

労災疾病臨床研究事業費補助金

創傷部アクチニド汚染の迅速定量分析法に関する研究

平成27年度 総括研究報告書

研究代表者 吉井裕

平成28（2016）年5月

目次

I. 総括研究報告		
創傷部アクチニド汚染の迅速定量分析法に関する研究	-----	3
研究代表者氏名 吉井裕		
II. 研究成果の刊行に関する一覧表	-----	21
III. 研究成果の刊行物・別刷	-----	22

創傷部アクチニド汚染の迅速定量分析法に関する研究

研究代表者 吉井裕（国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構）

研究要旨

事故により創傷部が放射性物質で汚染された時、汚染の検出と定量は治療計画策定の上で欠くことができない。一般に、 γ 線の放出割合が低い α 核種は α 線計測により検出されるが、創傷部では α 線が血液によって遮蔽されるため、 α 線計測による定量は困難である。本研究では、蛍光X線（XRF）分析法によるピンポイントでの汚染の定量とカドミウムテルル（CdTe）検出器による汚染イメージングを組み合わせた、創傷部アクチニド汚染の迅速な検出・定量法を提案する。このような手法は我々が初めて提案している独創的な手法である。本法により、創傷部アクチニド汚染の迅速な検出と定量が可能となり、緊急被ばく医療における治療計画策定に資することとなるので、本法は標準的な創傷部汚染の検出・定量法として、労災補償行政の施策等への活用が期待される。この方法により得られた被ばく線量の知見は、汚染作業従事者の労災認定の参考資料となりうるとともに、今後増加する廃炉作業などで起こりうる創傷部汚染による内部被ばくへの労災補償行政の施策等への活用が期待される。

本研究で提案している創傷部アクチニド汚染の定量分析法を次に示す。創傷部プルトニウム汚染が疑われる創傷事故において、まず、創傷部から微量の血液を採取してXRF分析を行い（捕集法）、アクチニドが検出されたら創傷部の一点を直接XRF分析する（直接法）。さらに、CdTe検出器による創傷部全体のアメリカシウムのイメージング結果をもとに創傷部におけるプルトニウムの分布を推定する（Amイメージング）。これらを組み合わせて、創傷部に付着しているプルトニウムの全量を把握する。

本研究の成果を以下に示す。捕集法について、まず、創傷部の血液を捕集する手法の開発を行った。濾紙小片で汚染血液を吸い取りマイラと粘着フィルムで挟むことで、汚染を拡大せずに分析できる手法を確立し、これを劣化ウランに適用した。劣化ウラン溶液を混合させたラット血液を滴下した濾紙小片をマイラと粘着フィルムで挟み卓上型XRF装置で分析したところ、U L α 線の信号強度はウラン濃度に比例し、検出下限値として 1.9 ± 0.5 ppmを得た。これを放射能に換算すると、 160 ± 40 μ Bqとなり、極めて高感度で血液中のウランを検出できることが明らかになった。次に、直接法の実験系について検討した。ヒト皮膚に近い表面構造を持つユカタンピッグ皮膚を用いて、非放射性鉛を用いて針刺し事故を想定した豚皮モデル試料を作成し卓上型XRF装置で分析した。これにより、豚皮モデル試料作成のための技術を確立した。また、ユカタンピッグ皮膚の表面にPu硝酸溶液またはAm硝酸溶液10 μ Lを滴下した。この試料に対し、XRF分析及び従来法である α 線計測を適用したところ、XRFにおいてPu L α 線の信号を確認するとともに、 α 線

計測における汚染検出率が酸性度や核種、滴下からの経過時間に依存することを明らかにした。ラット傷汚染モデルとして、硝酸 Pu、硝酸 U ならびに硝酸 Pu・硝酸 U 混合液いずれも 20 μ L を筋肉内投与する系を確立した。捕集法と直接法に用いるハンドヘルド XRF 装置について様々な装置を比較検討し、一次フィルターを自由に変更できるハンドヘルド型装置が市販されていることが明らかとなった。そこで、一次フィルターの構成が可変であることを条件として入札を行い、BRUKER 社の Tracer-III-SD を購入した。広照射野 XRF 装置の開発では、ウラン検出に最適なフィルター構成の探索を行い、ポリキャピラリーで入射 X 線を平行化する機構を持つ XRF 装置においては 60 μ m 厚の Ni 箔と 20 μ m 厚の Pt 箔を重ねたフィルターが最適であることを示した。CdTe イメージング装置の開発では、既存の装置を使用して Am の検出試験を実施し、CdTe イメージング装置開発に予想される問題点の洗い出し、改良への検討を進めた。

研究分担者

伊豆本幸恵 放射線医学総合研究所
福津久美子 放射線医学総合研究所
大町康 放射線医学総合研究所
小林進悟 放射線医学総合研究所

A. 研究目的

核燃料取扱施設における α 核種による創傷部汚染事故は我が国を含め世界各国で複数報告されており、今後もこのような事故は起こりうる。特にプルトニウムの取り込みは重篤な内部被ばくの原因となるため、その検出と定量は治療計画を策定する上で欠かせない。一般に、 γ 線の放出割合が低い α 核種は α 線計測により検出されるが、創傷部では α 線が血液によって遮蔽されるため、 α 線計測による定量は困難である。

そこで、我々は蛍光 X 線分析 (XRF) によって創傷部アクチニド汚染を定量評価する方法を提案している。XRF とは、試料に X 線を入射して内殻電子を放出させ、その内殻空孔に外殻電子が遷移する際に放出される特性 X 線 (これを蛍光 X 線と呼ぶ) を検出する分析法であり、創傷部汚染の分析に XRF を用いる手法は我々が新規に提案してい

る [Yoshiiet al., (2014), PLOS ONE 9, e101966:1-7]。XRF は多元素同時分析が可能な分析方法で、一般的な XRF 装置ではウランやプルトニウムのように 5 keV から 15 keV 程度のエネルギー領域に K-X 線や L-X 線が観測できる元素に関しては 10 ppm (= μ g/g) 程度の検出下限値 (minimum detection limit: MDL) を得ることができる。いま、半減期が $T_{1/2}$ [sec] である核種が質量 M [g] 存在するとき、その放射能 A [Bq] は次の式で表される。

$$A = \frac{\ln 2 \cdot M}{T_{1/2} \cdot M_w} N_A \quad (1)$$

ここで、 M_w [g/mol] は原子量、 $N_A = 6.02 \times 10^{23}$ はアボガドロ数である。式 (1) において、検出下限値 MDL に試料全体の質量を乗じて算出した目的核種の質量を質量 M として代入すると、算出される放射能 A は検出下限放射能 (minimum detectable activity: MDA) を表す。式 (1) から明らかなように、複数の核種が同程度の MDL を持つとき、比放射能の小さい長半減期核種では、MDL から換算した MDA が極めて小さくなる。(表 1)。XRF 分析を人体に直接適用する検査は患部の被ばくを伴うが、人体に対して XRF 分析を適用した例もあり [Nie et al., (2011), Phys. Med. Boil. 56, N39-51] 実現は可能である。ただし、無用な被ばくを避けるため、前

もって創傷部の血液をふき取って XRF 分析することで汚染の有無を確認することも必要となる。なお、X 線は数 mm の血液を透過するので、捕集した血液中の元素分析はもちろん、患部の直接測定においても血液越しの測定が可能である。ただし、一般に XRF 分析における測定面積は狭く、多くの場合で創傷部の全体を測定するのは困難である。また、実際の創傷部は大きさも形も様々であり、汚染の全量を把握するには汚染分布の決定が必要である。我々は独自の放射性セシウム分布イメージングカメラを開発した実績 [Kobayashiet al.,(2014), KEK Proceedings 2014, 62-69] に基づき、大面積 2 次元 CdTe センサの開発を進めている。この装置によりプルトニウムと共存するアメリカシウムが放出する低エネルギー γ 線を検出して汚染分布を求め、XRF 分析によるピンポイントのプルトニウム定量結果と組み合わせて汚染の全量を算出するという新しい手法を構築する。このように、我々が提案する手法は「創傷部プルトニウム汚染が疑われる創傷事故において、まず、創傷部から微量の血液を採取して XRF 分析を行い（捕集法）、プルトニウムが検出されたら創傷部の一点を直接 XRF 分析する（直接法）。さらに、アメリカシウムのイメージングからプルトニウムの分布を推定し（Am イメージング）、創傷部に付着しているプルトニウムの全量を把握する。」というものになる。

一般に、XRF 装置は、試料に X 線を照射するための X 線管、入射 X 線のエネルギースペクトルを調整するための一次フィルター、試料台、試料から発せられる蛍光 X 線を測定しエネルギー分析するための検出器からなる。X 線管から放出される X 線のエネルギースペクトルは X 線管の管電圧と管電流に依存し、試料に照射される X 線のエネルギースペクトルは一次フィルターによって調整される。これら、X 線管の管電圧、管電流、一次フィ

ルター構成は、測定される蛍光 X 線のエネルギースペクトルの形状に大きく寄与する。また、検出器としては、一般に半導体検出器が用いられる。これまで多く用いられてきた Si PIN 半導体検出器に代わって、最近ではシリコンドリフト検出器 (SDD) を用いたものも増えてきている。SDD は Si PIN 半導体に比べてエネルギー分解能に優れ、隣接したピークの分離が容易になるという利点がある。本研究では、捕集法と直接法に用いるための新しいハンドヘルド型 XRF 装置を導入するが、その際に X 線管、一次フィルター、検出器の性能を精査する必要がある。

本研究の目的は、このような創傷部アクチノイド汚染の迅速な定量分析法を開発することにある。その上で、平成 27 年度には、(1) 捕集法における手法の検討と劣化ウランに汚染されたラット血液を用いてその検出下限を明らかにすること、(2) 豚皮を用いた傷モデルの制作方法と、従来法としての α 線計測との比較を行うための系を確立すること、(3) ラット傷モデルとして Pu 硝酸溶液を筋肉内投与する系を確立すること、(4) 捕集法と直接法に用いるハンドヘルド型 XRF 装置に求められる性能を決定し、装置を購入すること、(5) 傷口を広く測定するための広照射野 XRF 装置の開発に着手し、ウラン測定に最適なフィルター構成を探索すること、(6) 既存の X 線カメラを使用して Am の検出試験を実施し、CdTe イメージング装置に予想される問題点の洗い出しを行うこと、を目的として研究を行った。

B. 研究方法

(1) 捕集法の検討

捕集法では、創傷部の汚染した可能性のある血液から一定量を素早く捕集し、汚染の拡大を防いだうで XRF 測定を行う必要がある。そこで、ま

ず、捕集用素材について検討した。

次に、ウラン試料作成用フードの中で 0, 6.25, 12.5, 25, 50, 100 ppm (=μg/g) の劣化ウランを含む模擬汚染ラット血液を作成し、これを濾紙小片に 7 μL ずつ滴下してからマイラ膜と粘着フィルムで挟んで密封試料を作成した。試料作成は、フードにおいて、反面マスクを着用して行った。作成した試料は、同一放射線管理区域内の別室に設置されている卓上型 XRF 分析装置 SEA1100 (日立ハイテクノロジーズ) で分析した。

(2) 豚皮を用いた実験の基礎検討

豚皮は皮膚構造がヒト皮膚に近く、皮膚吸収もヒト皮膚によく似ているとして模擬実験で多く用いられる。とくに、ユカタンピッグ皮膚は、皮膚表面の形状もヒト皮膚に近く、体毛の太さ、密度とも人と同程度である。

本研究においても、ユカタンピッグを用いた基礎検討を行った。まず、ユカタンピッグ皮にツベルクリン注射用注射針を 2 mm 程度の深さまで斜めに刺して針刺し傷を作り、そこに 1000 ppm 鉛標準液 1 μL をピペットマンで滴下した。針刺し傷周辺での鉛の分布を調査するために、これを液体窒素で凍結してから薄切切片を作成し、卓上型 XRF 装置 SEA1100 (日立ハイテクノロジーズ) で分析した。また、XRF と α 線計測の比較を行うための予備調査として、健全なユカタンピッグ皮に、それぞれ約 50 Bq の ²⁴¹Am 硝酸溶液 (8M, 0.5M)、²⁴¹Am 中性溶液、²³⁹Pu 硝酸溶液 (8M, 0.5M) を滴下、乾燥させて経時的に α スペクトロサーベイメータ PASS 100DD (株式会社プロテック) で α 線計測を行った。また、卓上型 XRF 装置 SEA1100 (日立ハイテクノロジーズ) で、その試料の XRF 分析を行った。

(3) ラット傷モデル作成法の検討

Pu 創傷汚染を評価できるラットモデルの作製を

検討した。8 週齢のラットの大腿筋に硝酸プルトニウム溶液を投与する系において、Pu 投与量並びに投与容量 Pu 投与から解剖までの期間等を検討した。

(4) ハンドヘルド型 XRF 装置の購入

本法では、最終的には捕集法、直接法ともにハンドヘルド型 XRF 装置の使用を想定している。しかし、XRF 装置は各社それぞれの特徴があり、装置によりエネルギー分解能や各元素に対する検出感度、フィルター構成などが大きく異なる。そのため、我々の使用目的に合致した XRF 装置を見出す必要がある。特に、我々はウランやプルトニウムといったアクチニドを対象としているが、各社のハンドヘルド型 XRF 装置のパフレットにはこれらの元素に対する検出下限や隣接する他の元素の信号との分離能力などについて詳細な記載はない。例えば、U Lα 線の測定においては、その信号強度、そのエネルギー領域におけるバックグラウンド信号の形状と強度、および U Lα 線とこれに隣接する Br Kβ 線、Rb Kα 線との分離度といった情報は、実際に測定してみなければ得られるものではない。そこで、10 ppm の U や Rb を含む多元素標準液 (TSTC-13, SPEX) と 4000 ppm の Br 標準液 (和光純薬) の希釈系列を混合して、Br 濃度がそれぞれ 0, 2.5, 5, 10, 20 ppm かつ U および Rb 等の濃度がそれぞれ 9 ppm である混合溶液を作成し、これを直径 5.5 mm に切り出した濾紙小片に滴下し、マイラとポリエステルフィルムで密封した試料を作成した。そして、これを各社のハンドヘルド型 XRF 装置で測定した。測定に協力していただいたのは、株式会社リガク、オリンパス株式会社、株式会社堀場製作所、ブルカーエイエックスエス株式会社である。

(5) ウランの XRF 測定に向けたフィルター構成の検討

一般的な XRF 装置の照射野は直径 3-5 mm 程度

であり、針刺し傷のような小さな傷であれば対応できるが、より広い傷に適用するのは難しい。そこで、CdTe 検出器による Am イメージングとの組み合わせを考えているが、Am の比率が極めて低い場合にも対応するため、広照射野蛍光 X 線分析装置の開発を行う。まず、分光結晶によって入射光を単色化しつつ入射 X 線を平行化して広く試料に照射する方法について検討した。続いて、X 線管から放出される X 線の広がりによって広い照射野を得ながら、一次フィルターによって目的元素（ウランやプルトニウム）の励起に寄与しないエネルギー領域の X 線を削減する方法について検討した。ここで、一次フィルターとは、X 線管と試料の間に挟む金属薄膜からなるフィルターで、その金属の X 線吸収特性により、入射 X 線から特定のエネルギーの X 線を削減させることで、バックグラウンドを低減させ、目的元素の XRF 信号の分析を容易にするための機構である。一次フィルターは対象とする元素ごとに最適化されるべきであるが、一般には軽元素用、重元素用などエネルギー領域ごとに設定されることが多い。本研究では、装置を 100FA-T (Ourstex) とした。100FA-T では、ポリキャピラリーによって直径約 10 mm の照射野が得られる。試料は 100 ppm の劣化ウランを含むレジンファントムとした。レジンファントムは酢酸ウランを純水で溶解してエポキシレジンに混合して固化させることで作成し、その作業はフード内で、反面マスクを着用して行った。一次フィルターのベース素材は Ni とし、厚さ 10, 30, 40, 50, 60, 80, 100, 150 μm で測定を行い、バックグラウンド (BG) の低減と U の励起光の減衰の兼ね合いを比較した。一方、Pt は U $L\alpha$ 線付近に L 吸収端を持ち、これをフィルターの追加素材として用いることでバックグラウンド信号を平坦化できると思われる。そこで、この実験で得られた結果をもとに選択した

数種類の厚さの Ni と Pt (5, 10, 15, 20 μm) を組み合わせ、フィルターを最適化した。

(6) 既存の X 線センサの評価

小型ガンマカメラ (アクロラド社、MGC1500、図 1) の ^{241}Am の検出に対する評価を行なった。MGC1500 は有効視野 44.6mm \times 44.6mm で、1024 画素 (32 \times 32) をもち、1.4mm \times 1.4mm の CdTe イメージングセンサが内蔵されている。イメージングセンサヘッドの前面にはタングステンのコリメータがあるが、本実験では感度向上のため取り外して使用した。MGC1500 は個々の画素からの信号はマルチチャンネルアナライザー (4096ch) にかけて、エネルギースペクトルを取得することが可能である。

MGC1500 の前面約 90 mm に ^{241}Am を設置し、事前にゲイン補正やエネルギー校正等、十分に調整した。実験室内でバックグラウンド計測を実施した後、コリメータに ^{241}Am を接触させ、 ^{241}Am からのガンマ線 (60keV) を検出し、そのイメージング画像を取得した。検出感度およびイメージング画像の評価を行なった。

C. 研究結果

(1) 捕集法の検討

捕集法に用いる素材として、直径 5.5 mm に切り出した濾紙 (No.5A, Advantec) を採用した。この濾紙小片で創傷部の血液を吸い取り、粘着フィルムの上に置いてマイラで密封する系を確立した (図 2)。

測定の結果、ウラン非含有血液の蛍光 X 線スペクトルの 13.4 keV 付近に Br $K\beta$ 線と Rb $K\alpha$ 線の重なったピークが観測された。血液中に含まれているウランは 0.5 ppb と極めて少量であるので、ウラン非含有血液の蛍光 X 線スペクトルでは U $L\alpha$ 線は観測されなかった。ウラン濃度が上昇するにつれ、

13.6 keV に観測される U La 線のピーク強度が増大したが、このピークと Br Kβ 線及び Rb Kα 線のピークを完全に分離できず、これらは U La 線のピークと重なって観測された。血液中の Br 及び Rb 濃度はそれぞれ 5 ppm、2.5 ppm と微量であることから、本研究では Br Kβ 線、Rb Kα 線も含めて U La 線の信号強度を評価した。U La 線 (Br Kβ 線、Rb Kα 線含む) 周辺に関心領域 (ROI) を設定し、バックグラウンドを差し引いたうえで、ROI 内の正味の信号強度の積算値を算出し、この値を U La 線のネット信号強度とした。その結果、ウラン濃度が 0 ~100 ppm の範囲において、ウラン濃度の増大に伴い、U La 線 (Br Kβ 線、Rb Kα 線含む) のネット信号強度も比例して増大した。この関係をもとに検量線を作成した ($R^2 = 0.990$ 、傾き $s = 21.9$: 図 3)。検量線の切片 (127 cpm) は Br Kβ 線と Rb Kα 線の信号強度の積算値である。

(2) 豚皮を用いた実験の基礎検討

ユカタンピッグ皮に針を刺して鉛標準液を滴下し凍結薄切切片とした試料について XRF 測定した結果、Pb La 線が観測され、およそ、針を刺した近傍で信号強度の増大が見られた。しかし、針を刺した位置の特定が難しく、針を刺した位置からの距離と信号強度の関係を求めるには至らなかった。

健常なユカタンピッグ皮に ^{241}Am 硝酸溶液や ^{239}Pu 硝酸溶液を滴下した実験から、酸性度や核種、経過時間による汚染検出率や核種分布の相違について検討した。汚染検出率では、 ^{241}Am 溶液、 ^{239}Pu 溶液ともに酸性度の上昇に伴い検出率が低下し、核種を比較すると酸性度によらず ^{239}Pu 溶液の方が ^{241}Am 溶液よりも検出率が高かった。また、経過時間に対しては、滴下後 20 分以内に皮膚浸透が進行し、3 時間を経過した後は 24 時間までほぼ一定状態を保っていた (図 4)。皮膚浸透の深さを推定するため、試料から放出される α 線のエネルギー

ペクトルをシミュレーション解析した結果 (図 5)、 ^{241}Am 溶液、 ^{239}Pu 溶液ともに、酸性度が高いほど皮膚表面 (角質) にとどまる割合が減少し、表皮まで浸透していることが明らかとなった。核種比較では、中性領域や 0.5M 硝酸において、 ^{239}Pu 溶液の方が ^{241}Am 溶液よりも角質に留まっていることが示された (図 6)。

(3) ラット傷モデル作成法の検討

Pu 創傷汚染を評価できるラットモデルとして以下のような系を確立した。6 週齢雄性 CD (SD) ラットを購入し、2 週間の馴化飼育の後に、セボフルラン麻酔下で硝酸プルトニウム溶液 20 μL (18.5 kBq/20 μL) を、インシュリン注射用微量注射筒 (マイジェクター) を用いて右腓腹筋に筋肉内投与する。Pu 投与後動物はグローブボックス型飼育フード内で個別飼育する。なお、糞尿回収のためケージ内にはプラスチック製インナーを装着する。Pu バイオアッセイ用に、Pu 投与 1、2、3 日後の糞・尿を回収するとともに、Pu 投与 3 日後にキシラジンケタミン深麻酔下で開腹し、後大静脈より血液検査用に 200 μL の血液をヘパリン注射筒で、また腹部大動脈より全採血し、得られた血液より血清を分離し血液生化学的検査用に保存する。肝臓、左大腿骨 (Pu の主な標的臓器・組織)、投与部筋肉を採取し、Pu-239 投与液に共存する Am-241 の Ge 半導体計測による迅速評価を、灰化試料をもちいた Pu のバイオアッセイに供する。なお、今回確立した系では Pu 投与 3 日後の血中 Pu 濃度は約 2 Bq/mL と評価された。

(4) ハンドヘルド型 XRF 装置の購入

作成した試料 (U, Br, Rb を含む溶液を濾紙小片に滴下して密封したもの) を各社のハンドヘルド型 XRF 装置で分析した結果、現在市販されている装置のほとんどで XRF エネルギーが極めて近接している U La 線と Rb Kα 線、Br Kβ 線を分離して観

測できることが明らかとなった。これは、我々が現在所有している SEA1100（日立ハイテクノロジー）において採用されている Si PIN 検出器よりも、最近のハンドヘルド型 XRF 装置で採用されている SDD 検出器の方がエネルギー分解能に優れているためと考えられる。しかし、U L α 線が観測されたエネルギー領域のバックグラウンド信号強度は装置ごとに大きく異なっていた。この原因として、装置ごとに一次フィルターの構成が異なることが挙げられる。一般に、ハンドヘルド型 XRF 装置はユーザーが自由にカスタマイズできる部分が少なく、一次フィルターにおいても、購入時に導入されている複数のフィルターから試料ごとに比較的適したフィルターを選択することのみが可能であることが多い。しかし、装置によっては一次フィルターをユーザーが自由に交換できる、一次フィルター可変型装置も存在することが明らかとなった。これまで、U や Pu を XRF 分析した例は少なく、これらの元素の測定に最適な一次フィルター構成は明らかになっていない。U や Pu の XRF 分析に特化した一次フィルター構成を探索・適用することで、市販されている装置に付属している一次フィルターを用いる場合よりも高感度な測定が可能になると期待される。そこで、一次フィルターをユーザーが自由に変更できることを条件として入札を行い、BRUKER 社の tracer-III-SD を購入した。この装置には付属品として標準的な 3 種類のフィルターが提供されている。このうち、重元素測定用フィルター (152.4 μm Cu + 25.4 μm Ti + 304.8 μm Al) を用いて 100 ppm 劣化ウラン含有レジンの試験測定を行ったところ、測定されたスペクトルには明瞭な U L α 線の信号が観測された。

(5) ウランの XRF 測定に向けたフィルター構成の検討

100 ppm の劣化ウランを含有するレジンファン

トムを用い、一次フィルターとして用いる Ni と Pt の厚さを変えながら 100FA-T で XRF スペクトルを測定したところ、すべてのフィルター構成において、XRF スペクトル中に U L α 線が観測された。Ni のみをフィルターとして用いた場合の検出下限値 (MDL) は Ni フィルター厚さが 10-40 μm ではほとんど変化しなかったが、50 μm 以上の厚さではフィルター厚さの増加に伴い減少し、測定感度が上昇した。一方で、フィルター厚さの増加に伴い、信号強度が急速に減少した (図 7)。

Pt は U L α 線のエネルギー付近に L 吸収端を持つ。そのため、Pt をフィルターに加えることでバックグラウンド信号を平坦化し、解析を容易にできると考えられた。そこで、40, 50, 60 μm の Ni フィルターに 5, 10, 15, 20 μm の Pt フィルターを追加した一次フィルターを作成し、Pt フィルターの厚さとバックグラウンド信号の傾きの関係を調査した (図 8)。測定の結果、Pt が 15 μm 程度で傾きが小さくなり、バックグラウンドの差引が容易になった。

(6) 既存の X 線センサの評価

MGC1500 のセンサヘッドの前面 90 mm の位置に ^{241}Am を設置し、取得したエネルギースペクトルを図 9 に示す。最も鋭いピークが ^{241}Am の 60keV のガンマ線であり、位置は 595 ch となるようにゲインを調整した。エネルギー分解能は約 9 keV であった。次にピーク位置を含む 476-714 ch の領域 (ROI) の積分カウントを用いて 2 次元の画像化したものを図 10 に示す。図は XY 平面で 32 x 32 に分割されており、各画素の積分カウントの大きさを Z 軸としている。また、図の上部には 2 次元のカラーマップが示されている。ピークの半値幅は約 5 画素であり、すなわち空間分解能は約 7 mm であった。実験室内 (0.042 $\mu\text{Sv/h}$) でのバックグラウンド計数率は上記 ROI にて 1 画素あたり 1.84×10^{-3} cps であっ

た。これはセンサ全体の総数としては 1.88 cps に相当する。

D. 考察

(1) 捕集法の検討

捕集法における捕集素材は吸水性が高く、また、定量的に血液を捕集できる素材である必要がある。そこで、吸水性の高い Advantec の 5A 濾紙を採用した。濾紙を患部に当てた時に吸収される血液は創傷部の形状や大きさによって大きく異なる。そのため、創傷部の形状にかかわらず一定量の血液を捕集できるように、濾紙を直径 5.5 mm に切り出して捕集素材として用いることとした。この場合、吸収できる血液量は 7 μ L ほどである。また、現場で適用するためには血液を捕集した濾紙を簡便に密封し、汚染拡大防止を図る必要がある。 α 線計測では α 線が透過できるように極めて薄いマイラで汚染拡大を防止することが多いが、XRF では、比重が 1 程度の素材であれば数百 μ m 程度の厚さの物質を挟んでも信号強度にほとんど変化は見られない。そこで、血液を捕集した濾紙小片を 70 μ m 厚の粘着ポリエステルフィルムの上に置き、マイラで挟んで密封する手法を構築した。この方法であれば、簡便に試料を密封することができる。

測定したスペクトル中に観測された U La 線の信号強度からウランの検出下限値を算出したところ 1.9 ± 0.5 ppm であった。これは、滴下した血液量が 7 μ L であることを考慮して放射能に換算すると 0.17 ± 0.4 mBq に相当する。健常皮膚がウランに汚染されている可能性がある場合、ZnS シンチレーション式 α サーベイメータを用いて表面汚染検査を行う。この際の検出下限放射能は 0.4 Bq ほどである。一方、創傷部から捕集した血液の場合、 α 粒子が血液によって遮蔽されるため、検出は極めて困難である。本測定系での検出下限値は健常皮膚に対する α サーベイメータの検出下限値でさえ

もはるかに下回っており、本測定系は創傷部の劣化ウラン汚染の有無の検出に有効であるといえる。

今後は、新たに導入したハンドヘルド型 XRF 装置である tracer-III-SD で同様の測定を行い、検量線の作成と検出下限の検討を行う。また、Pu を含有する血液、U と Pu を同時に含有する血液についても試料作成と測定を進める必要がある。

(2) 豚皮を用いた実験の基礎検討

針刺しモデル作成法の検討結果より、針を刺した部分が肉眼では見えなくなるという問題が明らかとなった。豚皮は弾力性があり、針刺し位置に目印を付けるのは非常に難しい。しかし、針を刺したうえで、その位置を通る直行する直線状の 2 点（合計 4 点）に何らかのマークを付けて、針刺し位置を特定できるようにすることは可能であると思われる。ただし、XRF 分析の際、マークした物質に含まれる元素による信号が目的の信号を妨害しないよう、今後、マークするための素材（インク等）の検討を行う必要がある。また、針刺し傷以外の形態の傷モデルの作成についても検討が必要である。

(3) ラット傷モデル作成法の検討

Pu 創傷汚染を評価できるラットモデルの作製を検討した結果、短期的に効率よく Pu 汚染を評価できる系を確立した。今回確立した系において、投与部位の深度を変えることで深い傷、浅い傷における Pu の蛍光 X 線検出の検討が可能となる。また、創傷部の検出量と内部被ばくとの関係も評価可能となる。

(4) ハンドヘルド型 XRF 装置の購入

試験測定の結果から、BRUKER 社が提供している重元素測定フィルターは U La 線の検出に有用であることが明らかとなった。しかし、散乱線の信号強度分布から、このフィルターがウランの励起光も削減していることが予想される。このため、

このフィルターを参考にしながら、ウランの励起光強度をできるだけ維持しつつバックグラウンド信号を削減するようにフィルター構成を最適化することで、さらに高感度な分析が可能であると期待される。

今後は、tracer-III-SD においてフィルター構成を最適化するとともに、捕集法、直接法への検討を試みる必要がある。

(5) ウランの XRF 測定に向けたフィルター構成の検討

新たに購入した tracer-III-SD の照射野は直径 4 mm である。これに対して 100FA-T の照射野は直径 10 mm であり、より広い創傷部にも適用できると期待される。本研究によって 100FA-T におけるウラン測定について最適化されたフィルター構成を決定することができた。しかし、スペクトルにおける散乱線の信号強度分布から、入射 X 線の平行化のために導入したポリキャピラリーによってウランの励起光がかなり減少していることが予想された。そこで、100FA-T からポリキャピラリーを取り外し、コリメータによって照射野の大きさを調整する構成に変更し、その状態でフィルター構成の最適化を行う必要がある。この改造によって、さらなる照射野の拡大が期待できる。

(6) 既存の X 線センサの評価

^{57}Co 線源および ^{241}Am 線源を用いてエネルギー校正を行なうと、 ^{241}Am の 60 keV のピークの半値幅は約 9 keV である。現在、別途開発中の大面積 CdTe イメージング装置は、有効視野 120mm × 120mm で、1024 画素 (12 x 12) をもち、解像度は 10mm × 10mm である。この装置の 1 つの画素を常温・単体で試験すると、エネルギー分解能は 60 keV に対して 3.8 keV であり、MGC1500 のエネルギー分解能は各画素の性能のばらつきによって劣化している。このため各画素の CdTe 素子の選別、

および信号処理回路の均一性が性能向上にとって特に重要である。

MGC1500 のバックグラウンド測定から空間分解能を考慮しつつ検出下限値 (3σ , 1 分間測定) を見積もったところ ^{241}Am に対する検出限界は 2.6 Bq であり、検出目標である 20 Bq を下回る結果が得られた。検出器の遮蔽の最適化や上記のエネルギー分解能を向上させることができればさらに感度が上がることが期待できる。

E. 結論

各方面において着実に成果が上がりつつある。捕集法については、測定手法、測定結果の評価法ともほぼ完成したと考えてよい。今後は他の装置、他の核種に適用範囲を拡大し、あらゆる条件下において創傷部のアクチニド汚染を迅速に検出する手法を完成させる必要がある。直接法においては、我々の目的に合致するハンドヘルド型 XRF 装置を購入した。今後は、フィルター構成の最適化の後、豚皮傷モデル、ラット傷モデルの測定を進めていく必要がある。そのためのモデル作成においても一定の方向性を示すことができた。今後さらにこれらを発展させ、安定なモデルの作成を目指す。広照射野 XRF 装置の開発ではフィルター構成の最適化方法を確立した。装置の構成を変更するため、その構成で再度最適化を行う必要があるが、手法が確立したため今後は容易に最適化できると考えられる。Am イメージングでは MGC1500 により ^{241}Am からの 60 keV のガンマ線を検出して可視化ができた。MGC1500 を創傷部のアクチニド核種の検出に使用する場合には、感度を改良する必要がある、センサの精密な調整およびコリメータ部分の改良をする必要がある。

F. 健康危険情報

とくになし

G. 研究発表

1. 論文発表

(1) “Sodium bicarbonate protects uranium-induced acute nephrotoxicity through uranium-decorporation by urinary alkalinization in rats.” Ohmachi Y, Imamura T, Ikeda M, Shishikura E, Kim E, Kurihara, Sakai K, J Toxicol Pathol. 2015;28(2):65-71.

(2) “Decorporation agents for internal radioactive contamination.” Ohmachi Y, Yakugaku Zasshi(Japanese). 2015;135(4):557-63.

2. 学会発表

(1) ブタ皮膚における α 核種汚染の計測, 福津久美子、金ウンジュ、栗原治、日本保健物理学会第 48 回年会, 2015 年 7 月, 東京

(2) 蛍光 X 線分析による創傷部ウラン汚染の迅速な検出法, 伊豆本幸恵、吉井裕、松山嗣史、濱野毅、酒井康弘、沼子千弥、栗原治、藤林康久, 日本分析化学会第 64 回年会, 2015 年 9 月, 福岡

表1 核種ごとの半減期と、10 ngに相当する放射能

核種	Cs-137	U-238	Pu-239
半減期 [year]	30	4.4×10^9	2.4×10^4
質量 [ng]	10	10	10
放射能 [Bq]	3.2×10^4	1.2×10^{-4}	23

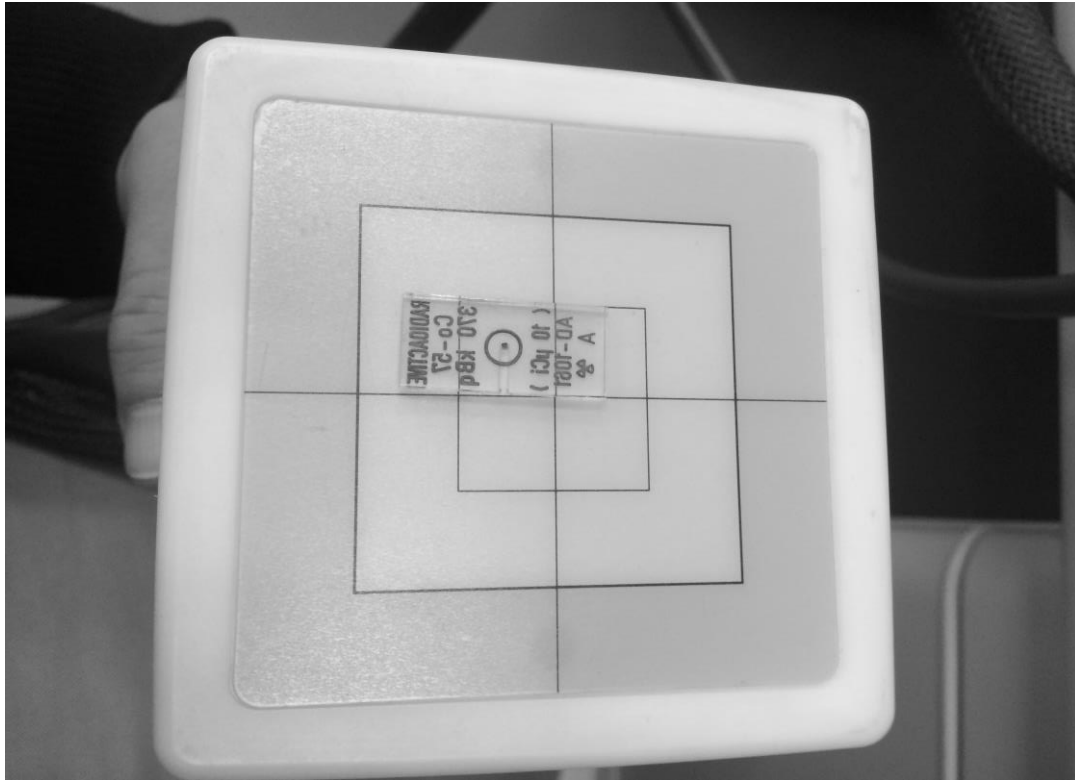


図1 MGC1500 のセンサヘッド前面の写真。写真では、Co57の線源がおかれている

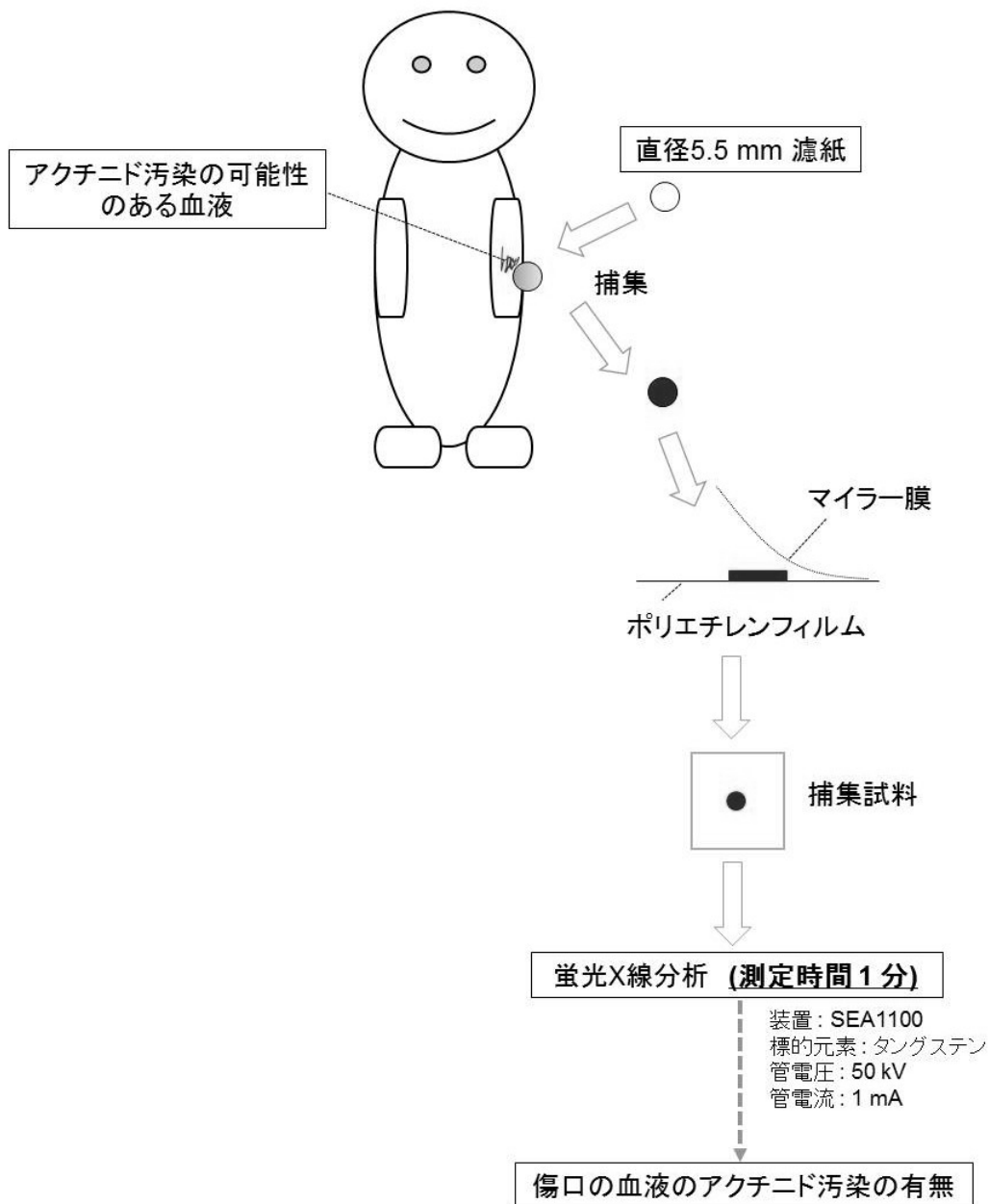


図2 捕集法における測定手法

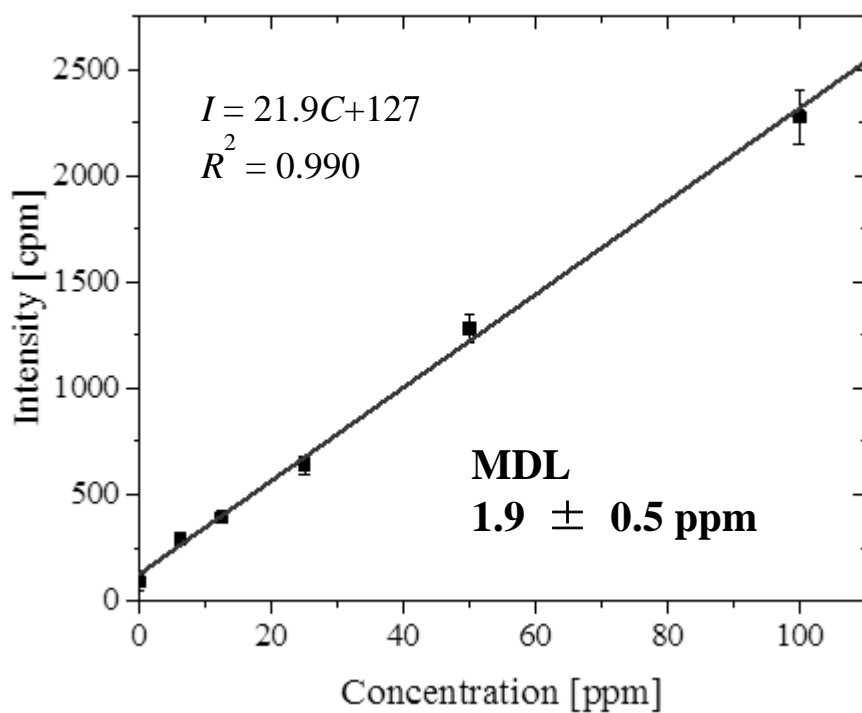


図3 劣化ウラン含有血液の捕集法による検量線

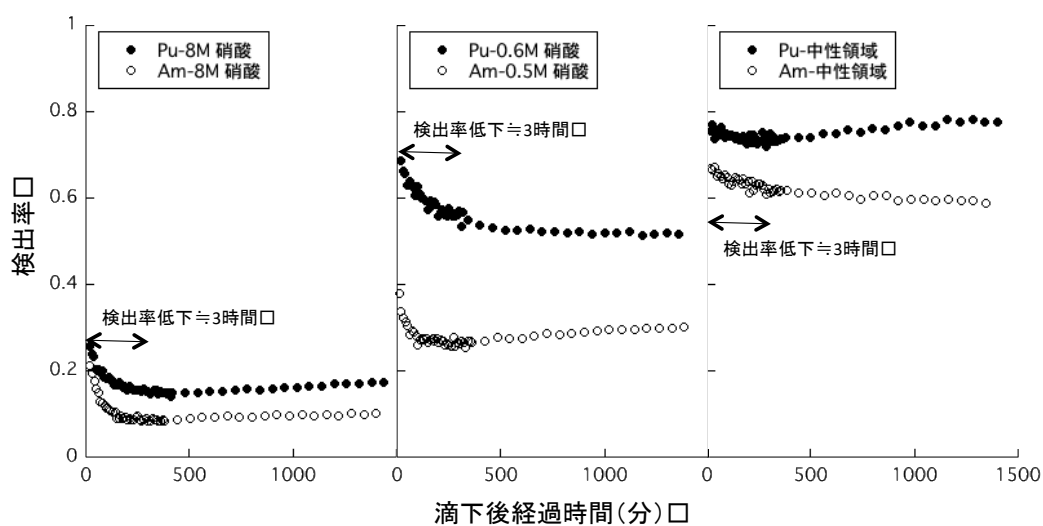


図4 ^{239}Pu と ^{241}Am の酸性度別汚染検出率

α線スペクトルのシミュレーション解析

計算コード: AASI (Advanced Alpha spectrometric Simulation¹)

* T. Siiskonen et al., Nucl. Instr. Meth., A550, 425-434 (2005).

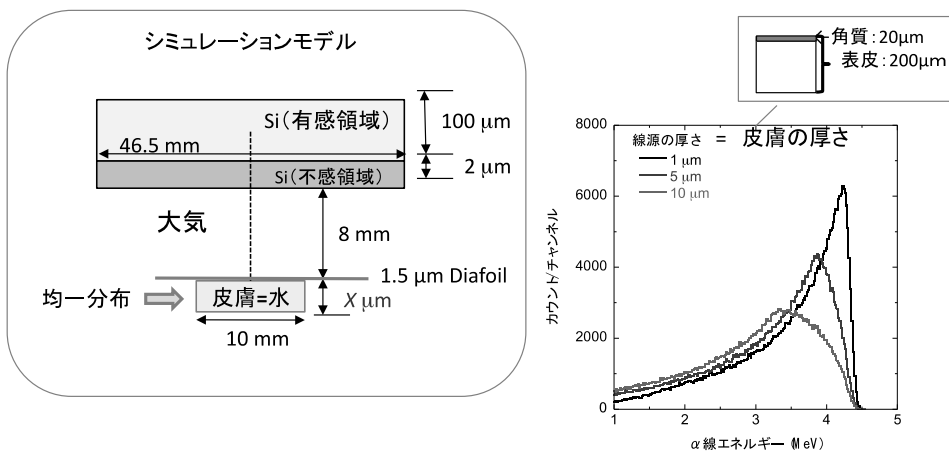


図5 皮膚浸透の深さ方向推定のためのシミュレーション

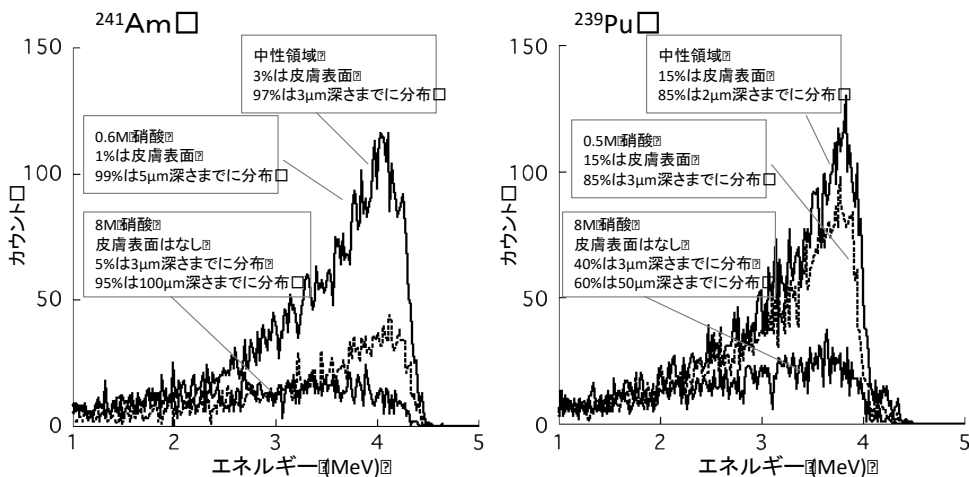


図6 α線スペクトル別シミュレーション結果

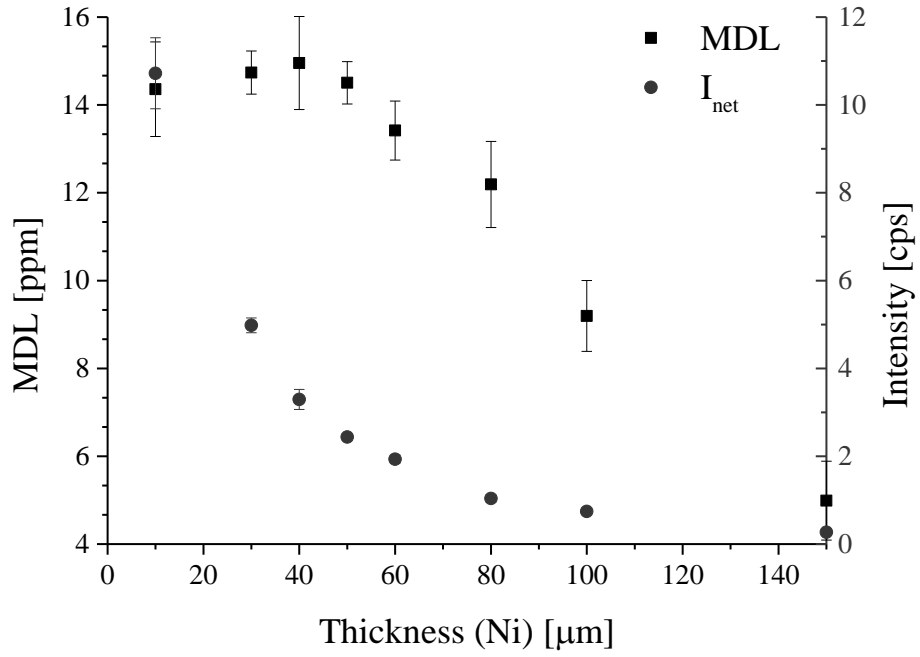


図7 Niフィルターの厚さと検出下限（左軸）、信号強度（右軸）の関係

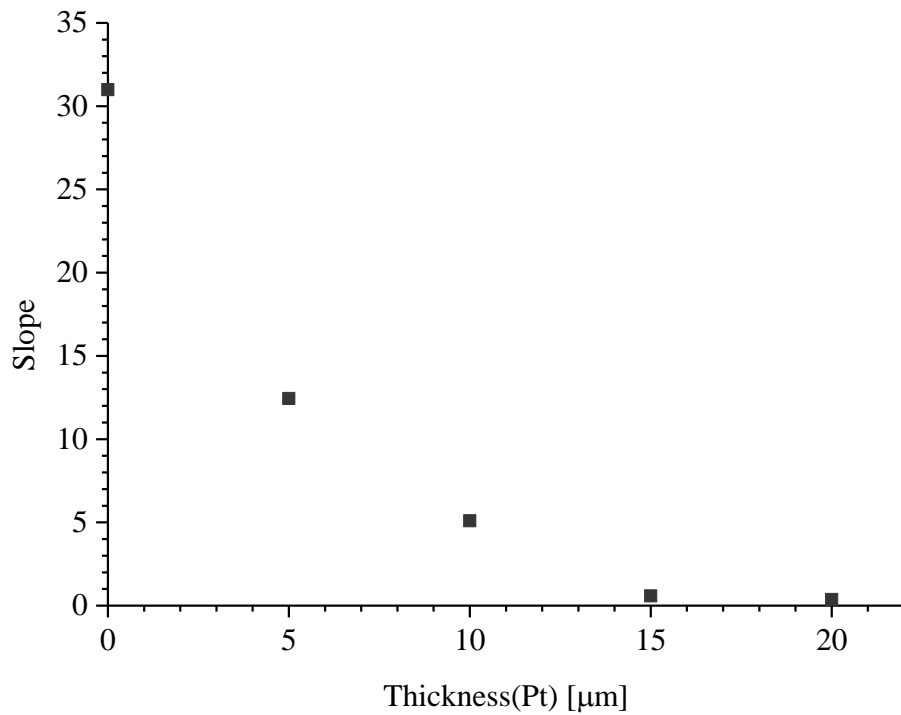


図8 Ptフィルターの厚さとバックグラウンド信号の傾き

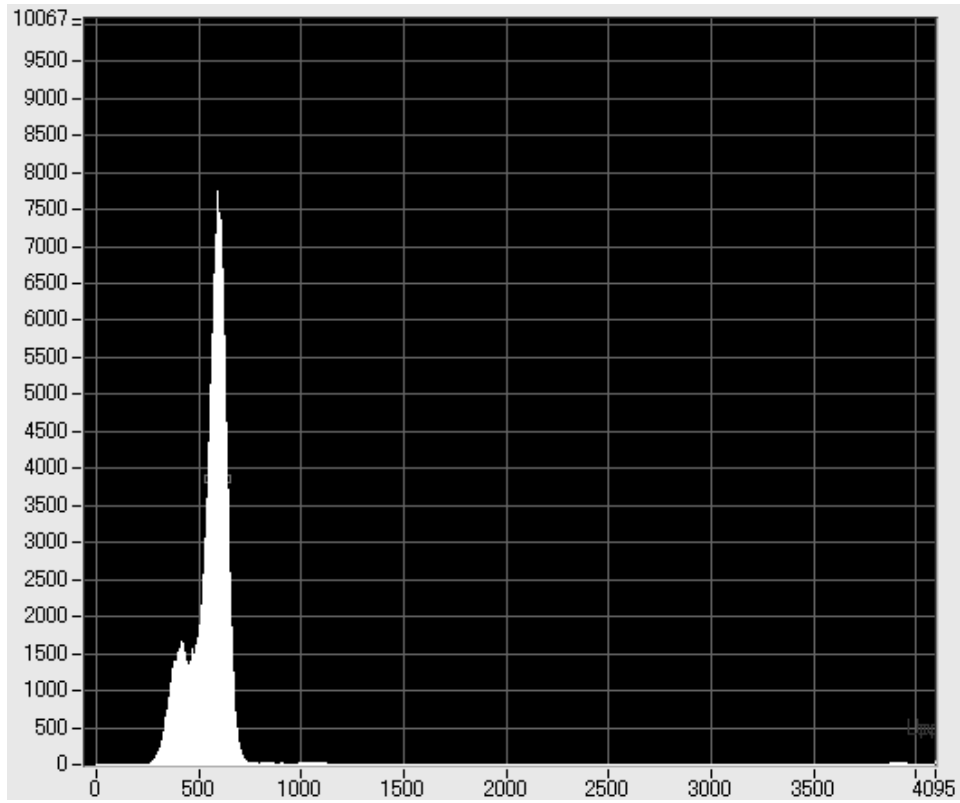


図9 MGC1500で取得したAm241のエネルギースペクトル

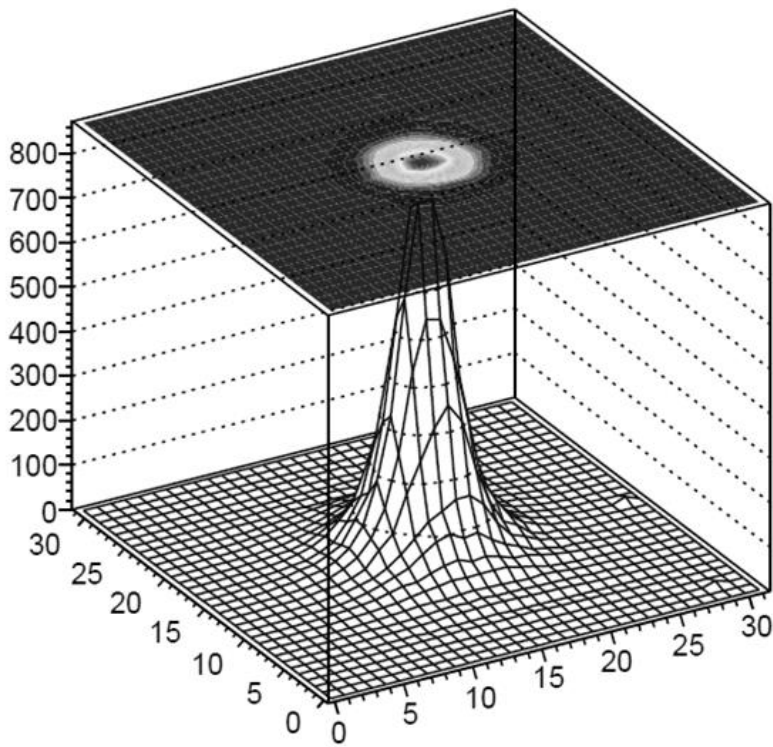


図10 MGC1500で取得したAm241のイメージング画像

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
Ohmachi Y, Imamura T, Ikeda M, Shishikura E, Kim E, Kurihara, Sakai K	Sodium bicarbonate protects uranium-induced acute nephrotoxicity through uranium- decorporation by urinary alkalinization in rats	J Toxicol Pathol.	28(2)	65-71	2015
Ohmachi Y,	Decorporation agents for internal radioactive contamination.	Yakugaku Zasshi (Japanese)	135(4)	557-63	2015