

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29年度 総括研究報告書

研究代表者 吉井裕

平成30（2018）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
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	----- 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。捕集法については平成28年度の研究までに十分な成果が得られていたので、今年度は、直接法の実験系およびAmイメージングとの組み合わせについて検討した。ヒト皮膚に近い表面構造を持つユカタンピッグ皮膚の表面にAmを5%ほど含む硝酸Pu溶液を滴下して表面から α 線エネルギースペクトルを観測し、モンテカルロシミュレーションの結果と比較した。実測されたスペクトルとシミュレーションに比較から、Puは皮膚表面から0.5 μ m程度の深さに分布しているのに対し、Amは1.5～2.5 μ mの深さに分布していることが明らかになった。ただし、この分布深さの相違は、Amイメージング及び蛍光X線分析においては問題にはならない。傷をつけたユカタンピッグ皮膚に各種濃度の硝酸プルトニウム溶液または硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液を滴下したものを凹型ポリエチレンブロックに埋め込み、表面をマイラ膜で覆ったモデルの作成に成功した（豚皮モデル、豚皮出血モデル）。これを用いて検量線を作成し、蛍光X線分析における信号強度から創傷部に付着しているプルトニウムの放射能を算出できるようになった。

平成 27 年度に購入したハンドヘルド XRF 装置 Tracer III-SD (BRUKER) について、X 線管から放出される入射 X 線をヒト皮膚に照射した場合の被ばく線量を推定するため、ガフクロミック線量計を用いて空気カーマの測定を行った。この結果、1 分間照射での空気カーマは 3.1mGy/cm² となった。ユカタンピッグ皮膚による密封型汚染創傷モデルの作成方法を応用して、冷凍ヒト皮膚を用いて 1500 Bq の硝酸 Pu を滴下したヒト皮膚切傷モデルを作成した。ここで、Am イメージングと組み合わせるため、Tracer-III-SD の照射野よりも広い約 13mm の長さの切り傷モデルとした。モデル中の Am の分布を低エネルギーγ線イメージング装置 MGC1500 (アクロラド) で明らかにし、その中で特に Am の分布量の高い領域を Tracer-III-SD で直接測定した。XRF 測定の結果から、照射範囲に分布する Pu の放射能は約 1014±253 Bq と推定された。これと Am イメージングにおける Am の分布を組み合わせることによって推定された創傷部全体の Pu の放射能は 1763±440 Bq であり、誤差の範囲で滴下量 (1500 Bq) と一致した。これにより、創傷部の Am をイメージングして、かつ、その一部を XRF 測定し、これを組み合わせることにより創傷部全体の Pu 汚染量を算出する手法が確立された。

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 (= μg/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 [Kobayashi et 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。平成 28 年度には、捕集法におけるプルトニウムの検出下限の決定、豚皮モデルにおける従来法の問題点の洗い出し、ポリマーゲル線量計作成法の検討、ウランの検出に適した一次 X 線フィルターの探索、広照射野蛍光 X 線分析装置の開発に関する基礎検討、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、CdTe イメージング方法の検討を行った。これらを踏まえ、平成 29 年度には (1) 豚皮に滴下した硝酸 Pu 溶液の皮膚への浸透に関する検討、(2) 豚皮及びヒト皮を用いた密封型汚染創傷モデルの作成法の検討、(3) 豚皮出血モデルを用いた Pu 検量線の作成、(4) ガフクロミック線量計による線量測定、(5) Am イメージングとの組み合わせによる汚染定量法の確立、(6) プルトニウムの検出に適した一次 X 線フィルターの探索、(7) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発と基礎検討、を行うことを目的として研究を遂行した。

B. 研究方法

(1) 豚皮に滴下した硝酸 Pu 溶液の皮膚への浸透に

関する検討

ユカタンピッグ皮膚 (チャールス・リバー(株)) に汚染核種として ^{239}Pu 溶液 (^{241}Am を含む) 又は ^{241}Am 溶液を $10\mu\text{l}$ (約 50 Bq) 滴下し、滴下後経時的に α 線スペクトロサーバイメータ (PASS-100DD、(株) フロテック) で計測したデータを用いた。皮膚表面から深部への浸潤に伴って、皮膚層の遮蔽により α 線エネルギースペクトルに変化が生じる。このスペクトル形状を再現するために AASI (Siiskonen, T. & Pollanen, R., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 550, 425-434, 2005) でシミュレーション解析を行い、皮膚浸透を検討した。シミュレーションではユカタンピッグ皮膚の角質層厚である $20\mu\text{m}$ までの汚染分布を評価した (図 1)。

(2) 豚皮及びヒト皮を用いた密封型汚染創傷モデルの作成法の検討

豚皮やヒト皮の表面に傷をつけたモデルに硝酸プルトニウム溶液を滴下したモデルを作成する際、汚染拡大防止のために表面をマイラ膜などで覆う必要がある。しかし、皮膚の表面にマイラ膜などを接着するのは容易ではない。そこで、凹型ポリエチレンブロックに傷をつけた豚皮やヒト皮を埋め込み、そこに硝酸プルトニウム溶液および実験用ヒト血液を滴下して、ポリエチレンブロックに両面テープを貼ってマイラ膜を取り付ける方法を考案した。ユカタンピッグ皮膚に傷をつけ、硝酸プルトニウム溶液のみを滴下したものを豚皮モデル、硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液を滴下したものを豚皮出血モデル、実験用ヒト皮膚に傷をつけ、硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液を滴下したものをヒト皮膚切傷モデルと呼ぶ (図 2)。

(3) 豚皮出血モデルを用いた Pu 検量線の作成

ユカタンピッグにメスで針刺し傷を模した直径約 3 mm 、深さ約 1 mm の傷をつけ、硝酸プルトニウム溶液または硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液 (株式会社ケー・エー・シー) を滴下してマイラ膜で密封したモデルを作成した (豚皮モデル、豚皮出血モデル、図 3)。傷口の様子はデジタルマイクロスコープ RH-2000 (HIROX) で撮像した (図 4)。これらのモデルにおいて、滴下する硝酸プルトニウム溶液中のプルトニウムの放射能を $150, 300, 450, 600, 750\text{ Bq}$ とした。使用した硝酸プルトニウム溶液のプルトニウム放射能濃度は $75\text{ Bq}/\mu\text{L}$ なので、それぞれ $2, 4, 6, 8, 10\mu\text{L}$ 滴下したこととなる。滴下する硝酸の量を統一するため、硝酸プルトニウム溶液の硝酸濃度と等しい 2 mol/L の硝酸溶液をそれぞれ $0, 8, 6, 4, 2\mu\text{L}$ 滴下した。豚皮モデルでは、このままの状態、マイラ膜で創傷部を密封した。豚皮出血モデルでは、さらに、出血を模して実験用ヒト血液 (株式会社ケー・エー・シー) $2\mu\text{L}$ をその上に滴下し、乾燥させたうえで、ポリエチレンブロック部分に $6\mu\text{m}$ 厚マイラ膜を張った。この作業はフード内で、半面マスクを着用して行った。このようにして作成したモデルを tracer-III-SD (Bruker) で XRF 測定した。測定時の管電圧は 40 kV 、管電流は $30\mu\text{A}$ 、測定時間は 30 分間とした。測定された XRF スペクトルには Pu La 線に加え、皮膚に由来する $\text{Br K}\alpha$ 線、 $\text{Rb K}\alpha$ 線が観測されたが、これらのピークは十分に離れており、それぞれ単独のピークとして観測された。これに対し、バックグラウンド信号を二次関数で近似し、3 つのピークがそれぞれガウス関数で近似できるものとしてフィッティングを行い、プルトニウム放射能と Pu La 線の信号強度の関係として検量線を作成した。また、検出下限放射能を決定した。

(4) ガフクロミック線量計による線量測定

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。このため、平成28年度まではポリマーゲル線量計による線量評価を目指して研究を進めてきた。しかし、ポリマーゲル線量計は酸素共存下では反応しないために、厚さ1 mm程度のプラスチックケースに封入する必要がある、このケースによる低エネルギーX線の吸収と散乱が無視できない。このため、ポリマーゲル線量計による線量評価は困難であると結論付けた。一方、医療現場で広く用いられているガフクロミック線量計であれば容易に低エネルギーX線の線量評価ができるため、平成29年度には、この方法で線量評価を行う方向で研究を進めることとした。ガフクロミック線量計は放射線の照射による黒化度によって線量評価を行う。黒化度は高性能スキャナで読み込んだ48bit画像をRGBに分解し、このうちR画像のピクセル値により評価する。ガフクロミック線量計はロットごとに反応が幾分異なるので、購入したガフクロミック線量計 (XR-QA2、ベリタス) に対して照射線量に対するR画像のピクセル値の検量線を作成する必要がある。管電圧ごとに校正されたX線照射場 (茨城県立医療大学) において、同一線量照射条件におけるガフクロミック線量計の黒化度の管電圧による変化を確認した。一般にガフクロミック線量計は管電圧30 kV~200 kVでは線量と信号強度の関係がほぼ同様であるのに対して、管電圧が低いところでは同一の線量に対して信号が低下する。この実験により、管電圧40 kVでは管電圧100 kVの場合とほとんど変わらない信号が測定できることが示された。そこで、管電圧を40 kVに固定し、照射時間を変化させて照射した線量 (空気カーマ) と黒化度 (R画像のピクセル値) の関係を調査した。このようにして作成した検量線とtracer-III-SDでガフクロミック線量計を照射した際の黒化度からtracer-III-SDの照射口での線量を算出した。照射条件は管電圧40 kV、管電流30 μ A、照射時間1分間である。

(5) Am イメージングとの組み合わせによる汚染定量法の確立

本研究で提案している汚染検査スキームは、一般にPu溶液にはAmが混在していることを利用して、まずAmイメージングにより汚染の全容をつかみ、その一部を直接XRF測定してその信号強度とあらかじめ用意しておいた検量線から照射野中に存在するPuの放射能を算出し、Amの分布とPuの分布が等しいという仮定の下で創傷部全体に付着しているPuの放射能を算出するというものである。当初は動物実験によってこの手法を確立する予定だったが、凍結ヒト皮膚が販売されたことにより、不要な動物実験を避けるという意味で凍結ヒト皮膚 (ヒト皮膚切傷モデル) による実験に切り替えた。実験で用いる創傷モデルはXRF装置の照射野よりも大きい必要があるため、Amイメージング装置の検出面の大きさに合わせた45mm×45mmのポリエチレンブロックに凹みを作り、そこに凍結ヒト皮を解凍して凹みにあわせて切り出したものを埋め込んだ。そのヒト皮に、切り傷を模してメスで幅約1 mm、長さ約13 mmの傷をつけた (図5)。傷の状態の詳細はデジタルマイクロスコープで撮像した。創傷部に75 Bq/ μ Lの硝酸Pu溶液 (Pu-239+240: 95%, Am-241: 5%) 10 μ Lを2回滴下したため、滴下したPuの全放射能は1,500 Bqとなる。このとき、プルトニウムが傷口に均等に分布しないよう傷モデルをやや傾けて滴下した。その上からヒト血液10 μ L (株式会社ケー・エー・シー、凍結状態で入手、使用直前に解凍) を傷口に均等に滴下し、乾燥させてからポリエチレンブロック部分に両面テープで6 μ m厚マイラ膜を張って、汚染部位を密封した (ヒト皮膚切傷モデル図6)。

このモデルに対して、小型ガンマカメラ (アクロラド社、MGC1500)を用いてAmイメージング撮像を行った。線源から斜め方向に放出される γ 線の侵

入を防ぐため、1 mm 厚の鉛板（創傷部にあわせて穴をあけたもの）で遮蔽して測定を行った。測定時間 10 分間では明瞭な Am イメージングができなかったため、測定時間を 30 分とした。

Am イメージングにおいて比較的 Pu が多く分布していると想定される部位の XRF 測定を行った。XRF 測定は Tracer-III-SD を用いて行った。測定条件は、管電圧 40 kV、管電流 30 μ A、測定時間は 1 分間である。照射の際に試料を置いた位置をマーキングして、同じ位置に試料と同型に切り出したガフクロミック線量計を置いて 1 分間照射して、照射位置を確認した。得られた XRF スペクトルにおいて Pu L α 線のピークをガウシアンフィッティングして信号強度を求め、(3)で作成した検量線を用いて照射野中の Pu の放射能を求めた。Am イメージング画像とガフクロミック線量計で確認した照射野を重ね合わせ、汚染全量に対する照射野中の汚染量の比を求め、XRF 測定によって求めた照射野中の Pu 放射能から汚染全量を算出し、滴下した 1,500 Bq と比較した。

(6) プルトニウムの検出に適した一次 X 線フィルターの探索

平成 28 年度にはウランの検出に適した一次 X 線フィルターの探索を行ったので、平成 29 年度にはプルトニウムの検出に適した一次 X 線フィルターの探索を行った。試料は、ポリエチレンブロックに針刺し傷に見立てた傷をつけ、そこに 750 Bq の硝酸プルトニウム溶液を滴下し、マイラ膜で密封したものとした。フィルターには銅と亜鉛を用い、厚さは 25, 50, 75, 100, 125 μ m とした。装置は Tracer-III-SD であり、測定条件は管電圧 40kV、管電流 30 μ m、測定時間は 1 時間、測定回数は 4 回である。得られた蛍光 X 線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算出し、

$$MDA = \frac{3 \times 750}{I_{net}} \sqrt{\frac{I_{BG}}{3600}} \quad (3)$$

により検出下限放射能（minimum detectable radioactivity: MDA）を求めた。なお、式(3)における分子の 750 は使用した試料中のプルトニウムが 750 Bqであることを示しており、 I_{net} と I_{BG} はそれぞれ Pu L α 線のネット信号強度とバックグラウンド信号強度(cps)、平方根の中の 3600 は測定時間が 3600 秒であることに由来する。

(7) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発と基礎検討

(5)で示した基本スキームは汚染がイメージング測定をするのに十分な量の Am を含んでいる場合にのみ適用可能である。そこで、純粋な Pu 汚染に適用するために、広照射野蛍光 X 線分析装置を開発してきた。平成 27 年度、平成 28 年度に基礎検討を重ねてきた結果を踏まえ、平成 29 年度には実際の装置製作を行った。装置の製作は、可搬型蛍光 X 線分析装置や可搬型全反射蛍光 X 線分析装置の製作を手掛けてきたアワーズテック株式会社が担った。完成した装置について、完成した装置を用い、50 ppm の劣化ウランを含むエポキシレジンとポリエチレンブロックに直径約 3 mm、深さ約 3 mm の凹みをつけて、そこに 750 Bq の硝酸 Pu 溶液を滴下し、マイラ膜で密封したモデルを試料として用いて試験測定を行った。測定時の管電圧は 40 kV、管電流は 200 μ A、測定時間は 5 分間である。

C. 研究結果

(1) 豚皮に滴下した硝酸 Pu 溶液の皮膚への浸透に関する検討

シミュレーション解析には、²³⁹Pu 溶液滴下後 20 分経過した時点での α 線エネルギースペクトル結果を用いた。

まずは、皮膚への浸透を反映したピークシフトに着目してシミュレーション解析を行った。ピーク

位置が一致する深さに Pu 溶液が一様に分布したと仮定したシミュレーション解析結果を図 7-1 に示す。ピークが一致する皮膚部分に均等分布させただけのシミュレーションでは、スペクトル形状が一致しない事が示された。

そこで、皮膚を深さ方向に 0.5 μ m 厚ずつ分割してそれぞれの厚さに分布する Pu 溶液の割合を変化させてシミュレーションを行った(図 7-2)。²⁴¹Am を含む状態の ²³⁹Pu 溶液でシミュレーションを行った場合(図 7-2a)、²⁴¹Am の計数値を再現することができなかった(図中の円内部分)。そこで、²³⁹Pu 溶液と ²⁴¹Am 溶液での検出量には差があることを考慮し再解析を行った。再解析では、²⁴¹Am 硝酸溶液単独での実験で得られた滴下後 1 時間のシミュレーション解析分布割合を用いて先に ²⁴¹Am 部分を評価し、残りの部分を ²³⁹Pu として評価し、それぞれを重ね合わせた。その結果、図 7-3b に示すように計測データを再現することができた。

(2) 豚皮及びヒト皮を用いた密封型汚染創傷モデルの作成法の検討

凹み付きポリエチレンブロックにユカタンピッグ皮膚あるいはヒト皮膚を埋め込んで、ユカタンピッグ皮膚では刺し傷に模した傷を、ヒト皮膚では切り傷に模した傷をつけて硝酸 Pu 溶液を滴下し、ポリエチレンブロック部分に両面テープで 6 μ m 厚マイラ膜を張った密封試料を作成した。Pu や Am から放出される α 粒子は 6 μ m 厚マイラ膜を透過できるので、マイラ膜表面に ZnS 型 α サーベイメータを近づけると α 線が計数された。一方、スメア法で表面汚染検査を施したところ、汚染は確認されなかった。作成した試料は冷蔵庫で 10 日間程度保存できるが、その後のスメア検査でも汚染は確認されなかった。

(3) 豚皮出血モデルを用いた Pu 検量線の作成

得られた XRF スペクトルを図 8 に示す。Pu L α 線のピークが Br K β 線、Rb K α 線とともに観測された。これらのピークは独立しているため、別々のピークであるとしてガウシアンフィッティングを行った。得られたフィッティングパラメータから Pu L α 線のネット信号強度を求め、横軸を滴下した Pu の放射能、縦軸をネット信号強度として検量線を作成した(図 9)。

(4) ガフクロミック線量計による線量測定

同一線量照射条件におけるガフクロミック線量計の黒化度は管電圧 30~80kV の範囲でほぼ一定だった。管電圧を 40 kV に固定し、照射時間を変化させて照射したときの黒化度と線量(空気カーマ)の関係を図 10 に示す。黒化度と空気カーマの関係は、およそ 5 次関数でよく近似できる。

$$y = 0.00196x + (-3.1128 \times 10^{-7})x^2 + (2.7985 \times 10^{-11})x^3 + (-9.43325 \times 10^{-16})x^4 + (1.20628 \times 10^{-20})x^5 \quad (4)$$

画像解析によって得られた黒化度(R画像のピクセル値)を式(4)に代入することによって、空気カーマを得ることができる。

Tracer-III-SD で照射したガフクロミック線量計の写真を図 37 に示す。この黒化度を式(4)に代入して得られた空気カーマは 3.1 mGy/cm²/min となった。

(5) Am イメージングとの組み合わせによる汚染定量法の確立

ヒト皮膚切傷モデル、ガフクロミック線量計で確認した照射野、Am イメージング結果を重ねたものを図 12 に示す。硝酸プルトニウム溶液を滴下する際、モデルを少し傾けることで、図 5 の左下側に Pu が多く分布するようにしたが、Am イメージングでもアメリカシウムがその部分に多く分布している

ことが見て取れる。またXRF測定照射野もその部分に一致する。すでに述べたように、測定されたスペクトルを解析して得られたPu L α 線のネット信号強度を図10に示す検量線と照らし合わせることで、照射野中のPuの放射能として1,014 \pm 253 Bqが得られた。また、Amイメージング結果における、全領域での信号強度と照射された部分の信号強度の比は58%であり、これにより、傷口全体のプルトニウム汚染量の推定値として1,763 \pm 440 Bqが得られた。これは、実際の滴下量1,500 Bqと誤差の範囲で一致した。

(6) 広照射野蛍光 X 線分析装置の開発と基礎検討

ウラン汚染エポキシレジン試料とプルトニウム汚染ポリエチレンブロック試料の測定結果から検出下限を求めた。ウラン汚染エポキシレジン試料におけるウランの検出下限は 6.5 mBq、プルトニウム汚染ポリエチレンブロック試料におけるプルトニウムの検出下限は 32 Bq と推定された。プルトニウム汚染ポリエチレンブロック試料ではプルトニウムが直径 3 mm の範囲に収まっているので広照射野であることの利点が生かされていないが、ウラン汚染エポキシレジン試料では測定対象が広いことから良好な検出下限が得られている。

D. 考察

α 線エネルギースペクトルの形状を数値シミュレーション解析することで、核種、溶液の pH による皮膚浸透分布の違いを推定できることが明らかになった。皮膚表面に留まった成分のスペクトル形状への寄与割合は、Pu の場合約 4 割、Am の場合は約 1 割であった。創傷モデルに於いても、皮膚浸透分布は同様と考える。ただし、出血を伴う創傷汚染では、 α 線エネルギースペクトルの形状が更に悪化することを考慮すると、汚染分布状況を詳細にシミュレーション解析することは難しい

事が予想される。

創傷モデルの作成方法が確立したことは今年度の大きな成果である。汚染物をケース（例えばプラスチックシャーレ）に入れてマイラ膜で封をするというモデルは従来から用いられてきたものだが、冷凍皮膚を解凍したものを凹型ポリエチレンブロックに封入するというモデル作成方法は本研究で初めて考案されたものである。ポリエチレンブロックは人体軟組織と比重が近いので、人体ファントム素材として広く用いられてきた。これに凹型のくぼみを作ってそこに皮膚を埋め込むことにより、全体として創傷した人体を模したファントムにすることができた。ケースの中に試料を入れてマイラ膜等で封をした密封試料は、試料とケースの間に空気層ができるので、X線照射に対して人体等価ではない。本研究で考案した方法により作成した試料は、X線照射に対して人体等価である。また、創傷モデルに硝酸Puなどの汚染物質を滴下した場合、そのままでは非密封試料という扱いになるが、ポリエチレンブロック部分に両面テープでマイラ膜を張ることにより、密封試料とすることができた。このモデルは、今後様々な場面で活用しうると考えられる。

このモデルを用い、創傷部Pu汚染をXRF測定した際の検量線を初めて得ることができた。この検量線により、創傷部をXRFした際のPu L α 線のネット信号強度から、Puの放射能を算出できるようになった。

創傷部を直接XRF測定する検査方法は皮膚のX線被ばくを伴う。このため、検査による被ばく量を推定することは、この手法の適用の是非を検討するうえで欠くことができない。これまで、本事業開始前には低エネルギーX線用電離箱により、また、本事業において平成27年度から29年度にかけてはポリマーゲル線量計によりX線照射によ

る皮膚被ばく線量の推定を行うことを試みてきた。しかし、電離箱の場合は、XRF 装置から放出される X 線ビームが細く、電離箱の一部にしか X 線が照射されないうえに、その照射幅が 3 次元的に明らかになっていないため、電離箱全体における X 線に照射された部分の体積の割合が分からず、線量評価は困難であった。ポリマーゲル線量計では、低エネルギー X 線の 3 次元的測定は可能であるが、ケースによって吸収、散乱される X 線の効果を換算するのが困難だった。そこで、平成 29 年度にはガフクロミック線量計を用いた線量評価法の開発に取り組んだ。まず、ガフクロミック線量計が管電圧 40 kV の X 線に対して安定な結果を与えることを確認した。そして、黒化度から空気カーマを得るための検量線を作成し、Tracer-III-SD から放出される X 線による空気カーマが 3.1 mGy/cm^2 であることを示した。この値は胸部 X 線撮影よりは高いが腰椎などの X 線撮影と同程度であり、CT 撮影よりはかなり低くなっている。実際の患者に適用するには、さらなる線量の低下（線量当たりの感度の向上）が望ましい。平成 28 年度までに検討してきた捕集法による推定で非常に重篤な汚染が危惧される場合には、創傷部の直接測定は許容されうると考えられる。

XRF 装置の照射野は直径 8 mm～10 mm 程度であり、事故時に想定されるような傷に対して、その全体を測定対象とすることは困難である。そこで本研究では、まず共存する Am イメージングにより汚染分布を明らかにし、その一部を XRF 測定してその部分での Pu 汚染を定量し、イメージングにおける Am 汚染全量と測定部分の Am 汚染量との比を用いて Pu 汚染の全量を求めるというスキームを採用した。本研究において、1,500 Bq の Pu を滴下した試料に対して、XRF 測定部分の汚染量として $1014 \pm 253 \text{ Bq}$ が得られ、Am イメージングで汚

染全量と照射野における汚染量の比が 58%と得られた。これを用いて得られた Pu 汚染全量は $1,763 \pm 440 \text{ Bq}$ であり、滴下量と誤差の範囲で一致した。このことは、今回提案したスキームが、kBq オーダーの創傷部 Pu 汚染に対しては適用可能であることを示している。

E. 結論

今年度の成果としては、(1) Pu 硝酸溶液の皮膚浸透分布を α 線エネルギースペクトルのシミュレーション解析で明らかにした。(2) 凹付きポリエチレンブロックと豚皮、ヒト皮を組み合わせた汚染創傷密封モデル（豚皮モデル、豚皮出血モデル、ヒト皮膚切傷モデル）の作成法を確立した。(3) 豚皮出血モデルを用いて検量線を作成した。(4) Tracer-III-SD から放出される X 線の空気カーマとして $3.1 \text{ mGy/cm}^2/\text{min}$ が得られた。(5) Am イメージングと創傷の一部分の XRF 測定を組み合わせる Pu 汚染の全量を推定する手法を確立した。(6) 広照射野蛍光 X 線分析器を制作した。となっている。本研究により、当初計画していたすべての研究において成果を上げることができた。

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

なし

3. 学会発表

(1) 蛍光 X 線分析による創傷部プルトニウム汚染の定量法, 伊豆本幸恵、福津久美子、松山嗣史、石

井康太、酒井康弘、吉井裕、日本保健物理学会第 50 回研究発表会, 2017 年 6 月、大分市

(2)微量ウランの蛍光 X 線分析を可能とする一次フィルター構成の探索, 石井康太、松山嗣史、伊豆本幸恵、酒井康弘、吉井裕、日本保健物理学会第 50 回研究発表会, 2017 年 6 月、大分市

(3) ウラン汚染針刺し傷モデルに対する蛍光 X 線分析”, 石井康太、松山嗣史、伊豆本幸恵、酒井康弘、吉井裕、第 53 回 X 線分析討論会、2017 年 10 月、徳島市

(4) 創傷部アクチニド汚染のためのイメージング装置の開発状況, 小林進悟、伊豆本幸恵、福津久美子、吉井裕、日本原子力学会 2018 年春の大会, 2018 年 3 月、吹田市

(5) ハンドヘルド蛍光 X 線分析器から放出される X 線の線量測定, 石井康太、伊豆本幸恵、松山嗣史、酒井康弘、山西弘城、稲垣昌代、砂川武義、小栗慶之、吉井裕、日本原子力学会 2018 年春の大会, 2018 年 3 月、吹田市

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

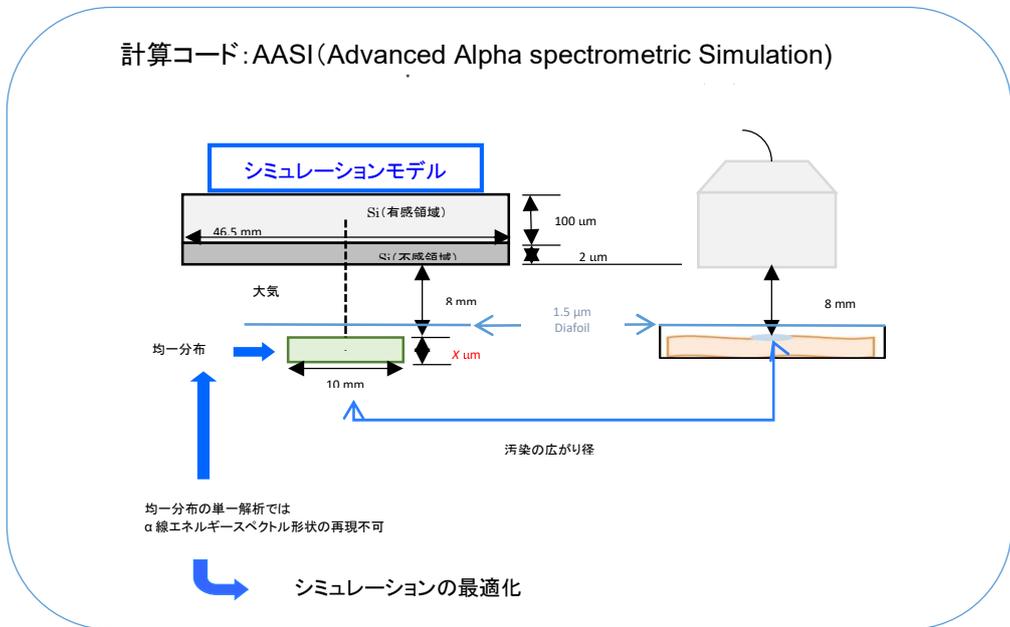


図1 α線エネルギースペクトル形状のシミュレーション解析手順

PEブロックモデル

豚皮モデル

豚皮出血モデル

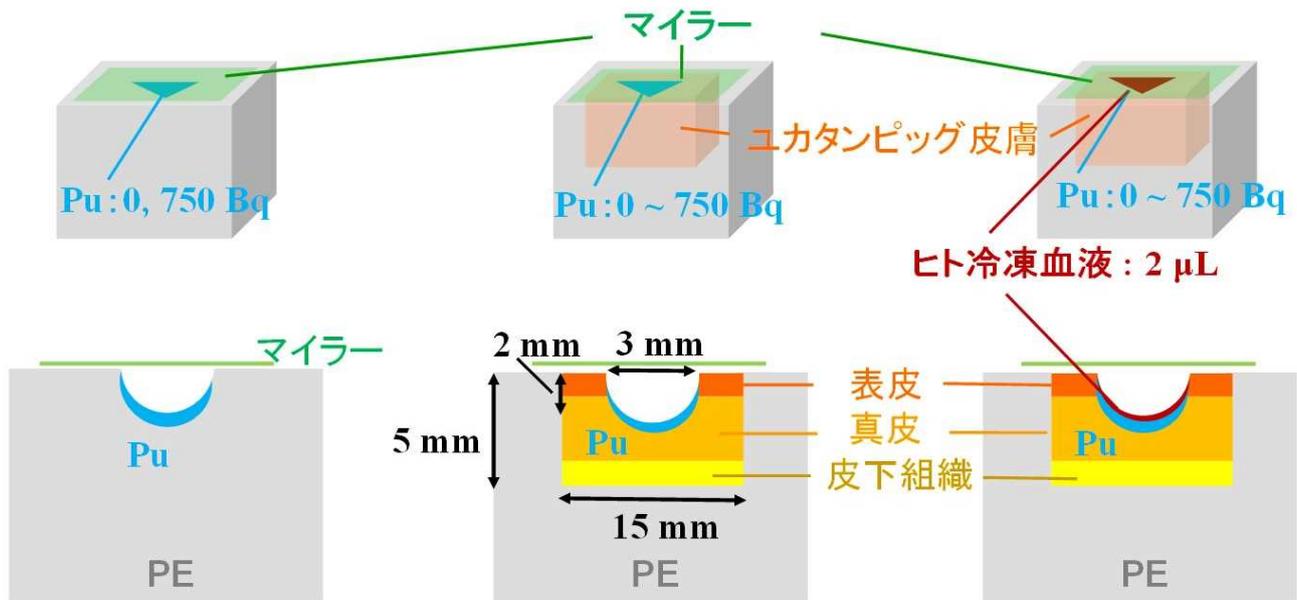


図2 豚皮モデル、豚皮出血モデルの作成法



図3 豚皮モデル

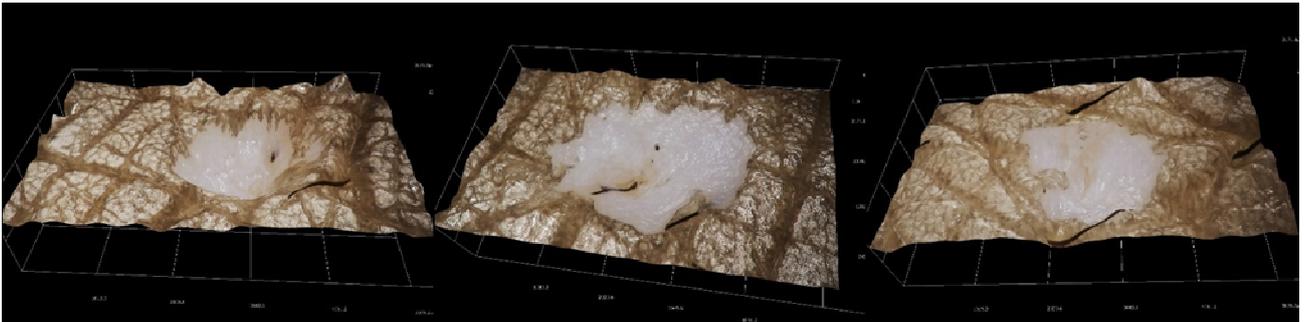


図4 ユカタンpig皮膚に切り傷を模した傷をつけたもののデジタルマイクロスコープ画像



図5 ヒト皮膚に切り傷に模した傷をつけたところ



図6 ヒト皮膚切傷モデル

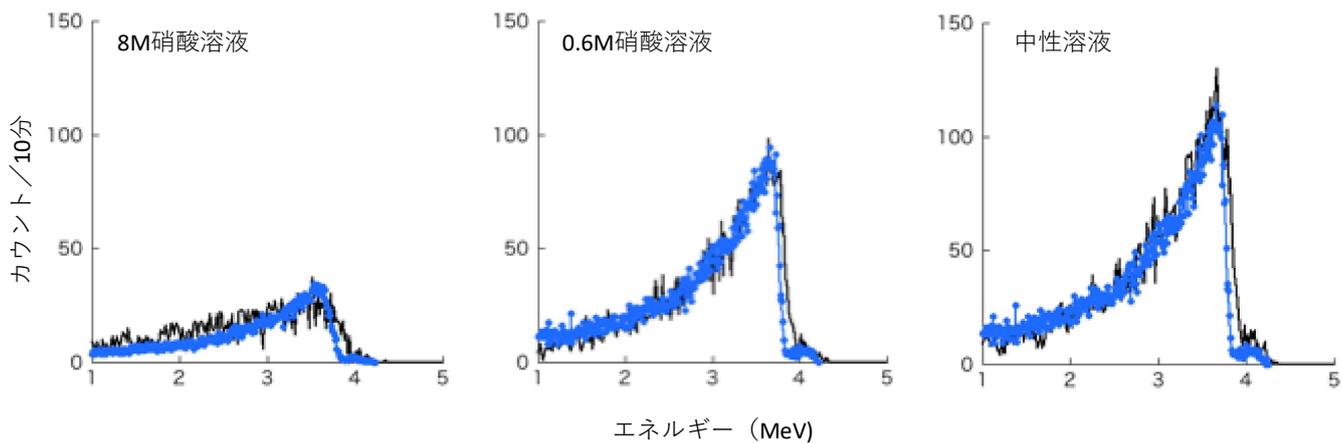


図7-1 エネルギースペクトルのピーク位置に全量分布と仮定したシミュレーション解析
 黒線：計測値、青線：シミュレーション解析値

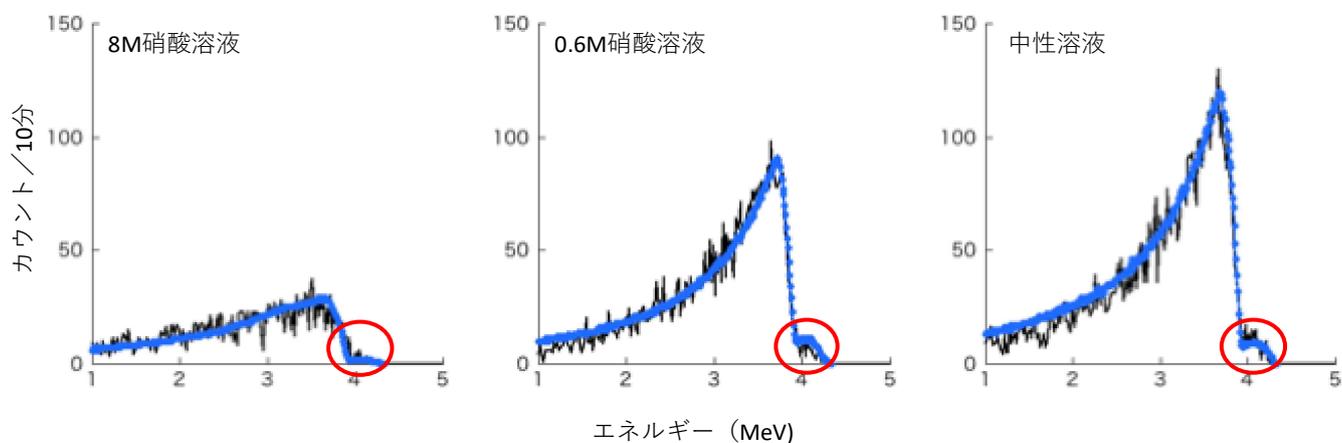


図7-2 浸透分布を深さ別に考慮したシミュレーション解析 (Pu・Am混合)

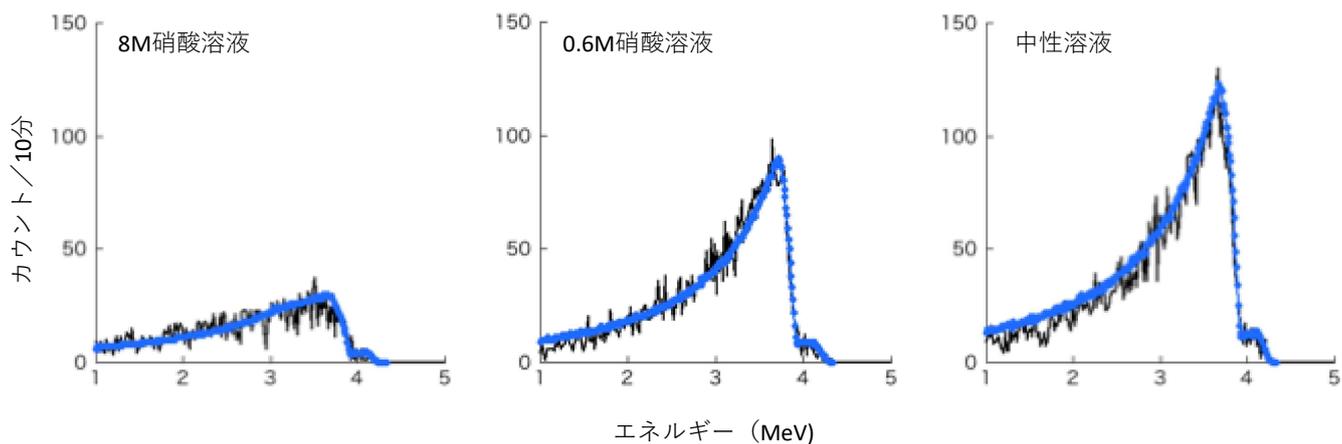


図7-3 浸透分布を深さ別に考慮したシミュレーション解析 (Pu・Am分離)

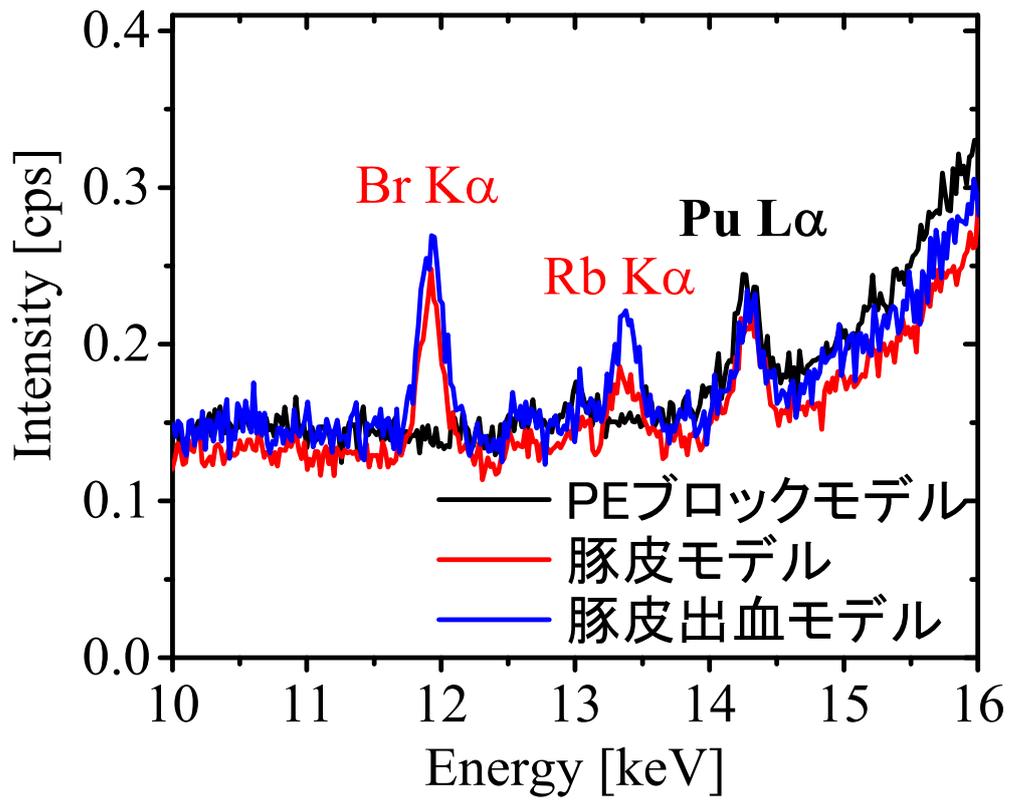


図8 豚皮モデル、豚皮出血モデルのXRFスペクトル

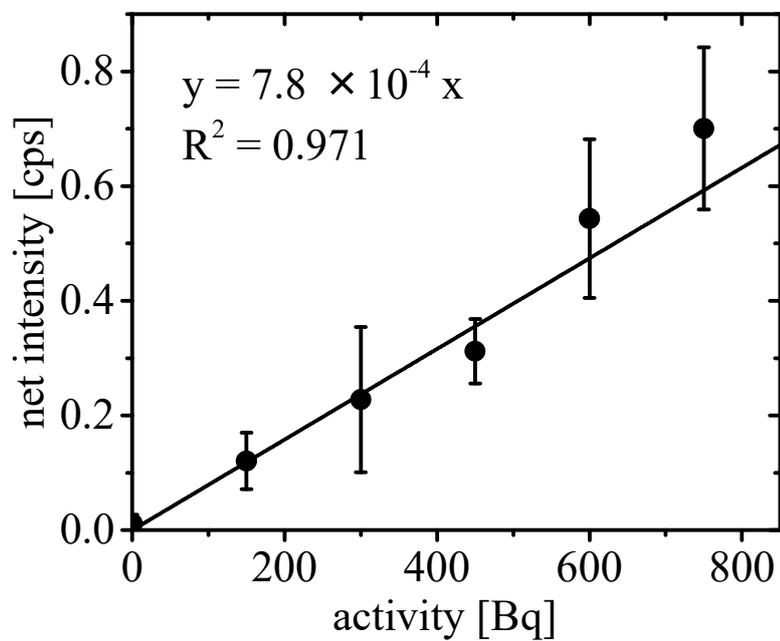


図9 豚皮出血モデルを用いたプルトニウムの検量線

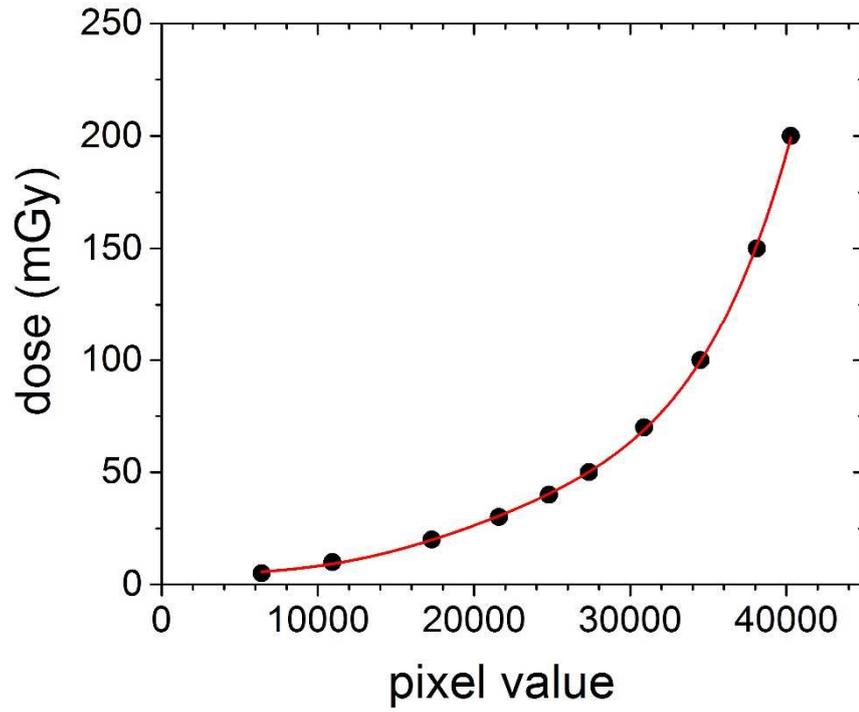


図10 ガフクロミック線量計における検量線

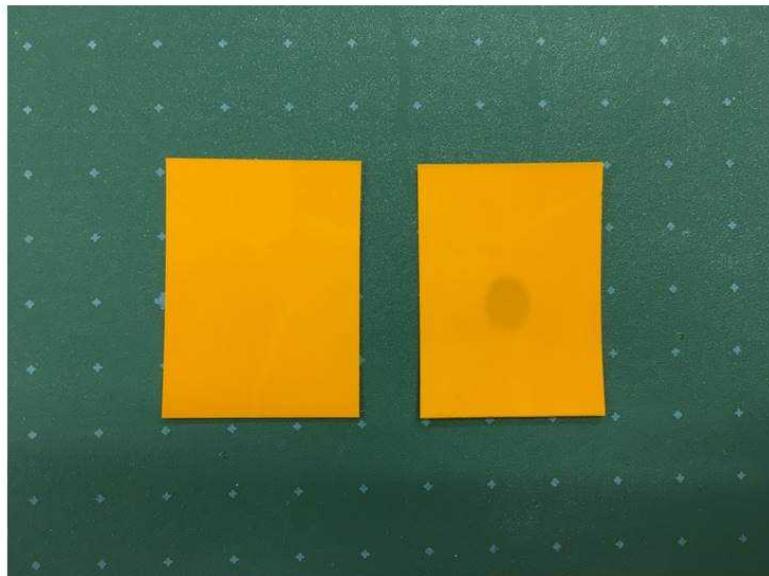


図11 ガフクロミックの写真。未照射のもの（左）とTracer-III-SDで1分間照射したもの（右）



図12 モデルのカメラ画像、Amイメージング、ガフクロミック線量計で確認した照射野の重ね合わせ

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

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