

労災疾病臨床研究事業費補助金

創傷部アクチノイド汚染の迅速定量分析法に関する研究
平成28年度 総括・分担研究報告書

研究代表者 吉井 裕

平成29 (2017) 年 3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
吉井 裕（量子科学技術研究開発機構）	
II. 研究成果の刊行に関する一覧表	21

労災疾病臨床研究事業費補助金

総括研究報告書

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、平成27年度の研究で、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ていたので、今年度はこれをプルトニウムに適用した。濾紙小片に硝酸プルトニウム溶液を各種濃度で滴下し、その上からラット血液を滴下ししたうえで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、Pu $L\alpha$ 線の信号強度はプルトニウム濃度に比例し、検出下限値として 37 Bqを得た。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、深さ1mmの刺し傷、切り傷ならびに角質除去による擦り傷を作成した。硝酸プルトニウム溶液で約50Bq相当の汚染とし、ZnS(Ag)サーベイメータによる検出効率を検討した。血液が無い状態でも、皮膚状態変化による α 線検出効率の低下が認められ、従来法での定量化は難しいことが示唆された。直接法における皮膚の被ばく線量の評価をポリマーゲル線量計で行うため、その製作方法などを検討した。

平成 27 年度に購入したハンドヘルド XRF 装置 S1 Tracer III-SD (BRUKER) において、ウランの分析感度が最高となる一次フィルター構成を探索し、Ni 80 μm が最適であるという結果を得た。また、広照射野 XRF 装置の開発では、基礎的検討のために装置内での X 線管、試料、検出器等の配置を自由に変更できるシステムを構築した。傷をつけたポリエチレンブロックに 750 Bq の硝酸プルトニウム溶液を滴下した針刺し傷モデルを構築した。これを用いて、高空間線量率環境下における HPGe による特性 X 線測定と XRF 測定を比較し、XRF は高空間線量率環境下でも適用可能であることを示した。CdTe イメージング装置の開発においては、広視野用、または、狭視野高解像度用(MGC1500、アクロラド)をそれぞれ開発・評価をしている。前者はセンサ調整のための試験ジグの製造が完了した。後者はセンサ調整が完了し、データ解析および可視化アルゴリズムとそのソフトウェアを開発した。アメリシウム線源およびプルトニウム線源のイメージングの評価をし、60 秒計測での検出限界として、約 3 Bq (^{241}Am)を得た。プルトニウム (^{241}Am 40Bq 相当)のイメージングに成功した。

研究分担者

伊豆本幸恵 量子科学技術研究開発機構

福津久美子 量子科学技術研究開発機構

小林進悟 量子科学技術研究開発機構

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 (= $\mu\text{g/g}$) 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) から明らかのように、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。

本研究の目的は、このような創傷部アクチニド汚染の迅速な定量分析法を開発することにある。平成 27 年度までに、捕集法の手法開発、豚皮を用いた傷モデルの制作法の確立、ラット傷モデルの確立、ハンドヘルド XRF 装置の購入、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った。それを踏まえて、平成 28 年度には、(1) 捕集法におけるプルトニウムの検出下限の決定、(2) 豚皮モデルにおける従来法の問題点の洗い出し、(3) ポリマーゲル線量計作成法の検討、(4) ウランの検出に適した一次 X 線フィルターの探索、(5) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発に関する基礎検討、(6) 高空間線量率環境下における特性 X 線測定と XRF 測定の比較、(7) CdTe イメージング方法の検討、を行うことを目的として研究を遂行した。なお、平成 27 年度に基礎検討を行ったラット傷モデルを用いた *in vivo* 実験については、新たに皮下組織まで含んでいるヒト凍結皮膚が販売され、これを用いることで無用な動物実験を避けることができるようになったので中止した。

B. 研究方法

(1) 捕集法におけるプルトニウムの検出下限の決定

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

だうえで XRF 測定を行う必要がある。そのための手法として、平成 27 年度に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ていたので、今年度はこれをプルトニウムに適用した。

濾紙小片に 75 Bq/μL の硝酸プルトニウム溶液をそれぞれ 0, 2, 4, 6, 8, 10 μL 滴下し、乾燥させた。これにより、濾紙中のプルトニウムはそれぞれ 0, 150, 300, 450, 600, 750 Bq となる。その後、それぞれの濾紙にラット血液を 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 (図 1)。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。測定条件は管電圧 50 kV、管電流 1 mA で、測定時間は 1 試料につき 1 分間である。

(2) 豚皮モデルにおける従来法の問題点の洗い出し

ユカタンピッグ皮が健全な状態では、硝酸溶液を滴下した時が、溶液の皮膚への浸透が顕著であることを前年度明らかにした。そこで、今年度は傷モデル試験として、硝酸溶液を用いることとした。まずは既存の計測法である α 線計測を主体として、試験を行った。

傷モデルとして、擦り傷、切り傷、刺し傷の 3 種類をユカタンピッグ皮に作成した (図 2)。作成した傷を有するユカタンピッグ皮に、それぞれ約 50 Bq の ²³⁹Pu 硝酸溶液 (8M) を滴下し、皮下に浸透したことを確認した後、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。

(3) ポリマーゲル線量計作成法の検討

直接法は皮膚の被ばくを伴うので、その被ばく線量評価が必要となる。XRF の入射 X 線はエネル

ギーが低いうえに照射径が小さく、線量評価を行うことは難しい。そこで、3 次元的に吸収線量を評価するためにポリマーゲル線量計を用いることを考えた。ポリマーゲル線量計は、一般に溶媒 (水)、ゲル化剤 (ゼラチン)、ビニルモノマーからなり、放射線の照射によって引き起こされるビニルモノマーの重合反応を利用した放射線を計測する放射線検出器である。放射線が照射されたゲルでは重合反応が進むことでゲルが白濁固化し、目視でもその様子が確認できるほか、MRI や X 線 CT、光学 CT などで断層撮影を行い、変化量の 3 次元分布を定量的に求めることができる。

我々が用いたポリマーゲル線量計は PAGAT (Poly-Acrylamide, Gelation And THPC) と呼ばれるもので、線量率による応答の変化が他のポリマーゲルと比べて極めて小さいという特徴がある。一般に、ポリマーゲル線量計は酸素により重合阻害が生じるので、脱酸素剤として THPC (Tetrakis Hydroxymethyl Phosphonium Chloride) を加え、型に入れて密封する。しかし、それでも溶存酸素をすべて取り除くことはできないと考えられる。そこで、ゲル線量計溶液を作成した後に真空脱泡してから型に入れる手法を考案した。また、標準的な添加するビニルモノマーの量は、ゼラチン溶液 376 g あたりに 12 g であるが、これに対し、ビニルモノマーの量を 6 g, 12 g, 18 g, 24 g としてゲル線量計を作成し、2, 4, 6, 8, 10 Gy の X 線を照射して、MRI によって重合の度合いを計測した。

(4) ウランの検出に適した一次 X 線フィルターの探索

平成 27 年度に購入したハンドヘルド XRF 装置 S1 Tracer III-SD (BRUKER) において、ウランの分析感度が最高となる一次フィルター構成を探索した。試料は 1 mm 厚ウラン含有レジジン (100ppm) と生理食塩水からなる創傷モデルで、フィルター

にはCuとNiを用いた。フィルター厚さは30, 60, 90, 120, 150 μmとし、さらに70, 80μmについても追加測定を行った。測定条件は管電圧 40 kV、管電流 30 μA、測定時間 600 sec、測定回数は4回である。得られたXRFスペクトルから、ネット信号強度とバックグラウンド信号強度を求め、

$$MDL = \frac{3c}{I_{net}} \sqrt{\frac{I_{bg}}{t}} \quad (2)$$

に基づいて検出下限値 (minimum detection limit: MDL) を求めた。なお、式(2)において、 c はウランの濃度[ppm]、 I_{net} と I_{bg} はそれぞれ $UL\alpha$ のネット信号強度とバックグラウンド信号強度[cps]、 t は測定時間[s]である。

(5) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発に関する基礎検討

創傷部が純粋なプルトニウムで汚染され、Amイメージングによる汚染分布の推定が不可能であるときに対応するため、広照射野蛍光 X 線分析装置の開発を合わせて行っている。その基礎検討のために、平成 27 年度に、鉛で遮蔽された筐体内に X 線管、試料、検出器を自由に配置できる系を確立した。しかし、そのままの状態では遮蔽に用いた鉛の信号が強く表れるため、内部に X 線の散乱を抑える働きのあるカーボングラフィートを貼り付けた。これにより、蛍光 X 線スペクトルの観測が行える環境が整った。この状況で、X 線管から放出される X 線の様子及び、薄型コリメータを通り抜けた後の X 線の進路について、ポリマーゲル線量計を用いて確認した。

(6) 高空間線量率環境下における特性 X 線測定と XRF 測定の比較

すでに述べたように、 α 線は血液で容易に遮蔽されるので、創傷部アクチニド汚染を α 線計測法で検出することは難しい。一方で、ウランやプルトニウムは内部転換後に特性 X 線を放出することが

知られており、この特性 X 線を測定することによって創傷部のアクチニドを検出できる可能性がある。特性 X 線は放出率が極めて低いため、その測定には高純度ゲルマニウム半導体検出器 (HPGe) を用いなければならない。しかし、XRF 装置に用いられている SDD と比べて HPGe は厚く、環境中の γ 線を同時に検出してしまう。そこで、事故現場を想定して 10 MBq の ^{137}Cs 線源からの距離によって高空間線量率環境を再現し、HPGe による特性 X 線測定と XRF 測定を行い、これを比較した。試料には、ポリエチレンブロックに直径 3 mm、深さ約 1 mm の円錐形の傷をつけ、そこに 750 Bq の硝酸 Pu 溶液 (Pu-239+240: 95%, Am-241: 5%) を滴下し乾燥させた刺し傷モデルおよび同量の硝酸プルトニウム溶液に加え、その中のプルトニウムと原子数にしてほぼ同数の劣化ウランを含む酢酸ウラニル溶液を滴下し乾燥させた刺し傷モデルを用いた。特性 X 線の測定では、比放射能の低いウランは測定できないため、硝酸プルトニウム溶液のみを滴下した試料を用いた。一方、XRF 測定では、 $UL\alpha$ 線と $PuLa$ 線のピークが分離することを確認するため、硝酸プルトニウム溶液と酢酸ウラニル溶液を滴下した試料を用いた。HPGe としては SEICO EG&G の LOAX36300 を、XRF 装置としては OURSTEX の 100FA を用いた。LOAX36300 における Ge 半導体の厚さは 15 mm、100FA における SDD の厚さは 0.45 mm である。測定時間はそれぞれ 10 分間、XRF 測定の管電圧は 40 kV、管電流は 1 mA で、X 線管のターゲットである Pd の $K\alpha$ 線に絞って照射するモノクロモードを採用した。

(7) CdTe イメージング方法の検討

昨年度は市販の ^{241}Am 標準線源を用いて小型ガンマカメラ (アクロラド社、MGC1500) の評価を行い、創傷部の Pu イメージングに十分な感度を有することを実証した。本年度は放射線管理区域内に

MGC1500 を設置し、想定される事故に近い放射能をもつ Pu 線源を使用して MGC1500 の性能の評価を進めた。

MGC1500 は有効視野 44.6 mm×44.6 mm で、1.4 mm×1.4 mm の CdTe イメージングセンサが 1024 画素 (32x32) 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取り付けられているが、本実験では感度向上のため常に取り外して使用する。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 (4096 ch) にかけて、CdTe 画素 1024 個のエネルギースペクトルを取得することが可能である。本年度はこのスペクトルデータを解析する自前のソフトウェアを開発し、²⁴¹Am の 60 keV ピークフィッティング、バックグラウンドの除去後、²⁴¹Am を画像化し、雑音低減のための画像処理を施し、60keV のイメージングに最適化した。

線源はポリエチレン上に Pu (²³⁹Pu+²⁴⁰Pu が 750 Bq、²⁴¹Pu 由来の ²⁴¹Am が～40 Bq) をマイラで密封したもの、同形状の ²⁴¹Am 線源 (～40 Bq) を準備した。MGC1500 はあらかじめ標準線源 ²⁴¹Am (43.9 kBq) で感度較正を行った後、定量性とイメージング性能を調べる実験を行った。

C. 研究結果

(1) 捕集法におけるプルトニウムの検出下限の決定

プルトニウムを含有しているすべての捕集試料の XRF スペクトルの 14.3 keV 付近に Pu L α 線が観測された。血液中にプルトニウムは存在しないので、硝酸と血液のみを滴下した捕集試料の XRF スペクトルでは Pu L α 線は観測されなかった。Pu La 線周辺に関心領域 (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することで、Pu L α 線のネット信号強度を求めた。この信号強度は試料中のプルト

ニウム放射能に比例して増大した。そこで、プルトニウム放射能が 0 ～ 750 Bq の範囲における検量線を作成したところ、良好な直線性を示した ($R^2 = 0.033, s = 0.9992$; 図 3)。

(2) 豚皮モデルにおける従来法の問題点の洗い出し

傷モデルの α 線検出率を図 4 に示す。切り傷と刺し傷では、Pu 滴下後 2 時間を経過する時点まで健常皮膚での検出率、約 0.2 とほぼ差が無い結果となった。この 2 種類の傷の皮膚表面からの深さは、健常皮膚で浸透する深さと大差がなかったためと考えられる。これに対して擦り傷では、検出率が 0.1 以下と非常に低い結果であった。表皮 (ユカタンピグでは黒色の表皮) が無い状態となった場合、滴下した硝酸溶液によって酸熱傷によるタンパク質凝固が起こり、 α 線を遮蔽したためと考えられる。図 5 に示す汚染滴下後 20 分経過した時点での α 線エネルギースペクトルからも、擦り傷は明らかに強い遮蔽を受けた形状であることがわかった。擦り傷のスペクトル形状はこの後時間経過とともにタンパク質凝固部分が乾燥し、スペクトル形状で Pu ピークが確認できるようになった。切り傷と刺し傷では、 α 線エネルギースペクトルの形状が比較的シャープであった。これは傷のサイズが小さかったため、汚染部分が限定された点線源のようになったためと考えられる。

(3) ポリマーゲル線量計作成法の検討

THPC のみで脱酸素を行ったときは、作ったポリマーゲル線量計の数個に 1 個程度、容器上部で重合が起きない (容器下部のみ白濁する) ものができてしまう。一方、ポリマーゲル溶液作成直後 (ゲル化前) に真空デシケータに入れて真空脱泡を施すことで、毎回安定なポリマーゲルが作成できるようになった。ただし、真空度を上げすぎるとゲル溶液が飛び散ってしまうため、0.2 気圧程度の弱

い真空度で作成するのが適当であることも明らかとなった。

X線吸収線量とMRI測定のリニアリティ係数を図6に示す。信号強度はビニルモノマー量が増えるにつれて上昇している。また、ビニルモノマー量が少ないほど頭打ちするのが早いという結果になった。一方、ビニルモノマーを24g入れたときはゲル化しなかった。

(4) ウランの検出に適した一次X線フィルターの探索

図7にフィルターの有無によるスペクトルの変化を示す。フィルターを使用していない場合、UL α 線のピークがバックグラウンドに埋もれてしまっていることが分かる。一方、フィルター厚90 μ mのNiをフィルターに使用した場合、強度は1/100程度に低下しているが、UL α 線周辺のバックグラウンドが大きく低減されてネット信号強度が大きくなっていることが見て取れる。

図8にNiおよびCuフィルターの厚さとMDLの関係を示す。当初、フィルター厚さは30, 60, 90, 120, 150 μ mとしたが、60 μ mと90 μ mの間に最適解があると予想されたため、70 μ m, 80 μ mについても測定を行った。Ni, Cuともに80 μ mの時にMDLが最低となった。それぞれの値は、NiではMDL=1.77 \pm 0.01 ppm、CuではMDL=1.79 \pm 0.02 ppmとなった。わずかにNiの方が低いMDLを与えているが、Cuの場合と有意な差はなかった。

(5) 広照射野蛍光X線分析装置の開発に関する基礎検討

X線管から放出されるX線と、薄型コリメータ(導波路)を通して放出されたX線の軸をゲル線量計で確認した。X線の軸は導波路の軸でほとんど決定されるため、導波路の軸上に試料が斜めに配置されるように設計することでX線を広く照射できることが明らかとなった。

(6) 高空間線量率環境下における特性X線測定とXRF測定と比較

図9にHPGeで測定された特性X線のスペクトルを示す。スペクトル中には $^{239+240}\text{Pu}$ の特性X線(U $L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$)のほか、 ^{241}Am の特性X線(Np $L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$)や ^{241}Am の γ 線(59.5 keV)、さらには ^{137}Cs の特性X線(Ba $K\alpha$, $K\beta$)も観測されている。 ^{241}Am は硝酸プルトニウム溶液中に、プルトニウムとの放射能比5%ほど混在している。スペクトルから明らかなように、 $^{239+240}\text{Pu}$ の特性X線と ^{241}Am の特性X線は分離できていない。このため、 $^{239+240}\text{Pu}$ の定量評価を行うためには、前もって ^{241}Am における59.5 keVの γ 線と特性X線の強度比を求めておき、実際の測定で得られた59.5 keVの γ 線の強度から特性X線の強度を推定して差し引く必要がある。しかし、図9に示すように空間線量率が上昇することで59.5 keVの γ 線のあたりのバックグラウンドが上昇し、解析が困難になっている。図10に空間線量率と、この方法で推定されたプルトニウムの信号強度の関係を示す。空間線量率の上昇に伴い、プルトニウムの信号が低下し、エラーバーも大きくなっていることがわかる。さらに空間線量率を上昇させると、HPGeが窒息してしまい、特異的なふるまいをしている。本研究から、空間線量率が3 μ Sv/hを超えるとプルトニウムの定量が困難になることが明らかとなった。一方、XRFでは図11に示すように空間線量率を上昇させてもスペクトルに変化はなかった。また、UL α とPu $L\alpha$ のピークが完全に分離していた。これは、SDDのエネルギー分解能がこれらのピークの分離に十分なほど高いためである。

(7) CdTeイメージング方法の検討

はじめに標準線源 ^{241}Am からの60keVのガンマ線を照射することでMGC1500の感度の測定をした。MGC1500の感度は60 keVのガンマ線の計数率

と ^{241}Am の放射能の比較から 14.4 Bq/cps と求められた。この感度を用いて、Pu 線源、 ^{241}Am 線源を定量することを試みた。線源を図 12 のように MGC1500 の中央に設置し、30, 60, 180, 300, 600 秒間にわたりそれぞれ測定し、60keV のピークを分析することで得た ^{241}Am の放射能を表 2 に示す。Pu 線源、 ^{241}Am 線源の両者ともに予想された ^{241}Am の放射能である 40 Bq に近い結果を得た。また、本実験で 60keV をイメージングすることで得られた Pu の分布を 2 次元ヒストグラムで表したものを図 13 に示す。この画像では Pu 線源を中央に設置してあり 60 秒間の測定をしたデータを前述したデータ解析プログラムで画像処理した。図 14 には 2 つ画像が並べられている。これは両者とも ^{241}Am 線源をイメージングしているが、線源を設置した場所がそれぞれ中央および右上となっている。位置に応じて分布画像が変化し可視化ができていくことがわかる。

D. 考察

(1) 捕集法におけるプルトニウムの検出下限の決定

本研究では汚染物質として、硝酸プルトニウムを使用した。硝酸プルトニウムは強酸であるため、血液と混合すると血液が凝固してしまう。そこで、硝酸プルトニウムをろ紙に滴下し乾燥させた後に血液を滴下することで、捕集試料を作成した。しかし実際にプルトニウムに汚染した創傷部では、プルトニウムと血液が混ざり合っている可能性もある。そのため、今後は硝酸プルトニウムと血液を混合した後、ろ紙に捕集させる方法も構築する必要がある。

Pu α 線ネット信号強度から、本測定系におけるプルトニウムの検出下限放射能を算出したところ、37 Bq であった。使用済み核燃料中のプルトニウム核種存在比を基に算出した、医療介入レベル

(1ALI) のプルトニウム放射能はおよそ 200 Bq であり、本測定系の検出下限放射能はこれを十分下回る。このことから、本測定系は創傷部プルトニウム汚染の有無を検討するうえで有用であることが示された。

今後は、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) 豚皮モデルにおける従来法の問題点の洗い出し

硝酸 Pu を用いた傷モデルの検出率は、切り傷・刺し傷は 0.2 付近、擦り傷は 0.1 以下とより低い値を示した。出血を伴う傷の場合は、血液による遮蔽を受け、更に低い検出率となる可能性は否定できない。今後は、出血を伴う傷モデルを構築し、検出率を求めるとともに、同一モデルでの XRF 分析を試行する。更に、ユカタンピッグ皮とヒト皮膚で検出率に違いが無いかを検討する必要がある。

(3) ポリマーゲル線量計作成法の検討

本研究により、真空脱泡によってゲル線量計の安定性が増すこと、添加するビニルモノマーを増量することでより高感度なポリマーゲル線量計が作成できることが示された。しかし、真空脱泡の手法を改善することで、さらに安定なポリマーゲルが作成できると思われる。現在、真空脱泡はゲル線量計溶液作成後（ゲル化前）だけに行っている。しかし、実際に溶液中に酸素が多く混入しているのは 50 度ほどに温めた超純水にゼラチンを入れて攪拌するときである。そこで、この攪拌時にも真空脱泡しておくことで、溶液中への酸素の混入を防ぐことができると思われる。

また、ゲル線量計によってハンドヘルド XRF 装置を人体に適用した場合の線量評価を行う場合、容器にも工夫が必要である。XRF における入射 X 線のエネルギーは低いので、通常のアクリル容器

の場合、容器で X 線が減衰してしまう。そこで、容器の一部をマイラ膜等にすることが考えられるが、マイラ膜は酸素をある程度透過させてしまうため、酸素による重合阻害が問題となる。このため、一部をマイラ膜にした容器でゲル線量計を作り、これを使用時まで真空デシケータに入れて管理し、使用時だけ大気に触れるようにする方法が考えられる。

(4) ウランの検出に適した一次 X 線フィルターの探索

Tracer-III SD には、green filter 名づけられた一次 X 線フィルターが備えられている。本研究の結果得られた最も低い MDL は、この green filter を用いた場合よりも好成績だった。Green filter は、あくまで重元素一般用のフィルターであり、本研究のようにウランに特化して、ウランの $L\alpha$ 線における MDL が最も低くなるように最適化することで、より検出下限を引き下げられることが明らかとなった。ウランに対して最も好成績だったのは Ni 80 μm のフィルターである。しかし、Cu 80 μm の値と有意な差はないので、Cu と Ni のどちらが最適であるかの結論を得るには至らなかった。Cu のほうが Ni よりも安価で入手しやすいため、Cu80 μm の方が理想的と言えるかもしれない。今後は、プルトニウムの検出に最適な一次 X 線フィルターの探索を行っていく。プルトニウムの $L\alpha$ 線のエネルギーは 14.3 keV であり、ウランの $L\alpha$ 線よりもエネルギーが若干高い。このため、吸収端のエネルギーの高い Zn の方が適している可能性がある。そこで、Cu と Zn でフィルターの最適化を図る。

(5) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発に関する基礎検討

これまで、広照射野蛍光 X 線分析器の制作方法について検討を重ねてきた。その結果、試料に X 線を浅く入射することによって照射面積を広げる

方法が最適と考えるに至った。本装置は、比較的面積の大きな傷口が純粋なプルトニウムによって汚染された場合に用いるもので、装置はハンドヘルド、あるいは可搬型である必要がある。そのために、構造はできるだけシンプルであることが望ましい。今後は、X 線管と導波路によって決定される入射 X 線の軸に対して試料がわずかに角度を持つような装置を開発し、広く X 線を照射して蛍光 X 線を検出する方法を確立することを目指す。

(6) 高空間線量率環境下における特性 X 線測定と XRF 測定の比較

本研究により、特性 X 線の測定は高空間線量率環境下では難しいことが明らかとなった。そもそも、HPGe での特性 X 線の測定では、 $^{239+240}\text{Pu}$ の特性 X 線 ($U L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$) と ^{241}Am の特性 X 線 ($Np L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$) を分離できていない。このため、59.5 keV の ^{241}Am の γ 線の強度を利用してプルトニウムの信号強度を推定しているが、 $^{239+240}\text{Pu}$ の特性 X 線 ($U L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$) 同士も十分には分離していないなど、ピーク強度決定に様々な問題がある。このため、評価値は非常に大きな誤差を帯びたものになってしまう。

一方、XRF スペクトルは空間線量率を 5 $\mu\text{Sv/h}$ 以上に上昇させても全く影響を受けなかった。また、HPGe のエネルギー分解能 (半値幅) が 300 eV 程度であるのに対し、XRF 装置内の SDD のエネルギー分解能は 140 eV であり、 $U L\alpha$ 線と $Pu L\alpha$ 線を容易に分離できる。このため、事故時の対応としての創傷部アクチニド汚染の検出には XRF が適しているといえる。

(7) CdTe イメージング方法の検討

本年度は推定などではなく実際の Pu を使用して、 ^{241}Am の 60 keV を検出することでイメージングができることの実証を目指した。実験では $^{239+240+241}\text{Pu}$ の混合線源を利用したが、60 keV 周辺に妨害とな

るガンマ線ピークはなく、特に問題なく Pu 中の ^{241}Am のイメージングができることを実証できた。実際の核燃料のプルトニウムは ^{238}Pu を含み、それはいくつかのガンマ線を放出するが、簡易的な計算でガンマ線強度を見積もってみると、 ^{238}Pu は ^{241}Am の計測には影響を与えないと考えられる。

MGC1500 がもつ 1024 画素のうちのいくつかは、いわゆるドット欠損により特定の画素に雑音が多いという問題がある。しかし雑音除去のアルゴリズムを工夫しフィルターをすれば特に実用上の問題がないことがわかった。

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、測定結果の評価法が完成し、プルトニウム汚染の場合の捕集法の検出下限を決定できた。今後は、事前に硝酸プルトニウムを血液に混ぜた系について検討を行うとともに、ウランとプルトニウムの混合溶液について、同様の検討を行って行く。

ユカタンピッグ皮を用いた傷モデル計測では、 α 線検出率が 0.2 以下と低いことを明らかにした。今後は、XRF 測定が可能な傷モデルを構築し、 α 線計測との比較検討を行う。

今年度から新たにポリマーゲル線量計による線量評価法の確立に着手した。真空脱泡と温度管理によってさらに安定したポリマーゲル線量計が作成できるようになると考えられる。これを用いたハンドヘルド XRF 装置の線量評価について、今後検討を重ねていく。ウランの測定感度を最大化する一次 X 線フィルターの探索が完了し、今後は同様の方法でプルトニウムの検出感度を最大化する一次 X 線フィルターの探索を行っていく。広照射野蛍光 X 線分析装置は基礎検討を終え、実際の装置の制作に踏み切る段階に進んだ。高空間線量率環境下においては HPGe による特性 X 線の測定よ

りも XRF 測定の方が創傷部アクチニド汚染の定量評価に適していることが明らかとなった。

本年度の実験から Pu 中の ^{241}Am からの 60 keV のガンマ線を測定することで、テルル化カドミウムを用いた 2 次元イメージングセンサで Pu のイメージングができることを実証した。

F. 健康危険情報

とくになし

G. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 書籍

(1) 「蛍光 X 線分析による創傷部アクチニド汚染の迅速定量評価」, 蛍光 X 線分析の実際 第 2 版, 朝倉書店 2016, p57

3. 学会発表

(1) 高空間線量率環境下におけるプルトニウムの特性 X 線測定と蛍光 X 線測定, 吉井裕、伊豆本幸恵、松山嗣史、福津久美子、濱野毅、酒井康弘、栗原治、藤林康久、日本保健物理学会第 49 回年会, 2016 年 6 月, 弘前市

(2) 創傷部プルトニウム汚染の迅速な検出法, 伊豆本幸恵、吉井裕、松山嗣史、福津久美子、濱野毅、酒井康弘、栗原治、藤林康久、日本保健物理学会第 49 回年会, 2016 年 6 月, 弘前市

(3) Pu 創傷汚染時のアルファ線計測に関する考察, 福津久美子、伊豆本幸恵、吉井裕、栗原治、藤林康久、日本保健物理学会第 49 回年会, 2016 年 6 月, 弘前市

(4) α 線エネルギースペクトルの解析によるろ紙内プルトニウム分布の推定、右田豊紀恵、福津久美子、石井康太、酒井康弘、吉井裕、日本原子力学会 2016 年秋の年会、2016 年 9 月、久留米市

(5) 豚皮モデルを用いた創傷部アクチニド汚染検出法の開発、吉井裕、伊豆本幸恵、福津久美子、松山嗣史、酒井康弘、日本原子力学会 2017 年春の年会、2017 年 3 月、平塚市

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

表2 ^{241}Am の測定値

測定時間 [s]	^{241}Am 線源	Pu 線源
30	38 ± 5	36 ± 5
60	33 ± 12	49 ± 17
180	34 ± 5	33 ± 5
300	42 ± 4	43 ± 4
600	46 ± 3	48 ± 3

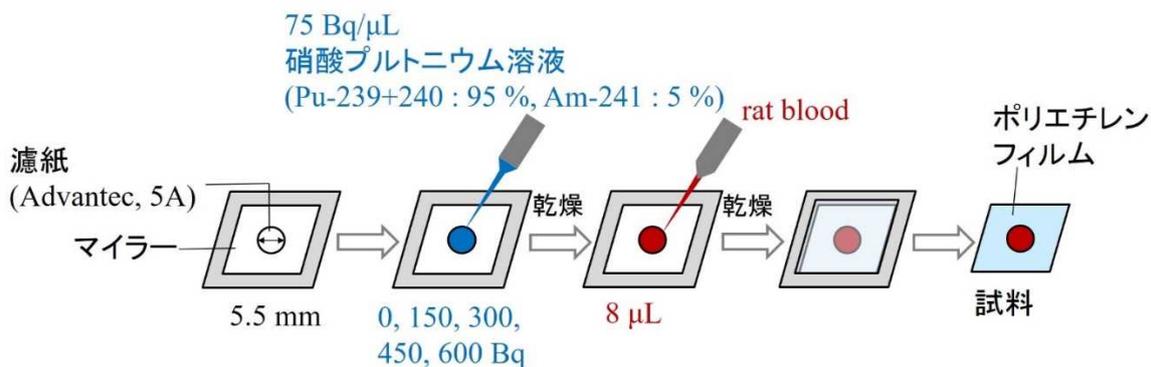


図1 プルトニウム汚染血液捕集法の実験方法

傷の作成

擦り傷モデル: 凍結皮膚の表皮をヤスリで剥がす。

切り傷モデル: 半解凍皮膚に刃で切り傷を作る。幅=1.1mm 深さ=1mm(刃の部分)

刺し傷モデル: 半解凍皮膚に釘を刺す。幅=2mm 深さ=2mm(最初の山部分まで)

Pu汚染の作成

^{239}Pu 8M硝酸溶液
10μl 滴下
(61.2 ± 1.6 Bq)

ユカタンビッグ皮膚
2.5 cm角片

プラスチックシャーレ

計測

ZnS(Ag)シンチレーションサーベイメータ
(TCS-232B 日立アロカメディカル(株))

α線スペクトロサーベイメータ
(PASS-100DD (株)プロテック)

図2 傷モデル皮膚のPu汚染実験手順

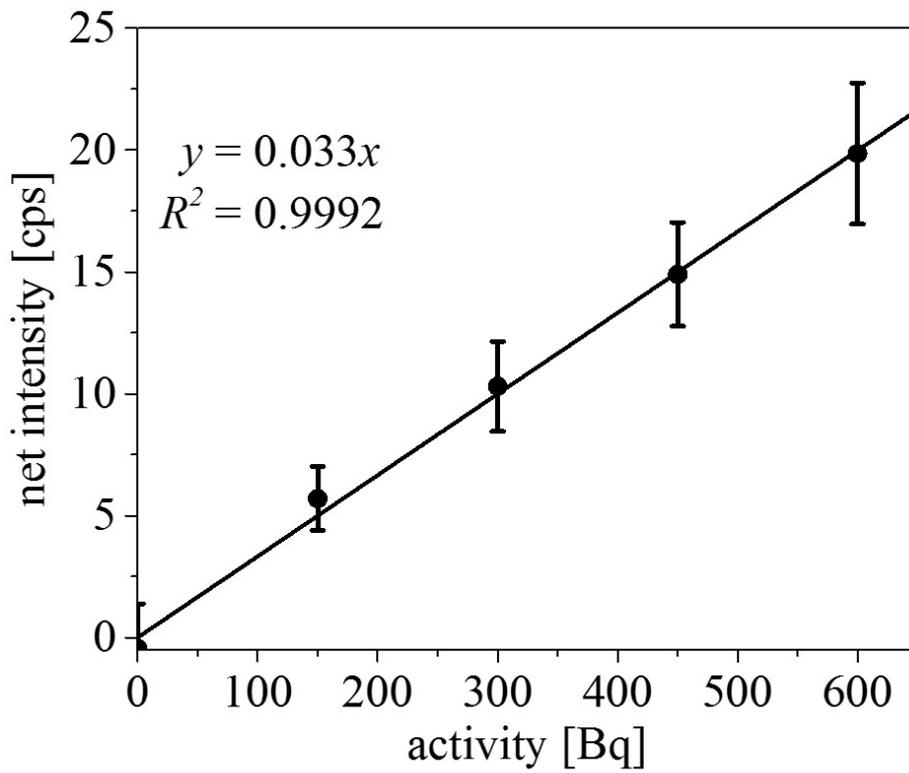


図3 プルトニウム汚染血液の捕集法による検量線

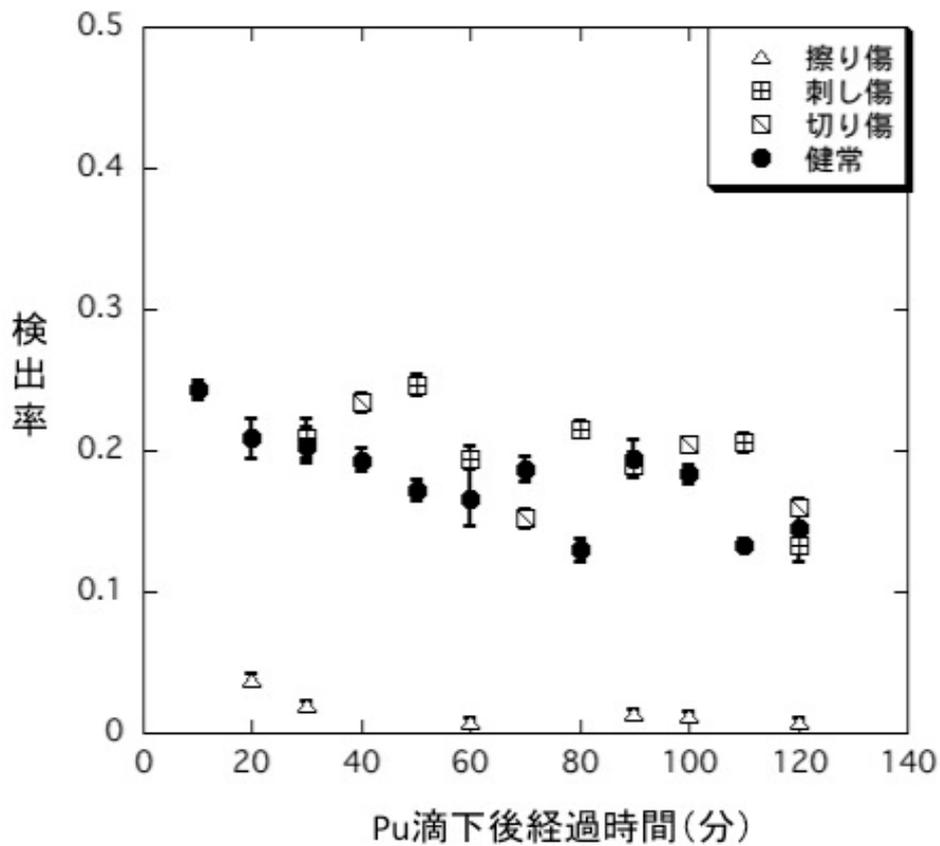


図4 プルトニウム検出率

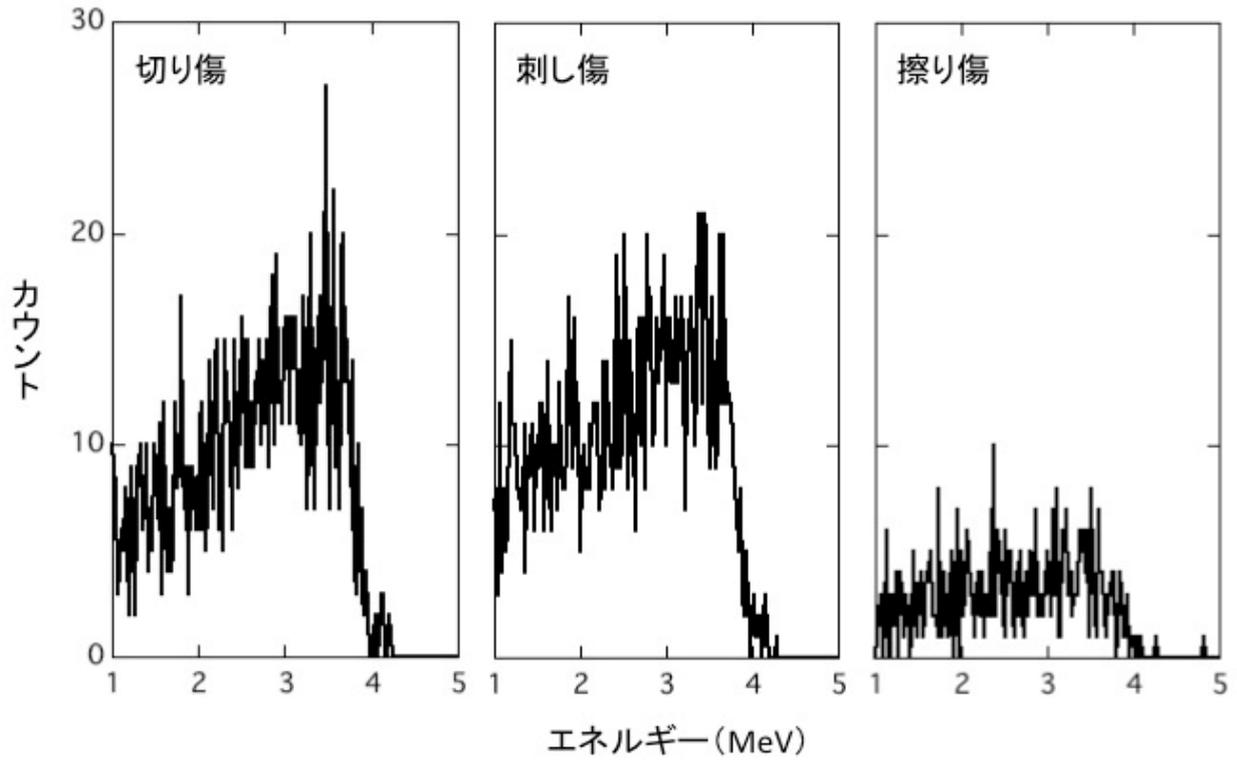


図5 プルトニウム滴下後20分経過時の α 線エネルギースペクトル

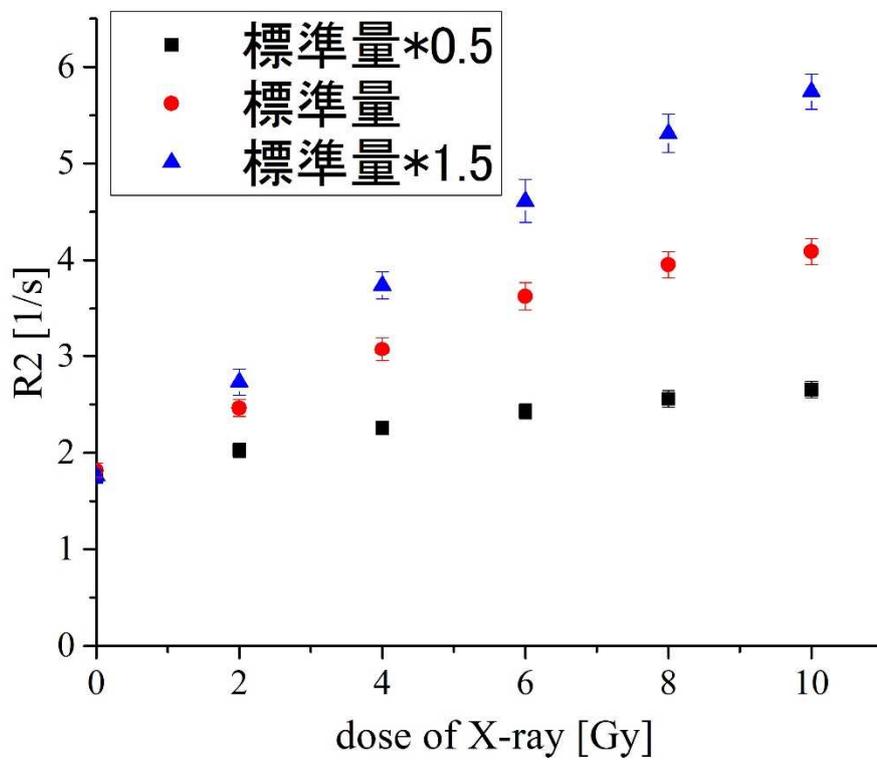


図6 モノマー含有量ごとの、X線吸収係数とR2値の関係

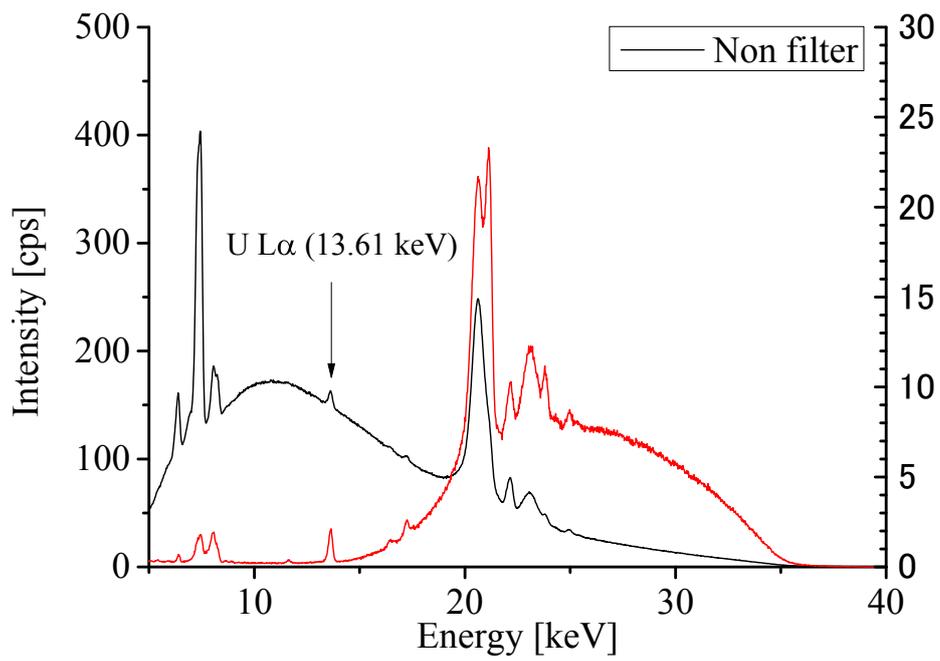


図7 フィルターの有無によるスペクトルの変化

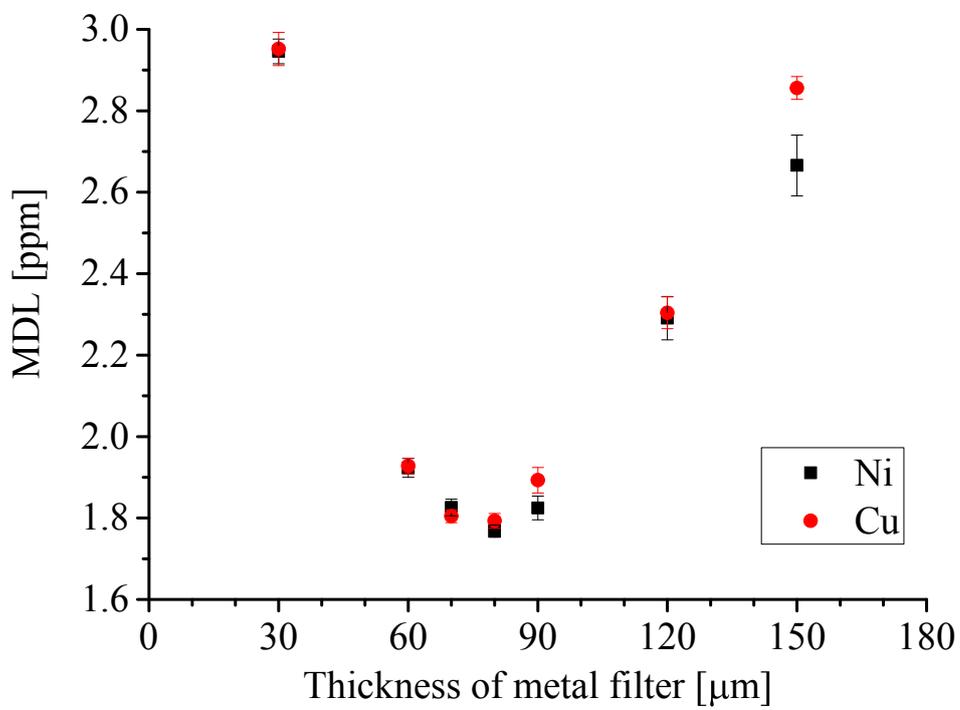


図8 Ni、Cu フィルターの厚さと MDL の関係

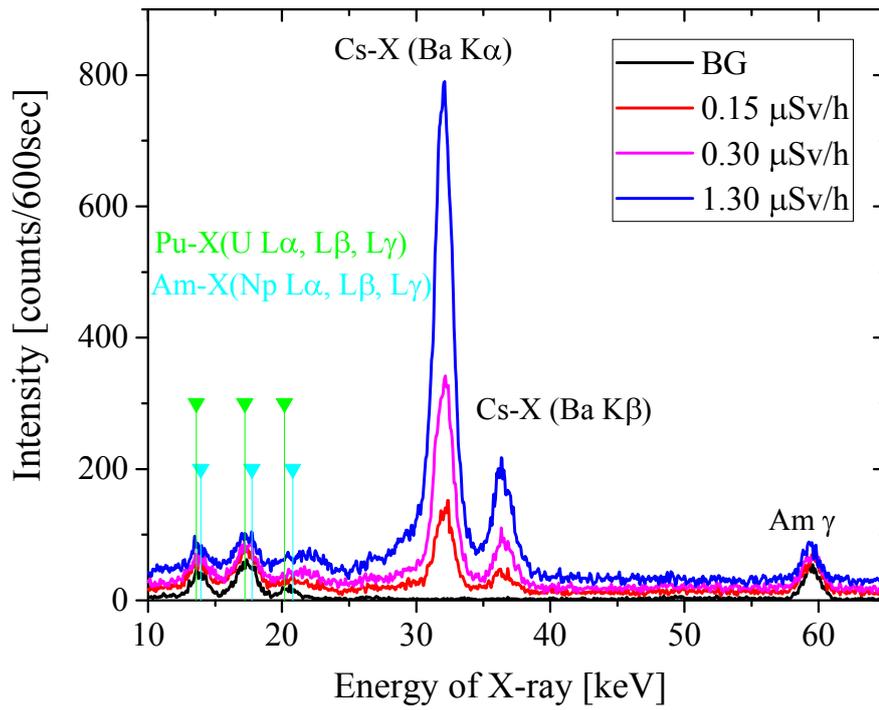


図9 HPGeによる高空間線量率環境下での特性X線測定

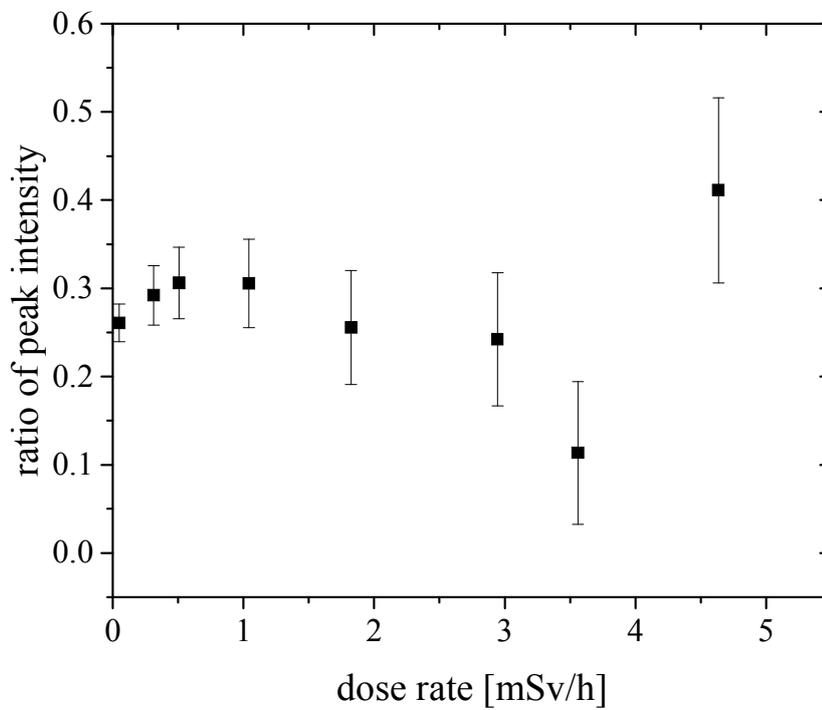


図10 ^{241}Am の信号から推定した ^{239}Pu の信号強度

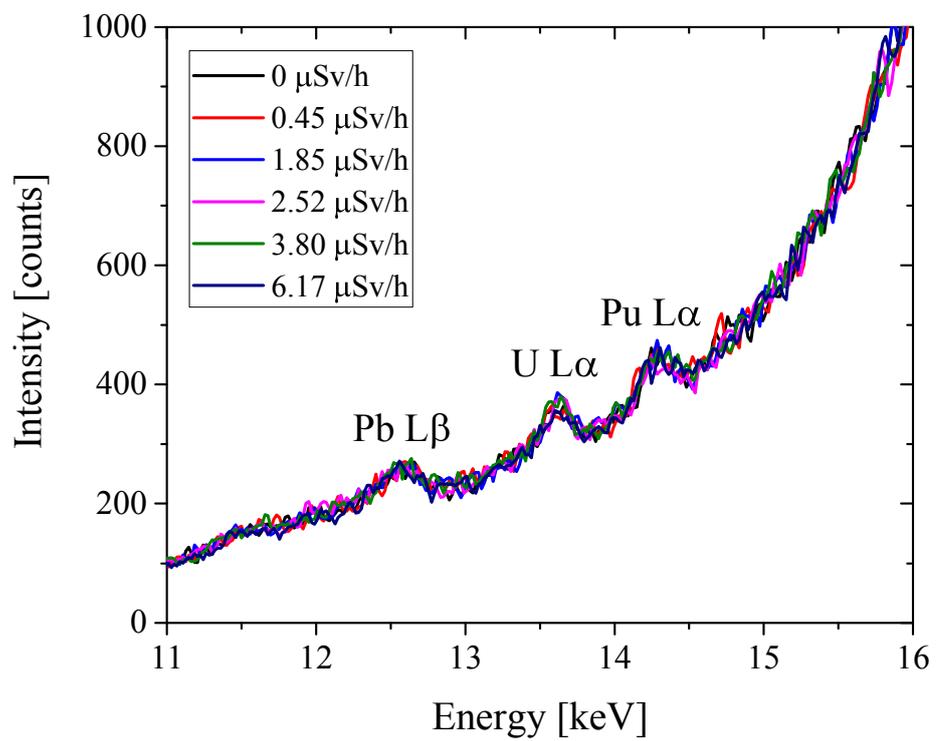


図11 高空間線量率環境下におけるXRFスペクトル



図12 プルトニウム線源とその配置

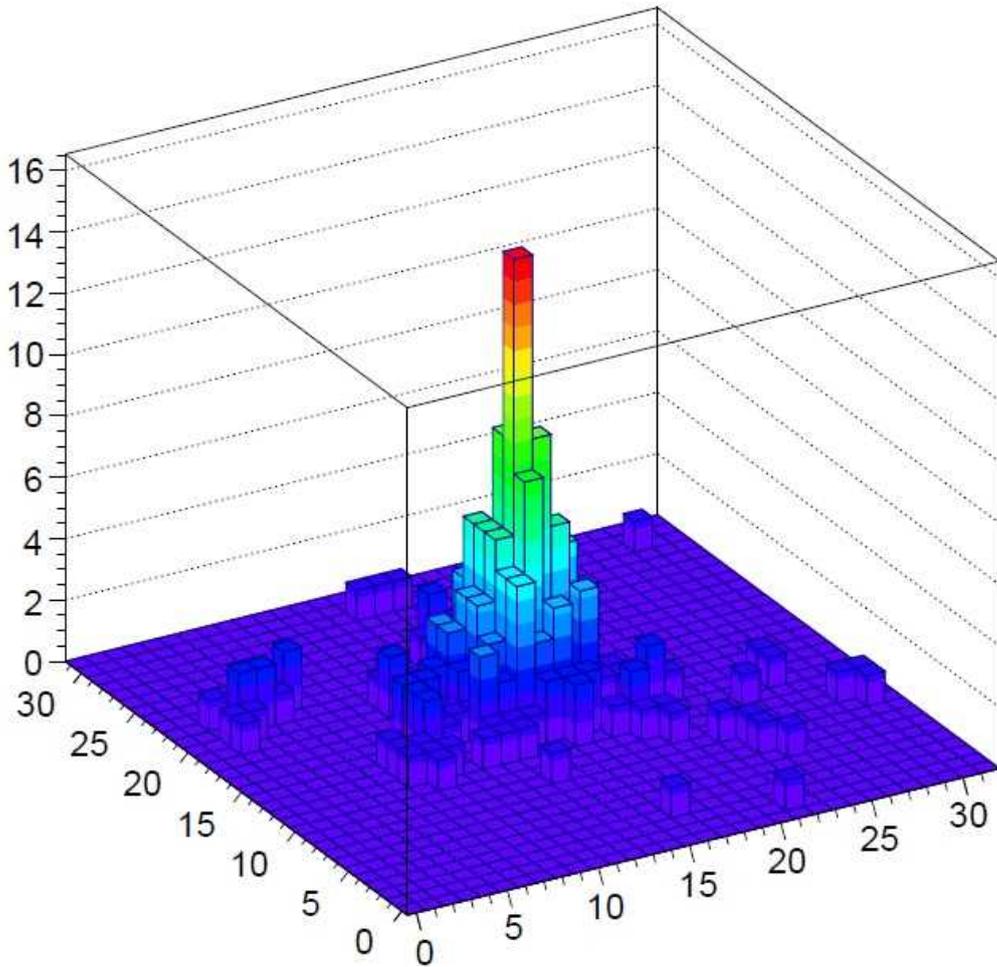


図12 ^{241}Am 計測から得たプルトニウムの二次元ヒストグラム

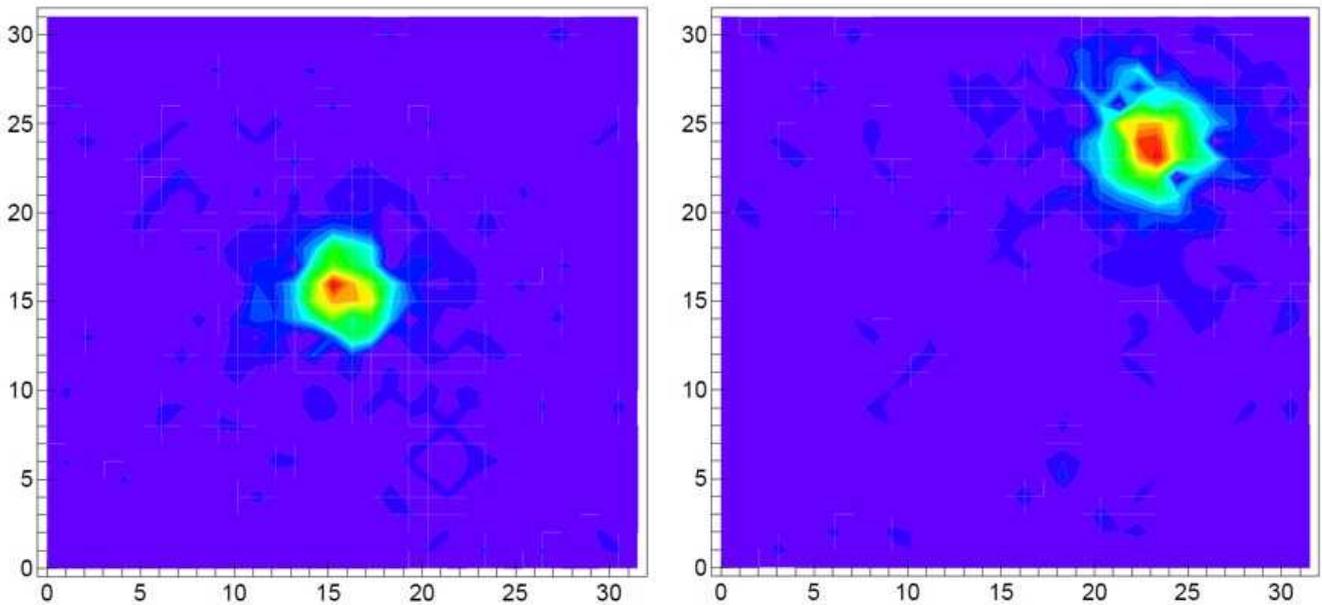


図13 アメリシウムの二次元イメージング

研究成果の刊行に関する一覧表

書籍

著者氏名	論文タイトル名	書籍全体の編集者名	書 籍 名	出版社名	出版地	出版年	ページ
吉井裕	蛍光X線分析による創傷部アクチニド汚染の迅速定量評価	中井泉	蛍光X線分析の実際 第2版	朝倉書店	東京都	2016	57