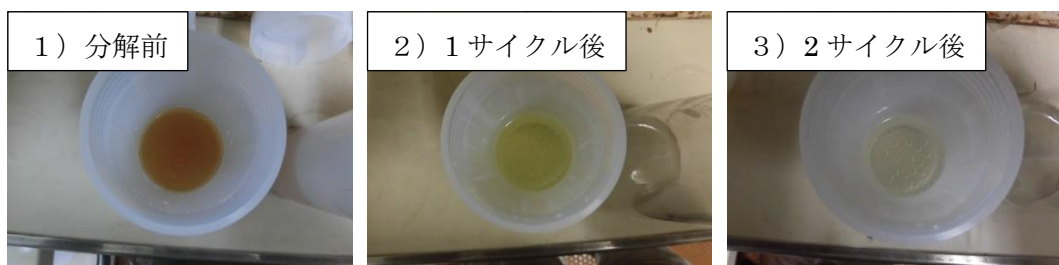


図2 エコプレシステムによる尿試料溶液の色の変化

Am-241 標準溶液を加えた尿試料溶液をエコプレシステムで、上記と同様に分解したところ、1 サイクル後の試料ではAm-241の回収率が81%であったが、2 サイクル後では100%、3 サイクル後では97%、4 サイクル後では94%であった。

D. 考察

関連文献調査においては、Eichrom 社製レジンを使用することで、迅速に尿あるいは便中アクチノイド核種を分析可能であることが分かった。しかしながら、その価格が高いことや大量の分析供試量は適用が困難であることから、目的とする分析レベルに応じて、沈殿法等を組み合わせる必要がある。

分析環境の整備においては、必要な器材等を購入し、分析法の開発に係る準備は整えることができたと考える。また、ICP-MS 法によるアクチノイド核種の定量の場合には、分析法及び測定時における反応ガスの導入により、妨害元素の除去の必要であることが分かった。しかし、全 α 放射能分析としてZnS (Ag) シンチレーション検出器やシリコン半導体検出器を用いる場合には、ICP-MS 法とは異なった視点での分析法の検討が必要である。

分析、測定法の検討においては、各レジンの使

用に関して特に問題のないことが分かった。また、ICP-MS 法による試料中 Am-241 濃度の検出下限値は0.85 mBq/試料であるが、測定時の計数値の相対標準偏差を考慮すると、実際の試料の検出下限値は数十倍程度になることが分かった。よって、必要な分析レベルに応じて、ICP-MS 法を測定系として選択することになる。一方、エコプレシステムでの有機物分解法の検討を行った結果、従来の尿中ウラン分析法における有機物分解法と同等のレベルまで有機物分解できることが分かった。同時に20件の試料を処理できることから、多数の試料を分析する場合には有効であると考えられる。また、供試量が少ないようであれば、分析時間の短縮も可能である。

E. 結論

今年度の研究により、①迅速に尿中アクチノイド核種を分析するためにはEichrom 社製レジンが有効であること、②多検体の尿中有機物を同時に分解する際にはエコプレが適用可能であること、が分かった。

これらの成果は、次年度以降に実施する①迅速尿中アクチノイド分析法の確立及び最適化、②開発した分析法の妥当性検証、③分析法のマニュアル化、等の研究開発に活用する。また、エコプレによる試料の有機物分解は、環境試料中放射性核種分析

にも適用可能な方法であり，これらの分析法の開発にも活用する予定である。

G. 研究発表

なし

H. 知的財産権の出願・登録情報（予定を含む）

なし

労災疾病臨床研究事業費補助金研究 分担研究報告書

皮膚汚染時における線量評価に関する研究

研究分担者 辻村 憲雄（日本原子力研究開発機構）
矢島 千秋（放射線医学総合研究所）
谷 幸太郎（放射線医学総合研究所）
栗原 治（放射線医学総合研究所）
研究協力者 吉田 忠義（日本原子力研究開発機構）
星 勝也（日本原子力研究開発機構）

研究要旨

身体表面の汚染の測定から放射能（表面密度）を算出し、さらにそれを線量率に換算する手順は、単純ではない場合がある。そこで、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている 51 mm 径端窓 GM 計数管式サーベイメータ（アロカ製 TGS-113 型及びその同型シリーズ）の計数率と皮膚線量率を実験及び計算によって評価した。その結果、汚染サイズに対する計数率－線量率換算係数の依存の程度を明らかにするとともに、汚染サイズが不明な場合、 $10 \text{ kcpm} = 1 \text{ mGy/h}$ とすれば保守的な線量評価が可能であることを示した。この換算は、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs だけでなく、原子炉事故時に問題となる ^{132}Te - ^{132}I や ^{131}I にも適用可能である。

A. 研究目的

本研究の目的は、高線量被ばくが想定される様々な放射線被ばく事故に際し、多くの被災者の中から緊急被ばく医療の対象となる者を迅速に選別し、その線量を評価する手法を開発・整備し、その成果を広く展開することである。ここでは、汚染（放出）事故の代表例たる原子力施設での事例に着目し、対象者の選別（トリアージ）及び線量評価について検討し、緊急被ばく医療対応の迅速性と実行性の向上を図る。

背景

放射性物質による皮膚汚染時における線量の評価は、汚染箇所の単位面積当たりの放射能（表面密度）を測定によって評価し、その値に、核種によって定まる換算係数（ mSv/h per Bq/cm^2 ）を乗じて線量率とし、さらに汚染物質の付着時間及び着衣の有無等による遮へいを考慮して行う。このとき使用する換算係数は、もっぱら計算によって評価されており[1-3]、このうち代表的なものは、公益財団法人原子力安全技術センター発行の「被ばく線量の測定・評価マニュアル」[4]に収録され、わが国で広く利用されている。

しかしながら、身体表面の汚染の測定から放射能や表面密度に換算する手順は、必ずしも単純ではない場合がある。例えば、1979年3月に起こった米国スリーマイル島原子力発電所事故において、汚染水（一次冷却水）による作業者の手首の被ばく（皮膚線量で当時の連邦限度 18.75 rem/四半期を超える約 50 rem）[5]が発生した。この事例では、汚染が、通常の表面汚染サーベイメータ（パンケーキ形 GM 計数管式）の計数レンジを超えるレベルであったため、代わりに照射線量率サーベイメータ（側窓 GM 計数管式）が測定に使用され、汚染部位の表面で観測されたその指示値（115 mR/h）は、汚染と同程度の面積（直径 5～10 cm）を有する模擬線源での校正に基づき、55 μ Ci（約 2 MBq）の放射能として評価された。また、汚染はその場で容易に除染できなかったため、除染後も測定を行い、観測されたそのカーブを積分することによって線量評価がなされた。また、同発電所では、同年 8 月にも下肢のスポット汚染があり、皮膚線量は約 50 rem と報告された[6]。具体的な線量評価の方法は示されていないが、上述した手首の汚染と同様に、測定に使用したサーベイメータを再校正するなどの対応をしたと推測される。

これらの事例に類する汚染トラブルは、福島第一原子力発電所の復旧作業現場においても今後生じる可能性があると考えられる。こうした事態に迅速に対応するには、放射能（線量）レベルに応じたサーベイメータの機種選択（表面汚染測定用か線量率測定用か）が必要であり、また、選択したその機種と汚染のサイズの組み合わせ毎に、指示値と放射能の関係をあらかじめ評価し

ておくことが望ましい。

B. 研究方法

サーベイメータの機種毎に、その指示値と汚染サイズの間を調査し、線量（率）への換算手順について検討する。平成 27 年度（3 年計画の 1 年目）は、この第一段階として、汚染検査の目的で、現在国内で最も広く利用されている 51 mm 径端窓 GM 管式表面汚染サーベイメータ（アロカ製 TGS-113）について調べる。

実験は、サーベイメータの計数率（cpm）と表面密度（Bq/cm²）の関係を汚染サイズ別に調べることを基本とする。ここでは、放射能が既知の ⁹⁰Sr-⁹⁰Y 及び ¹³⁷Cs の板状線源（100×150 mm²）を用い、それを直径 10～70 mm の穴を開けたステンレス製アパチャーで覆うことにより直径の異なる汚染を模擬する。ここで、選択した核種は、福島第一原子力発電所事故における主たる β 線放射核種（初期は ¹³²Te-¹³²I, 続いて ¹³¹I）[7]にそれぞれ似たエネルギーを持つ。GM 計数管式サーベイメータの入射窓を、線源の表面から 5 mm の高さに固定し、検出器からのパルス信号を外部に取り出して、スケータで計数する。図 1 に、実験で使用する機材等を示す。

一方、上記実験によって得られる計数率を最終的に線量率に換算するにあたって、表面密度と皮膚線量率（70 μ m 線量当量率）の関係を別途評価する必要がある。そこで本研究では、点積分核法によって任意形状の汚染による皮膚線量を計算するコード VARSKIN 3 [8]を用いて、線源サイズ別にその関係を計算する。計算体系を図 2 に示す。本計算によって得られる線量率と表面

密度の関係を、実験によって得られる計数率と表面密度の関係と比べることによって、最終的に計数率と線量率との関係を得る。

また、計算コード VARSKIN 3 は、皮膚表面ではなく衣服表面で汚染が見つかった場合、その衣服による遮へい効果を含めた線量評価が可能である。これを検証するため、 ^{90}Sr - ^{90}Y と ^{137}Cs の混在汚染を適当な厚さの遮へいで覆った場合の線量率の変化を VARSKIN3 で計算し、日本原子力研究開発機構東海再処理施設の工程内で見つかった汚染物試料(^{90}Sr - ^{90}Y と ^{137}Cs の混合)について実測データ[9]と比較する。

(倫理面への配慮)

本研究は、特定個人を対象とするものではないので人権擁護上の配慮等を特に必要としない。

C. 研究結果

(1) 汚染面積と計数率の関係

図3に、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs について、汚染面積を変えた時の TGS-113 型端窓 GM 計数管式サーベイメータの計数率の変化を示す。ここで表面密度は 1 Bq/cm^2 に固定した。また、図には、広い ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs 線源に対する機器効率(それぞれ 54%, 47%)と、その機器効率が β 線の入射窓への入射位置に依存しないと仮定して入射窓と汚染の面積比だけから算出した計数率も実線で示した。図から、端窓 GM 計数管の計数率は、窓面積(約 20 cm^2)を超える面積の汚染に対してほぼ一定になること、窓面積よりも小さな汚染については面積に比例することが確認された。

(2) 汚染面積と線量率の関係

図4に、VARSKIN 3 で計算した汚染面積と線量率の関係を示す。図3と同様に、ここでは表面密度を 1 Bq/cm^2 に固定した。図から、線量率は、吸収線量を計算するエリア (1 cm^2 , ICRP Publ. 60 [10]の勧告に基づく)よりも大きな汚染でほぼ一定、小さな汚染で面積に比例することが確認された。

(3) 汚染面積と線量率当たりの計数率の関係

図5に、皮膚線量率 1 mGy/h 当たりの端窓 GM 計数管の計数率(図3と図4の縦軸の比に相当する)を汚染面積の関数として表したものを示す。皮膚線量率当たりの計数率は、核種間(^{90}Sr - ^{90}Y と ^{137}Cs)で大きな差は見られない。一方、汚染面積では、 1 cm^2 以下で一定(mGy/h 当たり 10 kcpm)、汚染面積の拡大と共に計数率は増加し、入射窓面積(約 20 cm^2)以上で再び一定(mGy/h 当たり 200 kcpm)となった。

(4) 着衣等による遮へい効果

^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の混合線源について、着衣等による遮へい効果を VARSKIN3 で計算した結果を図6に示す。横軸は、遮へい厚さ (mg/cm^2)、縦軸は、遮へい無し条件に対する線量率の変化である。計算は、汚染試料を用いた実測値をほぼ再現することが確認された。

D. 考察

^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている端窓 GM 計数管式サーベイメータの計数率と皮膚線量率を実験及び計算によって評価し

た。これらの値は汚染のサイズに依存して変化するが、図6を活用することで適切な換算が可能になる。一方、事故現場等において速やかな対応が必要で、かつ、汚染が入射窓面積を超えるほど広いという即時の判断を下すことができない（あるいはそれを判断するための入念な測定ができない）場合には、計数率 10 kcpm = 皮膚線量率 1 mGy/h とすれば、保守的な線量評価が可能である。また、この換算は、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の両方に適用可能であり、このことは、それら核種にエネルギーの近い ^{132}Te - ^{132}I や ^{131}I といった原子炉事故時に問題となる核種にも対しても一律に適用可能であると考えられる。

一方、端窓 GM 計数管式サーベイメータの測定可能レンジは、せいぜい 100 kcpm であるので、上記換算に基づくと線量率 10 mSv/h までの汚染にしか対応しない。そのため、より高線量率の汚染の場合は電離箱式サーベイメータを使用する必要があり、本研究で実施したのと同様に、汚染の面積への依存性、さらには電離箱式サーベイメータには様々な設計のものがあるので、選択する機種毎に今後関連データを整理しておく必要がある。

E. 結論

身体表面の汚染の測定から放射能（表面密度）を算出し、さらにそれを線量率に換算する手順は、単純ではない場合がある。そこで、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs の任意のサイズの汚染について、国内で広く使用されている 51 mm 径端窓 GM 計数管式サーベイメータ（アロカ製 TGS-113 型及びその同型シリーズ）の計数率と皮膚線量率を実験及

び計算によって評価した。その結果、汚染サイズに対する計数率-線量率換算係数の依存の程度を明らかにするとともに、汚染サイズが不明な場合、10 kcpm = 1 mGy/h とすれば保守的な線量評価が可能であることを示した。この換算は、 ^{90}Sr - ^{90}Y 及び ^{137}Cs だけでなく、原子炉事故時に問題となる ^{132}Te - ^{132}I や ^{131}I にも適用可能である。

文献

- [1] 龍福廣，中戸喜寄，備後一義，立田初己，福田整司，南賢太郎，点積分核法による β 線皮膚線量の評価，JAERI-M 7354，日本原子力研究所（1977）。
- [2] D. C. Kocher and K. F. Eckerman, Electron Dose-rate Conversion Factors for External Exposure of the Skin from Uniformly Deposited Activity on the Body Surface, Health Phys. 53(2), 135-141, 1987.
- [3] International Commission on Radiation Units and Measurements, Dosimetry for External Beta Rays, ICRU Report 57, 1997.
- [4] 被ばく線量の測定・評価マニュアル，公益財団法人原子力安全技術センター，2000.
- [5] Nuclear Regulatory Commission, Investigation into the March 28, 1979, Three Mile Island Accident, NUREG-0600, (1979).
- [6] M. Rogovin, Three Mile Island: A report to the commissioners and to the public, Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (USA), 1979.

- [7] N. Tsujimura, T. Yoshida, S. Furuta, Measurements and Calculations of Beta Dose Rates on the Ground at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Proceedings of 13th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA), United Kingdom (2012). Available at <http://www.irpa.net/members/P12.09fp.pdf> なし
- [8] J. S. Durham, "VARSKIN 3: A Computer Code for Assessing Skin Dose from Skin Contamination," NUREG/CR-6918 (2006).
- [9] 塩谷聡, 作山光広, 鹿志村勝也, 川崎位, 遠藤邦明, 大関清, 東海再処理施設における手部被ばく管理, 日本保健物理学会第46回研究発表会 P18 (2013).
- [10] International Commission on Radiological Protection, 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Publication 60, (1991).

G. 研究発表

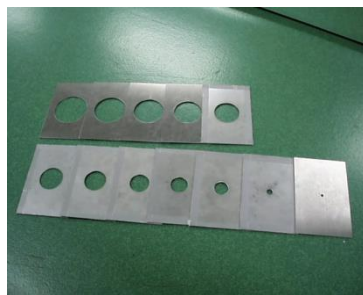
口頭発表：

吉田忠義, 星勝也, 辻村憲雄, 岡田和彦；
皮膚汚染における線量評価法の検討—
様々な汚染サイズに対する端窓 GM 管の
計数率と VARSKIN の活用—, 日本放射
線安全管理学会第 15 回学術大会, P29,
(2015).

H. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)



TGS-113 型端窓 GM 計数管式サーベイメータ
 ^{36}Cl に対する機器効率：49%



ステンレス製アパチャー
 (穴径：10～70 mm)



測定の様子 (バックグラウンド計数率を下げるため計数管周囲に鉛ブロックを設置)

図 1 実験機材

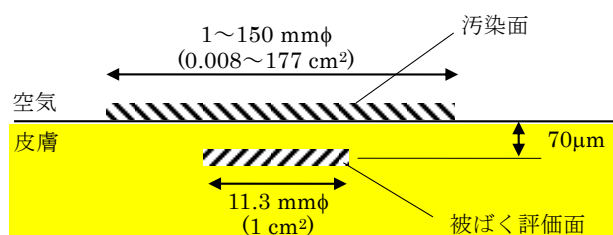


図 2 VARSKIN3 による計算の体系
 (線量評価面積 1 cm^2 は ICRP Publ. 60 の勧告に基づく)

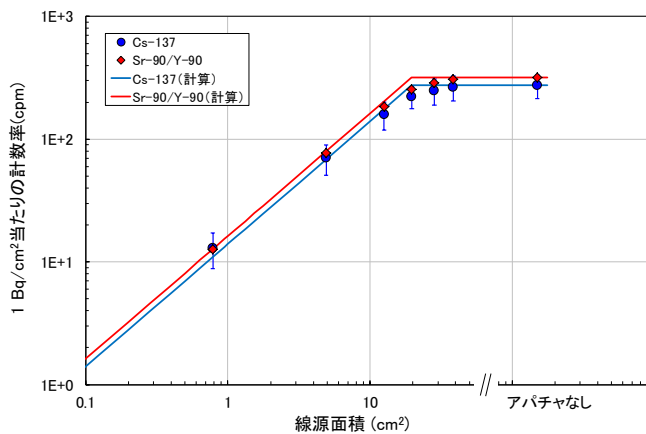


図 3 汚染面積と TGS-113 型端窓 GM 計数管式サーベイメータの計数率の関係
 (^{90}Sr - ^{90}Y : 合計 1 Bq/cm^2 , ^{137}Cs : 1 Bq/cm^2)

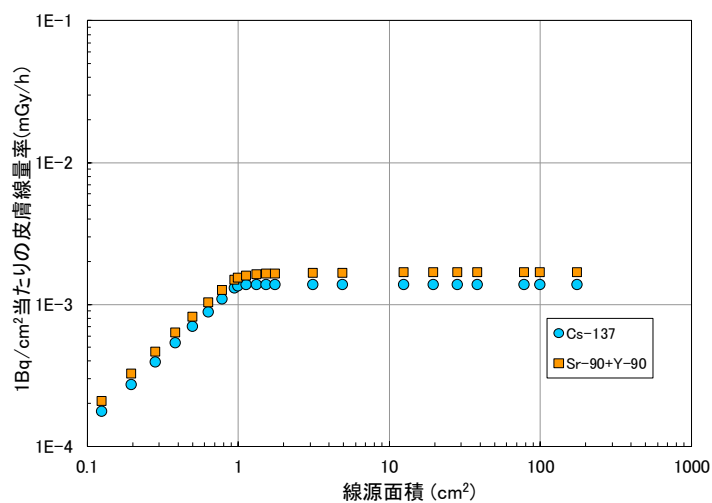


図4 汚染面積と線量率の関係 (^{90}Sr - ^{90}Y : 合計 1 Bq/cm^2 , ^{137}Cs : 1 Bq/cm^2)

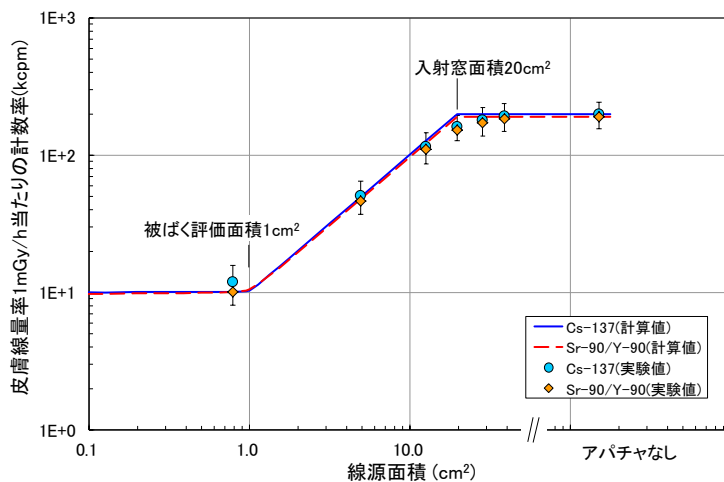


図5 汚染面積と線量率当たりの TGS-113 型端窓 GM 計数管式サーベイメータ計数率の関係

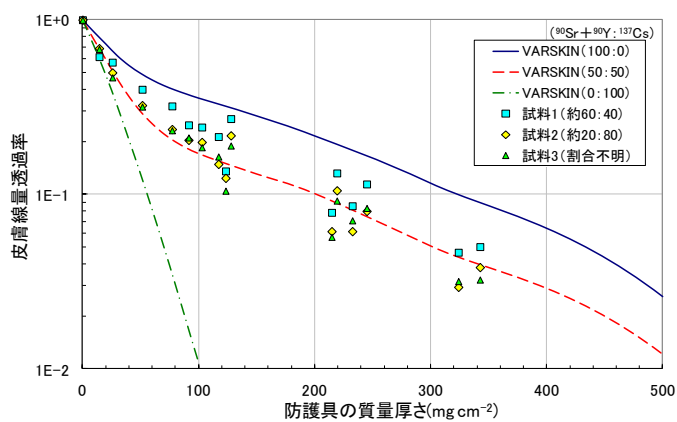


図6 着衣等による遮へい効果 (VARSKIN3 による計算と実測の比較)

研究成果の刊行に関する一覧表

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
C. Li, A. Ansari, C. Bartizel, P. Battisti, D. Frank, U. Gerstmann, I. Giardina, C. Guichet, D. Hammond, M. Hartmann, R. L. Jones, E. Kim, E. Ko, R. Morhard, D. Quayle and B. Sadi	GHSI emergency radionuclides bioassay laboratory network: summary of a recent exercise	Radiat. Prot. Dosim	doi: 10.1093/rpd/ncv386 (in press)		2015
H. Itadzu, O. Kurihara and T. Iguchi.	Practical self-absorption correction method for various environmental samples in a 1000 cm ³ Marinelli container to perform accurate radioactivity determination with HPGe detector.	RADIOISOTOPES	64	661-671	2015