

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～29年度 総合研究報告書

研究代表者 吉井裕

平成30（2018）年 3月

目次

I. 総括研究報告	
創傷部アクチノイド汚染の迅速定量分析法に関する研究 -----	4
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)。この分布と直接法から求めた一部分でのプルトニウム濃度を組み合わせて、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。捕集法に関しては、平成 27 年度に素材や密封方法、測定条件の検討を行い、5.5mm ϕ に切り出したろ紙で汚染した可能性のある血液を捕集してマイラ膜とポリプロピレンフィルムで密封するという実験系を確立した。これに基づき、平成 27 年度中にウランに関する実験を行い、検量線を作成するとともに検出下限として 160 μ Bq を得た、平成 28 年度にはプルトニウムに関する実験を行い、検量線を作成するとともに検出下限として 24 Bq を得た。直接法については、平成 27 年度にラット創傷モデル作成法及び凍結ユカタンピッグを用いた創傷モデル作成法を確立した。その後、凍結ヒト皮膚が発売されたため、不要な動物実験を避ける目的でラットモデルは放棄し、ユカタンピッグ皮膚を用いたモデルで実験系を確立したうえで、最終的な実験はヒト皮膚を用いて行うこととした。また、ポリエチレンブロックに針刺し傷に見立てた直径約 3 mm、深さ約 3 mm の円錐形の凹みを設け、750 Bq の硝酸プルトニウム溶液($^{239+240}\text{Pu}$:- 95%, ^{241}Am : 5%)を滴下してマイラ膜で密封したた保存性の高いモデル (Pu-PE モデル) を作成した。さらに、同様の方法で 750 Bq の硝酸プルトニウム溶液に加えて、その中のプルトニウムと同質量の劣化ウラン溶液を滴下したモデル (Pu-U-PE モデル)、750 Bq の硝酸プルトニウム

溶液に含まれるアメリシウムと放射能の等しいアメリシウムを含む硝酸アメリシウム溶液を滴下したモデル (Am-PE モデル) も作成した。このモデルは、後述する平成 28 年度の高空間線量率環境下での特性 X 線測定との比較や Am イメージング装置の性能評価に用いたほか、平成 29 年度にはプルトニウムの XRF 測定に適した一次 X 線フィルターの探索にも活用した。また、エポキシレジン (2 液混合型) の中に酢酸ウラニル溶液を混ぜたうえで 20 mm×20 mm×1 mm の枠に流し込んで成型、固化したウラン含有レジンプレートも作成した。これは、すり傷のような広い傷を模したものである。これとポリプロピレン容器に純水を満たした水ファントムを組み合わせ、すり傷を模したモデル (レジンモデル) とした。このモデルは、平成 28 年度にウランの XRF 測定に適した一次 X 線フィルターの探索において使用したほか、平成 29 年度に広照射野蛍光 X 線分析器の性能評価に用いた。ユカタンピッグ皮膚によるモデルでは、凹型ポリエチレンブロックにユカタンピッグ皮膚を埋め込んで、針刺し傷を模した傷をつけて硝酸プルトニウム溶液あるいは硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液を滴下してマイラ膜で密封するモデル (豚皮モデル、豚皮出血モデル) を確立した。平成 29 年度に、豚皮出血モデルを用いて創傷部プルトニウム汚染に対する検量線を作成し、検出下限として 175 Bq を得た。これにより、刺し傷に対しては捕集法と直接法により創傷部プルトニウム汚染を定量することが可能となった。一方、一般に XRF 装置の照射野は直径 10 mm 未満であり、これを超える大きさの切り傷などにおいては、XRF 測定だけでは汚染の全量を把握できない。そこで、本研究では XRF 装置の照射野よりも大きな傷に対し、アメリシウムイメージングと傷の一部分の XRF 測定を組み合わせた汚染検査法を提案している。この手法の検討のため、平成 29 年度後半に、実験用ヒト皮膚に XRF 装置の測定面積よりも大きな切り傷をつけて 1,500 Bq のプルトニウムを含む硝酸プルトニウム溶液と実験用ヒト血液を滴下して密封したモデル (ヒト皮膚切傷モデル) を作成し XRF 測定を行った。その結果、プルトニウム汚染量として 1014 ± 253 Bq が得られた。この値は、この実験で得られたプルトニウムの信号強度と、豚皮出血モデルにおける検量線をもとに算出した。Am イメージングでは、平成 27 年度に Am-241 密封線源によるイメージング装置の評価を行い、平成 28 年度には PE モデルにより装置の評価と信号処理系の開発を行った。そして、平成 29 年度にこの装置を用いた豚皮出血モデルの Am イメージング実験を行った。平成 29 年度後半では、ヒト皮膚切傷モデルのイメージングを行い、蛍光 X 線分析装置の測定可能面積中のアメリシウムが、アメリシウム全汚染量の 58 %であるという結果を得た。この結果と、蛍光 X 線分析の測定領域での汚染量 1014 ± 253 Bq から、プルトニウム汚染全量が 1763 ± 440 Bq であると推定された。ヒト皮膚切傷モデル中のプルトニウムの放射能は 1,500 Bq なので、誤差は大きいものの、誤差の範囲で一致した。以上により、本研究の目的は達成されたが、これらの研究に付随して様々な検討及び研究を行った。まず、平成 27 年度には提案する汚染検査法の直接法において最適な XRF 装置を選定し、BRUKER 社の Tracer-III-SD を購入した。α 線計測との比較では、平成 27 年に健常なユカタンピッグ皮膚に硝酸プルトニウム溶液や硝酸アメリシウム溶液を滴下し、α 線検出効率が酸性度や核種、経過時間に依存することを確認した。平成 28 年度には刺し傷モデル、切り傷モデル、角質除去モデルにおいて α 線検出効率が皮膚の状態に依存することを明らかにした。平成 29 年度にはモンテカルロシミュレーションとの比較を行い、プルトニウムとアメリシウムによって分布深さが異なることを明らかにした。ただし、この相違は α 線計測にとっては

深刻であるが、XRF 測定及び Am イメージングでは問題にならない。既存の創傷部汚染検出法として、 α 線計測の他にもアクチニドの多くが自発的に放出する特性 X 線を薄型ゲルマニウム検出器で検出する汚染検査法が存在する。しかし、ゲルマニウム検出器は XRF 装置に組み込まれているシリコンドリフト検出器よりも厚く、自然放射線の影響を受けやすい。この点において、既存法と XRF 測定を比較するため、平成 28 年度に高空間線量率環境下での特性 X 線測定と XRF 測定を行い、高空間線量率環境下では、特性 X 線測定ではバックグラウンド信号が増大して測定に支障をきたしたのに対し、XRF 測定ではバックグラウンド信号に影響が現れないことを明らかにした。本研究で採用した Tracer-III-SD は装置付属の一次 X 線フィルターの他に、ユーザーが自由にフィルター構成を変更できる機能を有している。そこで、一次 X 線フィルターとして U L α 線や Pu L α 線の周辺でのバックグラウンドを削減しつつ、ウランやプルトニウムの励起光はできるだけ削減しないような一次 X 線フィルターを探索することで、装置付属のフィルターよりも検出下限値を引き下げることが可能であると考えた。そこで、平成 28 年度にウランの分析に最適なフィルター構成の探索を行い、80 μm のニッケル箔が最適であるという結果を得た。平成 29 年度には 100 μm の亜鉛箔がプルトニウムの定量に最適であることを明らかにした。広照射野蛍光 X 線分析装置の開発では、平成 27 年度と平成 28 年度に既存の XRF 装置を用いて基礎検討を行い、薄型コリメータによって広い照射野が実現できることを明らかにした。これに基づき、平成 29 年度に装置を制作し、レジソモデルによってその基本性能を評価した。本研究で提案している直接法では、創傷部の X 線被ばくを伴う。このため、この検査法による皮膚の被ばく線量評価が必須となる。平成 28 年度にはポリマーゲル線量計を用いた評価法について検討したが、低エネルギー X 線に対する評価には困難な点も多く、平成 29 年度にはガフクロミック線量計に切り替えて評価手法を確立した。その結果、tracer-III-SD の照射口における空気カーマとして 3.1 Gy/min/cm² (測定時間 1 分間の場合) が得られた。

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
 大町康 量子科学技術研究開発機構
 (平成28年4月30日付で退職)

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る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 (図 1)。

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 X 線フィルター、試料台、試料から放出される蛍光 X 線を測定しエネルギー分析するための検出器から構成される。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 X 線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 X 線フィルター構成は、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、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。この目的に基づいて、(1) 模擬試料を用いて創傷部から汚染した可能性のある血液を捕集して XRF 分析を行う手法 (捕集法) を開発すること、(2) 創傷部を模した試料を作成して直接 XRF 測定する手法 (直接法) を開発すること、(3) プルトニウムと共存するアメリシウムが放出する γ 線による創傷部イメージングを行うための手法 (アメリシウムイメージング) を開発すること、そして、(4) これらを組み合わせて創傷部

アクチノイド汚染の迅速な検出及び定量のための手法を確立することを行った。また、これに付随して、(5) 本研究に最適なハンドヘルド型蛍光X線分析装置の選定と購入、(6) 創傷モデルに対する α 線計測とXRF測定との比較、(7) 高空間線量率環境下における特性X線測定とXRF測定との比較、(8) 一次X線フィルターの開発、(9) 広照射野蛍光X線分析装置の開発、(10) 検査による被ばく線量の評価法の開発を行った。

B. 研究方法

(1) 捕集法の開発

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、捕集物の汚染の拡大を防いだうえでXRF測定を行う必要がある。そこで、まず、平成27年度に捕集用素材について検討した。

さらに、ウラン試料作成専用フードで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、半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) 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。

平成28年度には、プルトニウムを汚染元素とした実験を行った。まず、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、十分に乾燥させた。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2)。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) 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。

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 はウランまたはプルトニウムの濃度[ppm]、 I_{net} と I_{bg} はそれぞれU $L\alpha$ 線またはPu $L\alpha$ 線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。

(2) 直接法の開発

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(図3)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、ユカタンピッグ皮膚を用いたモデル実験を行うべく、平成27年度に基礎検討を行った。まず、ユカタンピッグ皮膚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で分析した。

また、平成27年度にはプルトニウム創傷汚染を評価するためにラットモデルの作製についても検討した。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、プルトニウム投与量並

びに投与容量プルトニウム投与から解剖までの期間等を検討した。

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、平成28年度に、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ラット等の血液を滴下した後、ポリエチレンブロックの縁の部分に両面テープを貼付しマイラ膜を取り付ける方法を考案した(図4)。

この手法に基づき、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5)。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6)。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 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 Bq/μLなので、それぞれ2, 4, 6, 8, 10 μL滴下したことになる。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 μL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 μLをその上に滴下し、乾燥させたくて、ポリエチレンブロック部分に6 μm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4

0 kV、管電流は30 μA、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 Lα線に加え、皮膚に由来するBr Kα線、Rb Kα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 Lα線の信号強度の関係として検量線を作成した。また、式(2)を用いて検出下限を決定した。

これらの生体材料を使用したモデルは保存性が低い、ポリエチレンブロックに針刺し傷に見立てた直径約3 mm、深さ約3 mmの円錐形の凹みを設け、750 Bqの硝酸プルトニウム溶液(²³⁹⁺²⁴⁰Pu: 95%, ²⁴¹Am: 5%)のみ、750 Bqの硝酸プルトニウム溶液とこれに含まれるプルトニウムと同質量の劣化ウラン溶液、または750 Bqの硝酸プルトニウム溶液に含まれるアメリシウムと放射能の等しいアメリシウムを含む硝酸アメリシウム溶液を滴下し、マイラ膜で密封した保存性の高いモデルを作成した(総称をPEモデルとし、それぞれを特定する際にはPu-PEモデル、Pu-U-PEモデル、Am-Peモデルとする)。ポリエチレンブロックはヒト軟組織と比重が似ており、X線分析において等価であるとみなせるが、実際のユカタンピッグ皮膚には臭素やルビジウムが含まれているという点で異なっている。このモデルは保存性が高いので、基礎検討を行う際に有効である。また、また、2液混合型エポキシレジンの中に100 ppmのウランを含む酢酸ウラニル溶液を混ぜたくて20 mm×20 mm×1 mmの枠に流し込んで成型、固化したウラン含有レジンプレートも作成した。これは、すり傷のような広い傷を模したものである。これとポリプロピレン容器に純水を満たした水ファントムを組み合わせ、すり傷を模したモデル(レジン

モデル)とした。これらの作業はフード内で、半面マスクを着用して行った。

アメリカシウムイメージングと組み合わせ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 45 mm×45 mm のポリエチレンブロックに凹みを作り、そこにヒト皮膚 (DS ファーマバイオメディカル、凍結状態で入手、解凍後使用) を 12 mm × 26 mm に切り出して埋め込んだ。そのヒト皮膚に、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 7)。傷口はデジタルマイクロスコープ RH-2000 (HIROX) で撮像した (図 8)。創傷部に 75 Bq/μL の硝酸プルトニウム溶液 ($^{239+240}\text{Pu}$: 95%, ^{241}Am : 5%) 10 μL 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 μL (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 μm 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 9)。この作業はフード内で、半面マスクを着用して行った。比較的プルトニウム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 μA、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 $L\alpha$ 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、先述の検量線を用いて照射野中のプルトニウムの放射能を求めた。アメリカシウム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、モデル試料全体のアメリカシウム放射能に対する XRF 装置照射野中のアメリカシウム放射能の比を求めた。このアメリカシウム放射能の比と XRF 測定によって求めた照射野中のプルトニウム放射能からモデル試料全体のプルトニウム放射能を算出し、滴下したプルトニウムの放射能 1,500 Bq と比較した。

(3) Am イメージング法の開発

平成 27 年度には、小型ガンマカメラ (アクロラド社、MGC1500、図 10) の ^{241}Am の検出に対する評価を行なった。MGC1500 は有効視野 44.6 mm×44.6 mm で、1024 画素 (32 x 32) をもち、1.4 mm×1.4 mm 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ゲ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) にかけてられ、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 密封線源を設置し、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、検出面に ^{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。

平成 28 年度には放射線管理区域内に MGC1500 を設置して MGC1500 の性能の評価を進めた。線源は Am-PE モデルとした。MGC1500 はあらかじめ標準線源 ^{241}Am (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。また、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、 ^{241}Am 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、 ^{241}Am 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。

平成 29 年度には、ヒト皮創傷モデルに対して、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) で創傷部位以外の部分から放出される γ 線を遮蔽して測定を行った。測定時間 10 分では明瞭なアメリカシウム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。

(4) アメリカシウムイメージングと XRF を組み合わせた汚染全量評価法の開発

ヒト皮膚創傷モデルの写真、ガフクロミック線量計による照射位置像、Am イメージング結果を組み合わせることにより、アメリカシウム汚染全量に対する XRF 照射位置に分布する局所的なアメリカシウム量の比を求め、XRF 測定結果により得られたプルトニウム量とこの比から傷口全体のプルトニウム汚染量を算出した。

(5) 本研究に最適なハンドヘルド型蛍光 X 線分析装置の選定と購入

本法では、直接法においてハンドヘルド型 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 装置のパン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 $L\alpha$ 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 $L\alpha$ 線とこれに隣接する Br $K\beta$ 線、Rb $K\alpha$ 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ないものではない。そこで、平成 27 年度に、10 ppm の U や Rb を含む多元素標準液 (XSTC-13, SPEX) と 4000 ppm の臭素標準液 (和光純薬) の希釈系列を混合して、臭素濃度がそれぞれ 0, 2.5, 5, 10, 20 ppm かつウランおよびルビジウム等の濃度がそれぞれ 9 ppm である混合溶液を調製し、これを直径 5.5 mm に切り出した濾紙小片に 10 μ L 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、ブルカーエイエクセス株式会社である。

(6) 創傷モデルに対する α 線計測と XRF 測定の比較

XRF と α 線計測の比較を行うための予備調査として、平成 27 年度には健康なユカタンピッグ皮膚に、それぞれ約 50 Bq の ^{241}Am 硝酸溶液 (8M, 0.5M)、 ^{241}Am 中性溶液、 ^{239}Pu 硝酸溶液 (8M, 0.6M)、 ^{239}Pu 中性溶液を滴下、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) で、その試料の XRF 分析を行った。

平成 28 年度には、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膚に作成した (図 11)。作成した傷を有するユカタンピッグ皮膚に、それぞれ約 50 Bq の ^{239}Pu 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。

平成 29 年度にはユカタンピッグ皮膚に汚染核種として ^{239}Pu 溶液 (^{241}Am を含む) 又は ^{241}Am 溶液を 10 μ l (約 50 Bq) 滴下し、滴下後経時的に α 線スペクトロサーベイメータ PASS-100DD (株式会社

プロテック)で計測したデータを用い、モンテカルロシミュレーションとの比較を行った。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 μm までの汚染分布を評価した。

(7) 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

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、平成28年度に、事故現場を想定して10 MBqの ^{137}Cs 密封線源を設置することで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、両者のスペクトルを比較した。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、Pu-PEモデルを試料として用いた。一方、XRF測定では、UL α 線とPuL α 線のピークが分離することを確認するため、Pu-U-PEモデルを用いた。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 α 線に絞って照射するモノクロモードを採用した。

(8) 一次X線フィルターの開発

一次X線フィルターとは、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X線フィルターは分析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、まず、平成28年度にXRF装置100FA-T (Ourstex) を使用して一次X線フィルター構成の探索法を検討した。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。試料はレジンモデルとした。一次X線フィルターのベース素材はニッケル箔とし、この厚さを10, 30, 40, 50, 60, 80, 100, 150 μm と変化させてXRF測定を行い、バックグラウンド (BG) の低減とウランの励起光の減衰によるUL α 線信号強度低下の兼ね合いを比較した。

平成29年度には、Tracer-III-SDを用いて、ウラン及びプルトニウムの分析において、検出下限値が最も低くなるフィルター構成の探索を行った。ここで用いた試料は、レジンモデルとPu-PEモデルとした。一次X線フィルターの素材として100FA-Tでのフィルター構成探索で用いたニッケル箔の他、銅箔、亜鉛箔を用い、XRF測定を行い、式(2)によりプルトニウム及びウランの検出下限値を求めた。この値が最も低くなる箔膜を最適な一次X線フィルターとした。

(9) 広照射野蛍光X線分析装置の開発

本研究で提案している基本スキームはイメージング測定をするのに十分な量のアメリカシウムが創傷部に付着している場合にのみ適用可能である。そこで、純粋なプルトニウム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なるため、筐体内壁にX線の散乱を抑える効果のあるカーボングラファイトを貼り付けた。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。これらの結果を踏まえ、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。完成した装置を用い、レジンモデルとPu-PE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。

(10) 検査による被ばく線量評価法の開発

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他、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、厚さ1 mmのプラスチックケースに入れて密封した。しかし、それでも溶存酸素をすべて取り除くことは非常に困難である。そこで、ゲル化前の溶液を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することにより、ビニルモノマー含有率の最適化を行った。。しかし、厚さ1 mm程度のプラスチックケースによる低エネルギーX線の吸収と散乱の影響による信号低下の割合を算出することが困難であり、吸収線量を評価することができなかった。

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一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。

C. 研究結果

(1) 捕集法の開発

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 β 線とRb K α 線が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 α 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 L α 線のピーク強度が増大したが、このピークとBr K β 線及びRb K α 線のピークを完全に分離できず、これらはU L α 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 K β 線、Rb K α 線も含めてU L α 線の信号強度として評価した。U L α 線（Br K β 線、Rb K α 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 L α 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 L α 線（Br K β 線、Rb K α 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12）。検量線の切片（127 cpm）はBr K β 線とRb K α 線の信号強度の積算値である。測定結果から得られたウランの検出下限値は1.9 ppmであり、これを放射能に換算すると160 μ Bqとなる。

プルトニウムを含有しているすべての捕集試料のXRFスペクトルでは、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 L α 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13）。得られたプルトニウムの検出下限放射能は24 Bqだった。

(2) 直接法の開発

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 L α 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Pb L α 線信号強度の関係を求めるには至らなかった。

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 μ L (18.5 kBq/20 μ L)を、インシュリン注射用微量注射筒(マイJECTA)を用いて右腓腹筋に筋肉内投与する。プルトニウム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。プルトニウムバイオアッセイ用に、プルトニウム投与1、2、3日後の糞・尿を回収するとともに、プルトニウム投与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 μ L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(プルトニウムの主な標的臓器・組織)、投与部筋肉を採取し、 ^{239}Pu 投与液に共存する ^{241}Am のゲルマニウム半導体計測による迅速評価を、灰化試料を用いたプルトニウムのバイオアッセイに供する。なお、今回確立した系ではプルトニウム投与3日後の血中プルトニウム濃度は約2 Bq/mLと評価された。

豚皮モデル、豚皮出血モデルにおいて、プルトニウムやアメリカシウムから放出される 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。

得られたXRFスペクトルを図14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

したプルトニウムの放射能、縦軸をネット信号強度として検量線を作成した(図15)。

最後に、ヒト皮膚切傷モデルのXRF測定を行った。このモデルにおける切り傷はTracer-III-SDの測定面積よりも大きい。そこで、切り傷の一部をXRF測定し、図15の検量線を用いて測定範囲におけるプルトニウムの放射能を求めたところ、 1014 ± 253 Bqが得られた。ヒト皮膚切傷モデルのXRF測定後、モデルのポリエチレンブロックと同じ大きさに切り出したガフクロミック線量計を、同じ位置においてX線照射することで、モデル中のどの部位が照射されたかを判別できるようにした。ガフクロミック線量計で測定したXRF測定位置の画像を図19に示す。

(3) Amイメージング法の開発

MGC1500のセンサヘッドの前面90 mmの位置に ^{241}Am 密封線源を設置し、取得したエネルギースペクトルを図16に示す。最も鋭いピークが ^{241}Am の60 keVの γ 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17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 μ Sv/h)でのバックグランド計数率は上記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。

次に、標準線源 ^{241}Am からの60 keV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 γ 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、プルトニウム線源、 ^{241}Am 線源を定量することを試みた。線源を図10のようにMG C1500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、60 keVのピークを分析することで ^{241}Am の放射能を得た。プルトニウム線源、 ^{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60 keVをイメージングすることで得られたプルトニウムの分布を2次元ヒストグラムで表したものを図18に示す。この画像ではプルトニウム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。

ヒト皮膚切傷モデルのAmイメージング画像を図20に示す。

(4) AmイメージングとXRFを組み合わせた汚染全量評価法の開発

ヒト皮膚切傷モデル(図9)、ガフクロミック線量計で確認した照射野(図19)、Amイメージング結果(図20)を重ねたものを図21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21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測定の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 $L\alpha$ 線のネット信号強度を図15に示す検量線と照らし合わせることにより、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。

(5) 本研究に最適なハンドヘルド型蛍光X線分析装置の選定と購入

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XRF分析装置を販売している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UL α 線とRb K α 線、Br K β 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ズ)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、UL 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X線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X線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X線フィルターをユーザーが自由に交換できる一次X線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、ウランやプルトニウムを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X線フィルター構成は明らかになっていない。ウランやプルトニウムのXRF分析に特化した一次X線フィルター構成を探索・適用することで、市販されているハンドヘルド型XRF装置に付属している一次X線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X線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。

(6) 創傷モデルに対する α 線計測とXRF測定の比較

健全なユカタンピッグ皮膚に ^{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22)。皮膚浸透の深さを推定するため、試料から放出される α 線のエネルギースペクトルをシミュレーション解析した結果(図23)、 ^{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0.5 M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24)。

各傷モデルの α 線検出率を図25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全皮膚での検出率、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、健全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(ユカタンピッグでは黒色の表皮)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

26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。

シミュレーション解析には、 ^{239}Pu 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27-1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 μm 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27-2)。 ^{241}Am を含む状態の ^{239}Pu 溶液でシミュレーションを行った場合(図27-2a)、 ^{241}Am 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、 ^{239}Pu 溶液と ^{241}Am 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、 ^{241}Am 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 ^{241}Am 部分を評価し、残りの部分を ^{239}Pu として評価し、それぞれを重ね合わせた。その結果、図27-3bに示すように計測データを再現することができた。

(7) 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

図28にHPGeで測定した特性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 α 、L β 、L γ) のほかに、 ^{241}Am の特性X線 (Np L α 、L β 、L γ) や ^{241}Am のガンマ線 (59.5 keV)、さらには ^{137}Cs の特性X線 (Ba K α 、K β) も観測されている。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のガンマ線と特性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のガンマ線の強度から特性X線の強度を推定して差し引く必要がある。しかし、図28に示すように空間線量率が上昇することで59.5 keVのガンマ線周辺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29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、プルトニウム信号強度推定値が突然上昇している。これは、HPGeが窒息してしまったためである。本研究から、高空間線量率環境下では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30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、U L α とPu L α のピークが完全に分離して観測された。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。

(8) 一次X線フィルターの開発

図31に一次X線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、U L 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、厚さ90 μm のNi箔を一次X線フィルターに使用した場合、信号強度 (右軸) は1/100程度に低下しているが、U L α 線

周辺のバックグラウンドが大きく低減され、バックグラウンド信号強度に対するネット信号強度の割合が増大していた。

一次X線フィルターとして様々な厚さのNi箔およびCu箔を用いて、レジンモデルの測定を行った際の、フィルターの厚さごとに算出したMDLを図32に示す。当初、フィルター厚さはそれぞれ30, 60, 90, 120, 150 μm とてXRF測定を行ったところ、60 μm と90 μm の間に最適解があると予想したため、厚さ70 μm 、80 μm に関しても測定を行った。Ni箔、Cu箔ともに80 μm の時にMDLが最低となり、その値は、それぞれMDL=1.77 ppm (Ni箔)、1.79 ppm (Cu箔)となった。わずかにNi箔の方が低いMDLを与えているが、Cu箔の場合と有意な差はなかった。

同様の方法で、プルトニウムの分析に適した一次X線フィルター構成についても探索し、100 μm 厚の亜鉛箔が最適であるという結果が得られた (図33)。

(9) 広照射野蛍光X線分析装置の開発

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。

これを踏まえ、広照射野蛍光X線分析器を製作した。レジンモデルとPu-PEモデルの測定結果から求めた検出下限はレジンモデル中のウランにおいて6.5 mBq、Pu-PEモデルにおけるプルトニウムにおいて32 Bqと推定された。Pu-PEモデル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せていないが、レジンモデル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。

(10) 検査による被ばく線量評価法の開発

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図34に、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）と黒化度の関係を図35に示す。空気カーマと黒化度の関係は、およそ5次関数でよく近似できる。しかし、横軸を空気カーマとし、縦軸を黒化度として5次関数フィッティングを行うと、黒化度から空気カーマを得る際に5次方程式を解くことになってしまう。そこで、図36では横軸を黒化度、縦軸を空気カーマとしている。このカーブについても5次関数でよく近似できる。

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

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(3)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(3)に代入して得られた空気カーマは3.1 mGy/cm²/minとなった。

D. 考察

本研究の成果に基づき、創傷部アクチニド汚染迅速定量分析法として、以下の手法を提案する。

アクチニド取り扱い施設で事故が発生し、創傷部がアクチニドに汚染されている可能性がある場合、まず創傷部の血液を5.5mm φに切り出したろ紙で捕集し、マイラ膜とポリプロピレンシートで密封してXRF測定する。このとき、ウラン汚染に対しては検出下限160 μBq、プルトニウム汚染に対しては検出下限24 Bq程度での測定が可能である。この検出下限は、装置を改良することでさらに向上することが期待される。本研究において、一次X線フィルターを最適化することで検出感度をさらに向上させ

ることができることが明らかとなった。Tracer-III-SDとSEA1100ではX線管のターゲットが異なるので、単純にTracer-III-SDでプルトニウムを測定する際の最適解である100 μmの亜鉛箔を適用すればよいというものではないが、今回行ったような手法でウランやプルトニウムの検出に適した一次X線フィルターを探索することができる。なお、当初の計画では捕集法においてもハンドヘルド型XRF装置を用いることとしていたが、捕集法試料が非常に薄く、ハンドヘルド型XRF装置でこれを測定する場合、試料を通り越してX線が漏洩してしまう恐れがある。このため、SEA1100のように卓上型で装置内部に試料を設置し、扉を閉めてからX線を照射する形式のXRF装置の方が適しているという結論に至った。捕集法により創傷部がアクチニドに汚染されていることが確認された場合、針刺し事故のように創傷部の大きさがハンドヘルド型XRF装置の照射野よりも小さければ直接XRF測定して汚染の定量を行う。一方で、切り傷や擦り傷の様に創傷部がXRF装置の照射野よりも多い場合には、まずAmイメージング測定を行う。Amイメージングにおいては、CdTe素子に斜め方向に入射するガンマ線により、本来汚染されていない部分からも信号が得られてしまうという問題を排除するために、傷口の形状に穴をあけた1mm程度の厚さの鉛板でコリメートすることが求められる。しかし、本研究でコリメータ作成に要した時間は3分間程度である。これは、²⁴¹Amが放出するガンマ線のエネルギーが低く、加工しやすい1 mm厚の鉛板で十分コリメートできるためである。ユカタンピッグ皮膚へ硝酸プルトニウム(²³⁹⁺²⁴⁰Pu: 95%, ²⁴¹Am: 5%)を滴下した実験では、プルトニウムが表面から0.5 μmの深さに分布するのに対し、アメリシウムは1.5~2.5 μmの深さに分布していた。この深さの相違はα線計測においては問題となるが、Amイメージングにおける60 keVの

ガンマ線の測定では問題にならない。Amイメージングによって汚染分布を明らかにし、最も汚染されている部位に対して直接蛍光X線分析する。このとき用いるのはハンドヘルド型蛍光X線分析器である。このとき、検出下限はプルトニウムに対して175 Bqほどである。この検出下限についても、一次X線フィルターを含む装置の改良によってさらに向上することが期待される。装置から放出されるX線の位置と広がり、前もってガフクロミック線量計などで確認しておく。このようにして創傷部の一部について蛍光X線分析でプルトニウムを定量できると、Amイメージングにおける汚染の全体分布と蛍光X線分析した部分の汚染の比で除すことによって、創傷部全体の汚染量を算出できる。 ^{241}Am は ^{241}Pu の娘核種であり、わずかでも ^{241}Pu を含んでいれば、プルトニウム試料には ^{241}Am が含まれる。しかし、プルトニウムを精製してから日が浅いなどの理由で ^{241}Am の含有率が極めて低い場合、Amイメージングで汚染分布を確認することが困難になる。そのような場合に対応するために広照射野蛍光X線分析装置を開発した。入射X線が分散するため検出感度は通常のXRF装置に劣るが、広い範囲を直接測定するためには、このような装置を用いる必要がある。直接法は、必然的に皮膚の被ばくを伴う。ガフクロミック線量計で計測した装置の照射口における空気カーマは 3.1 Gy/min/cm^2 であり、実際の測定時間が1分間であることから、これはおよそ 3.1 mSv/cm^2 の被ばく線量に相当する。放射線業務従事者の皮膚の許容線量が 500 mSv/cm^2 であることから考えると、この検査法は許容されうると考えられる。

E. 結論

本研究によって、創傷部アクチニド汚染を迅速に定量するためのスキームを確立することができた。ここで提案したスキームは、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

へ活用されることが期待できる。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。

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 alkalization 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. 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) 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, 福岡市

(3) 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

(4) 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

(5) 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

(6) 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

(7) 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

(8) 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

(9) 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

(10) “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

(11) 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

(12) 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

提案する手法



図1 提案している汚染検査のスキーム

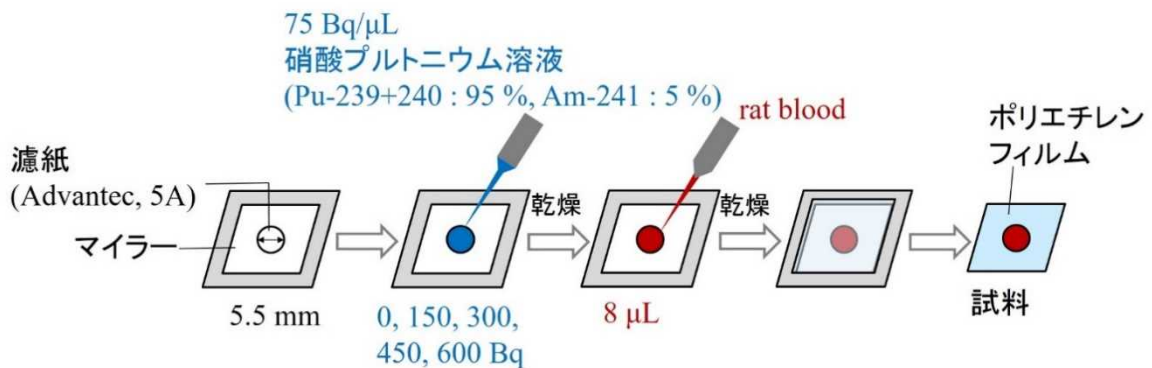


図2 プルトニウム汚染血液捕集法の実験方法



図3 ユカタンピッグ皮膚



図4 凹み付きポリエチレンブロックにユカタンピッグ皮膚を埋め込み、マイラ膜で密封した試料

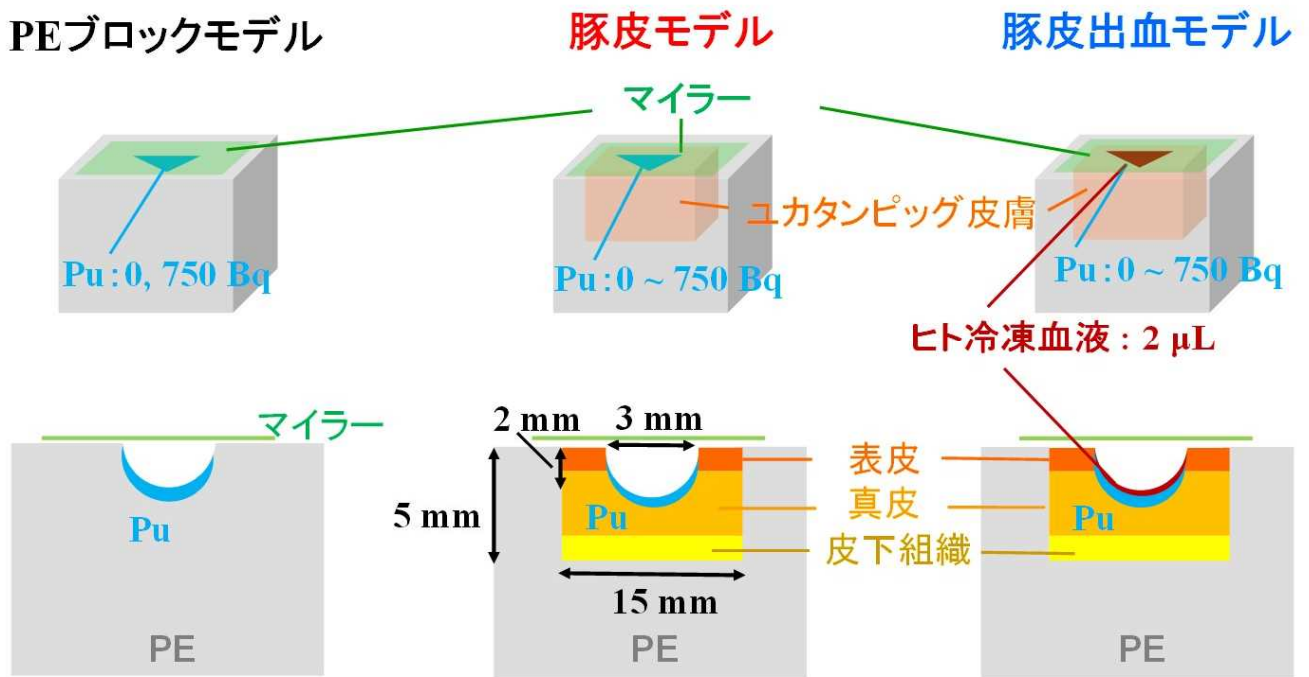


図5 豚皮モデル、豚皮出血モデルの作成法

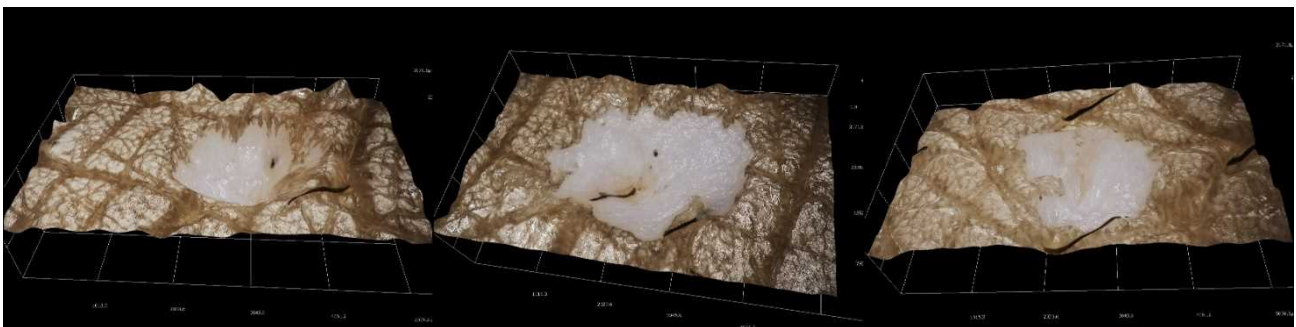


図6 ユカタンピッグ皮膚に切り傷を模した傷をつけたもののデジタルマイクロスコープ画像

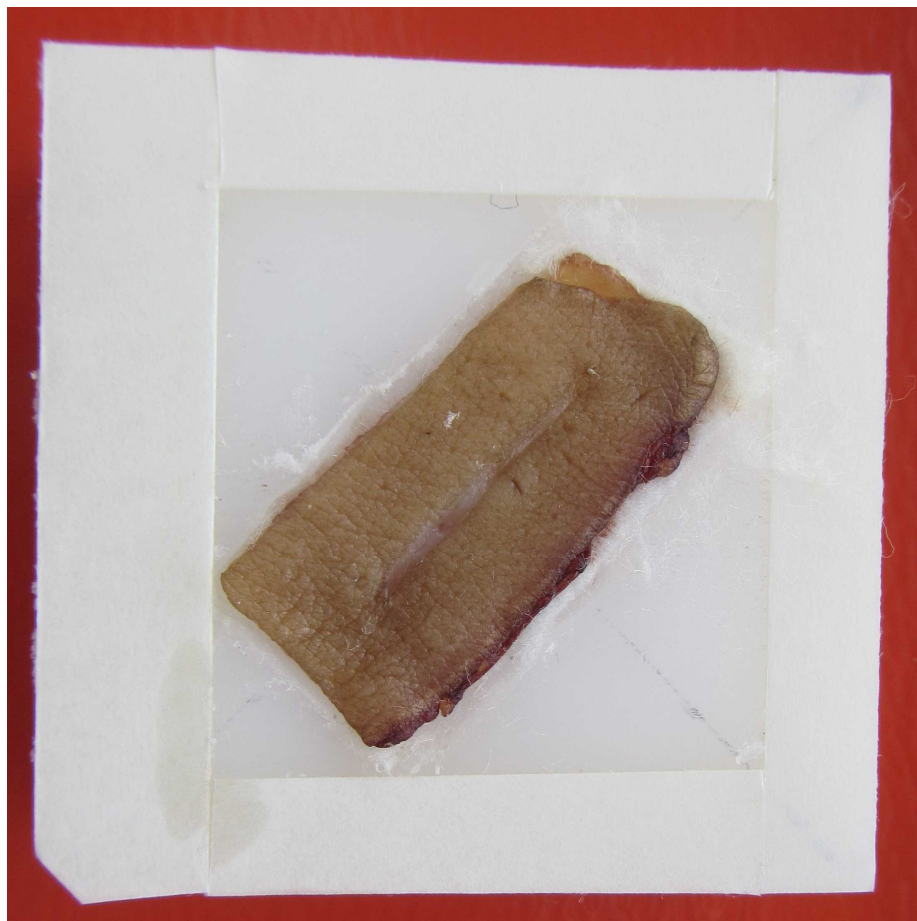


図7 ヒト皮膚に切り傷に模した傷をつけたところ

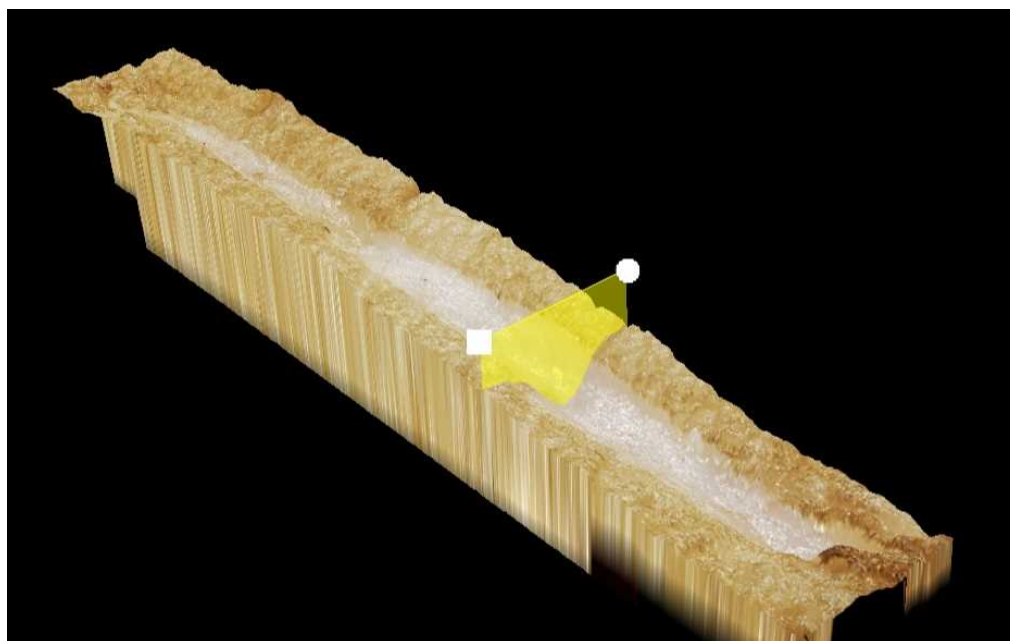


図8 切り傷部分のデジタルマイクロスコープによる3D画像



図9 ヒト皮膚切傷モデル



図10 小型ガンマカメラ（上部にポリエチレンブロック試料が置かれている）

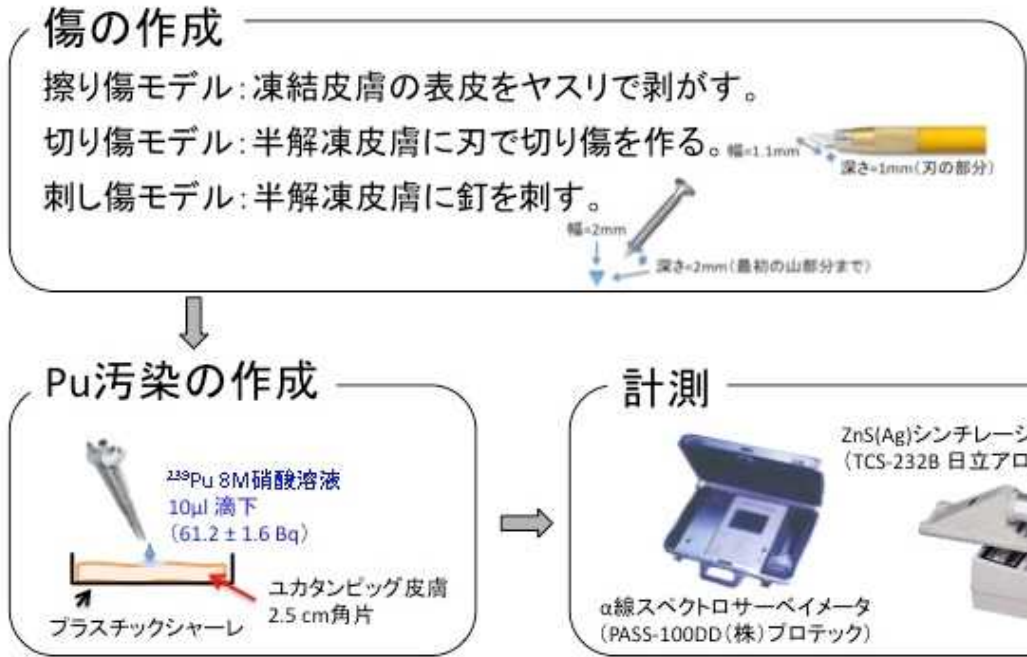


図11 傷モデル皮膚のPu汚染実験手順

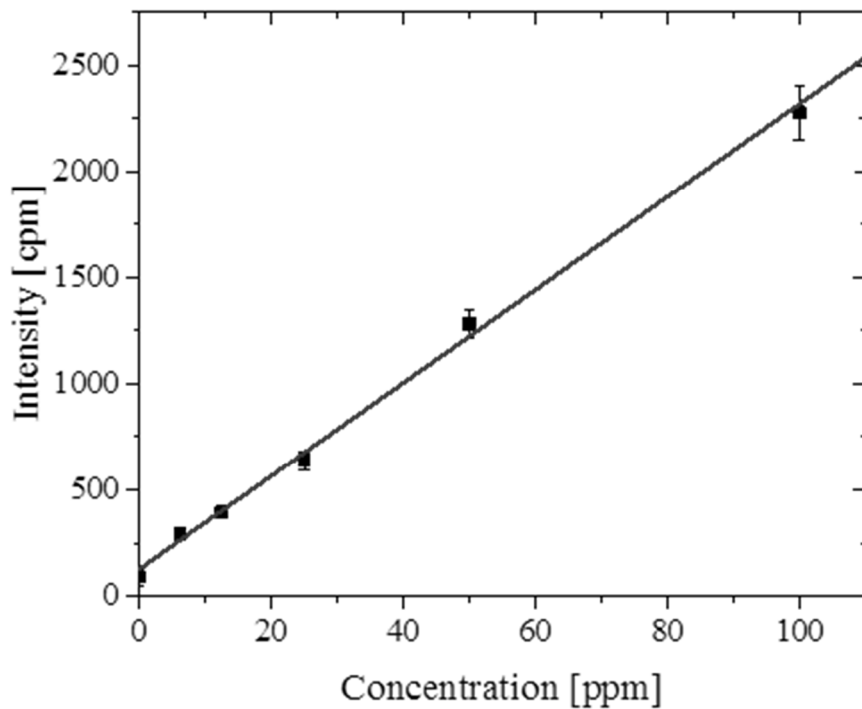


図12 劣化ウラン含有血液の捕集法による検量線

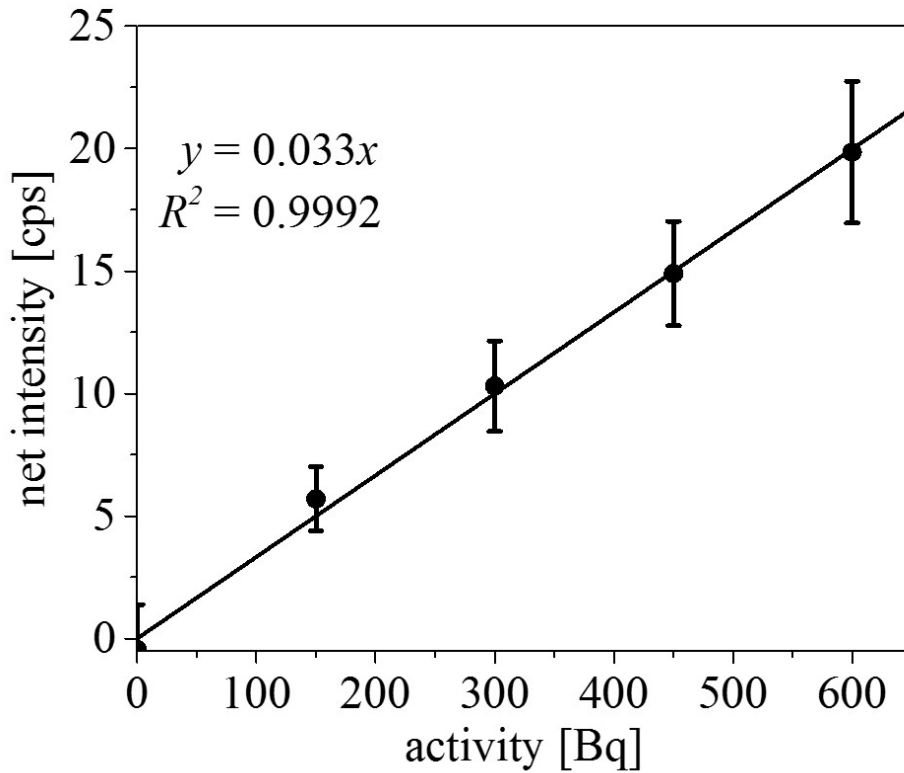


図13 プルトニウム汚染血液の捕集法による検量線

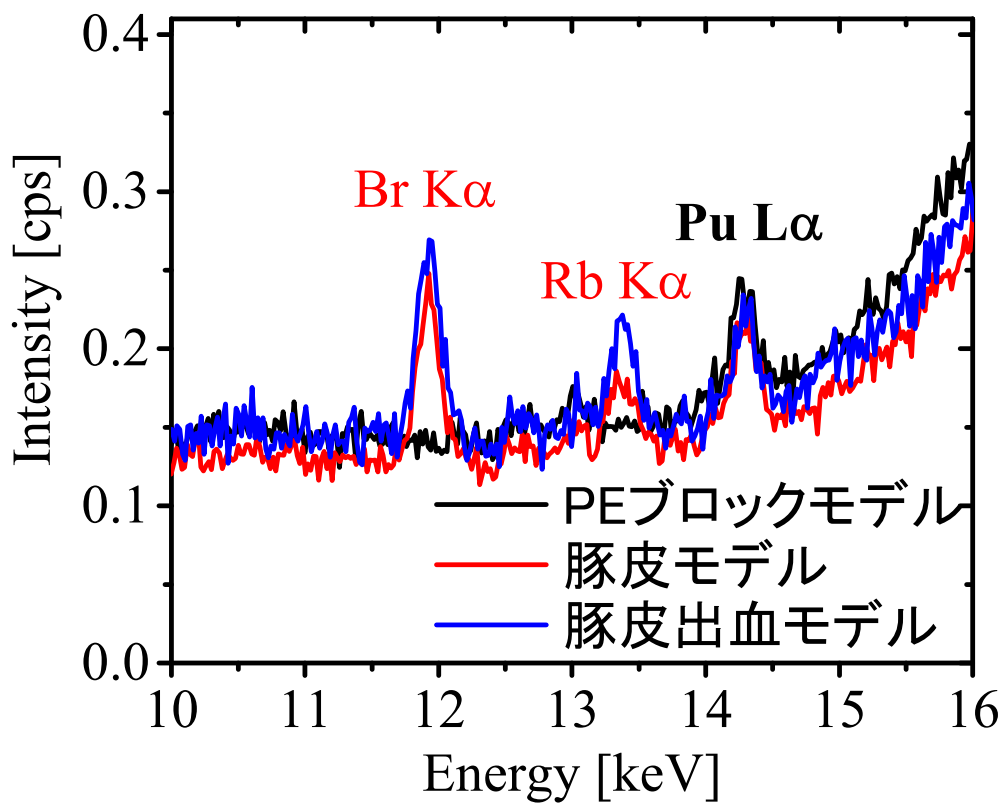


図14 豚皮モデル、豚皮出血モデルのXRFスペクトル

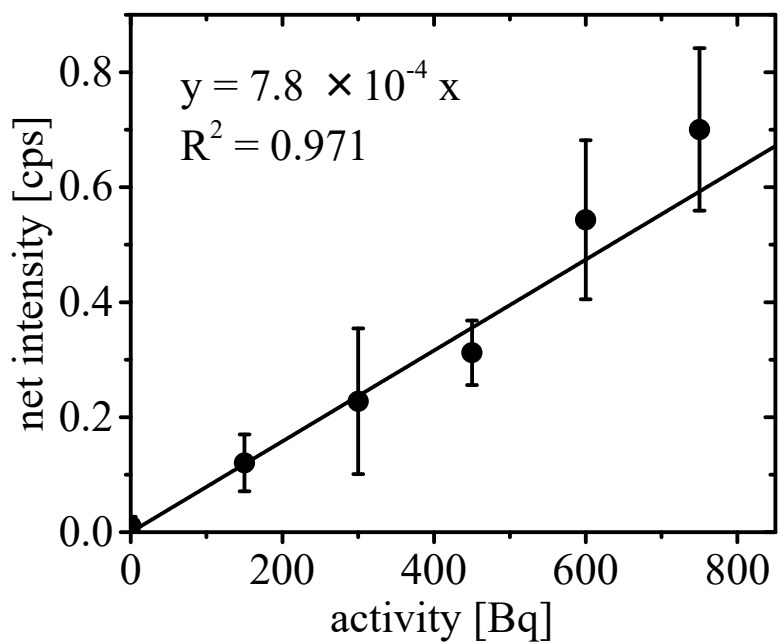


図15 豚皮出血モデルを用いたプルトニウムの検量線

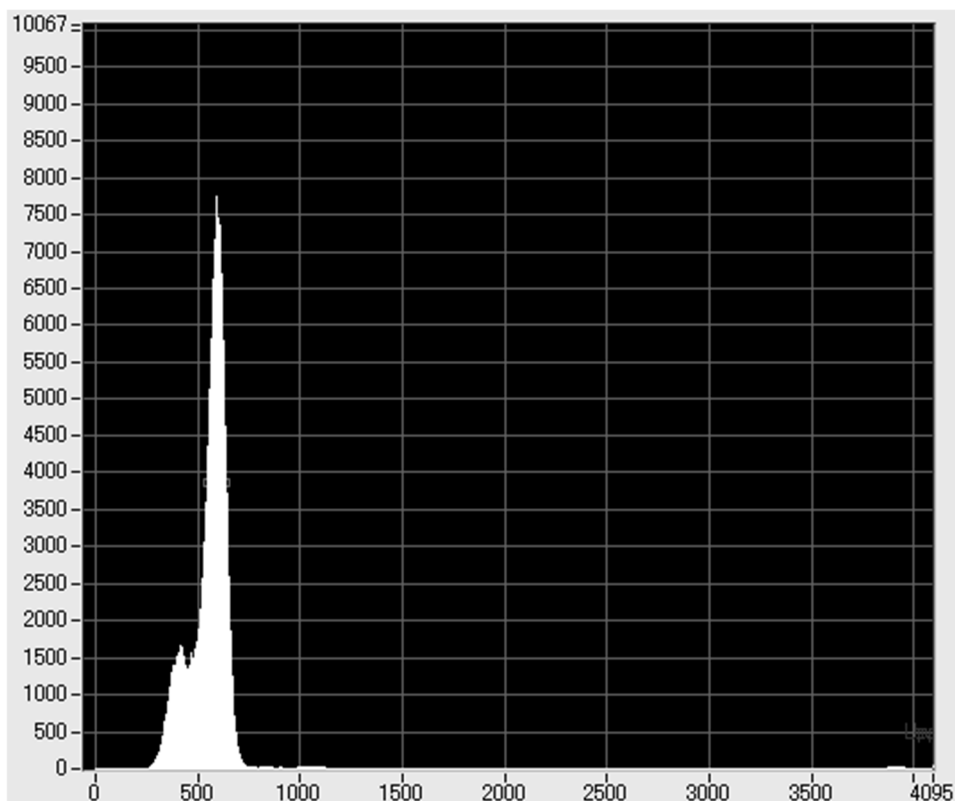


図16 MGC1500で取得したAm241のエネルギースペクトル

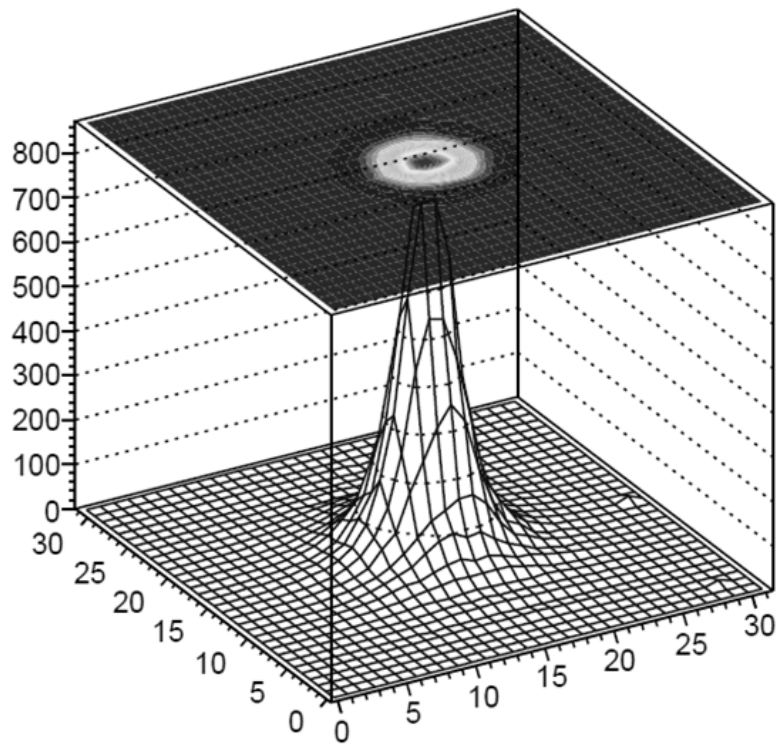


図17 MGC1500で取得したAm²⁴¹のイメージング画像

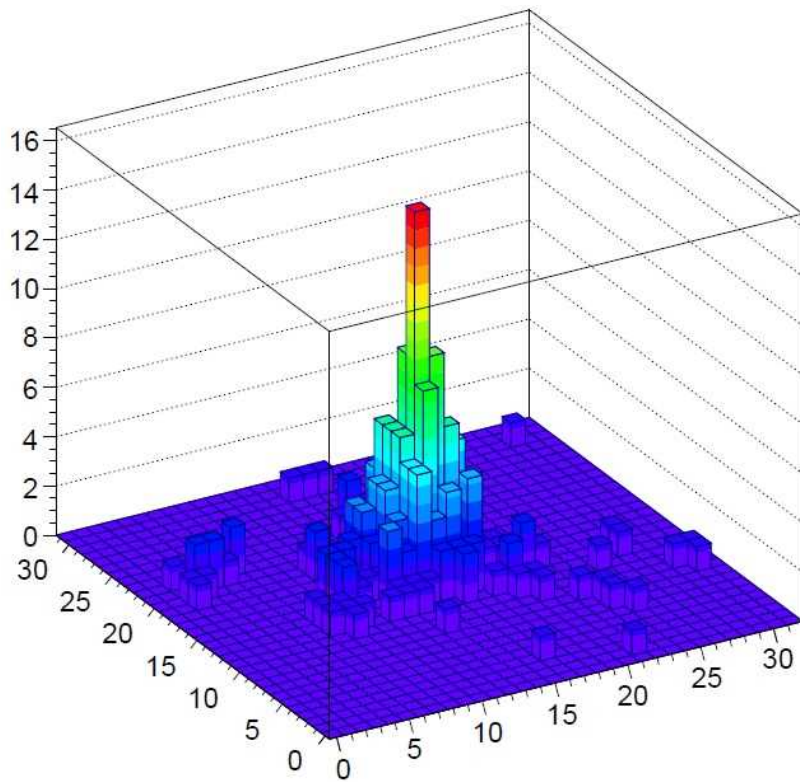


図18 ²⁴¹Am計測から得たプルトニウムの二次元ヒストグラム

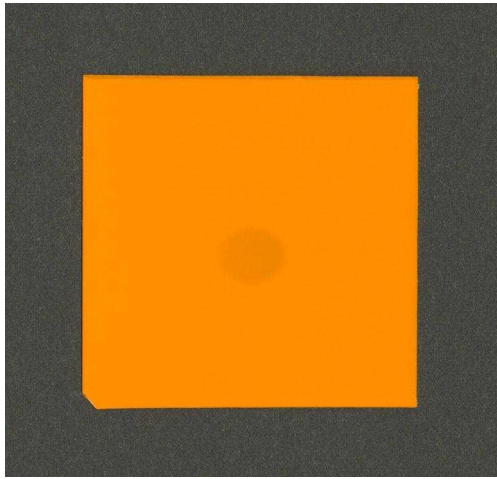


図19 ガフクロミック線量計で測定したTracer-II-SDの照射野

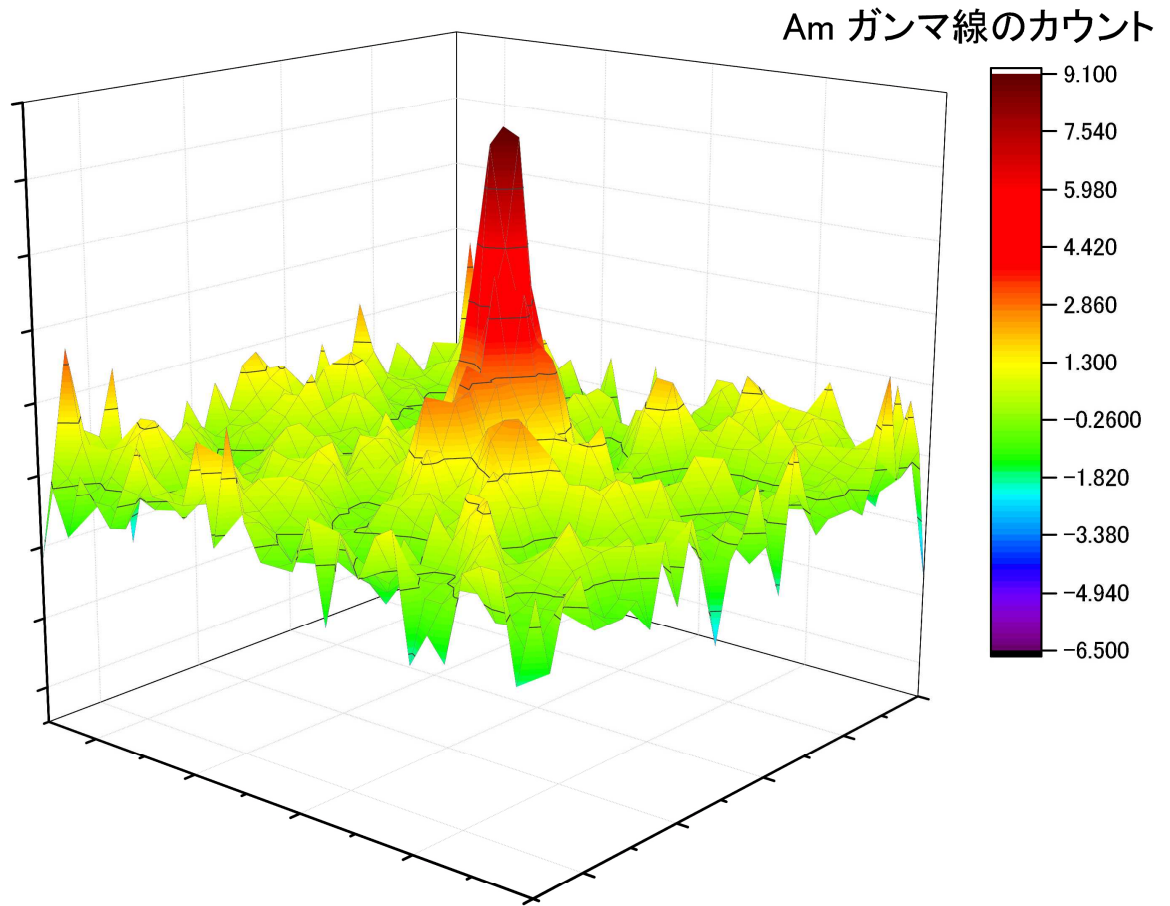


図20 ヒト皮膚切傷モデルに対するAmイメージングの結果



図21 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

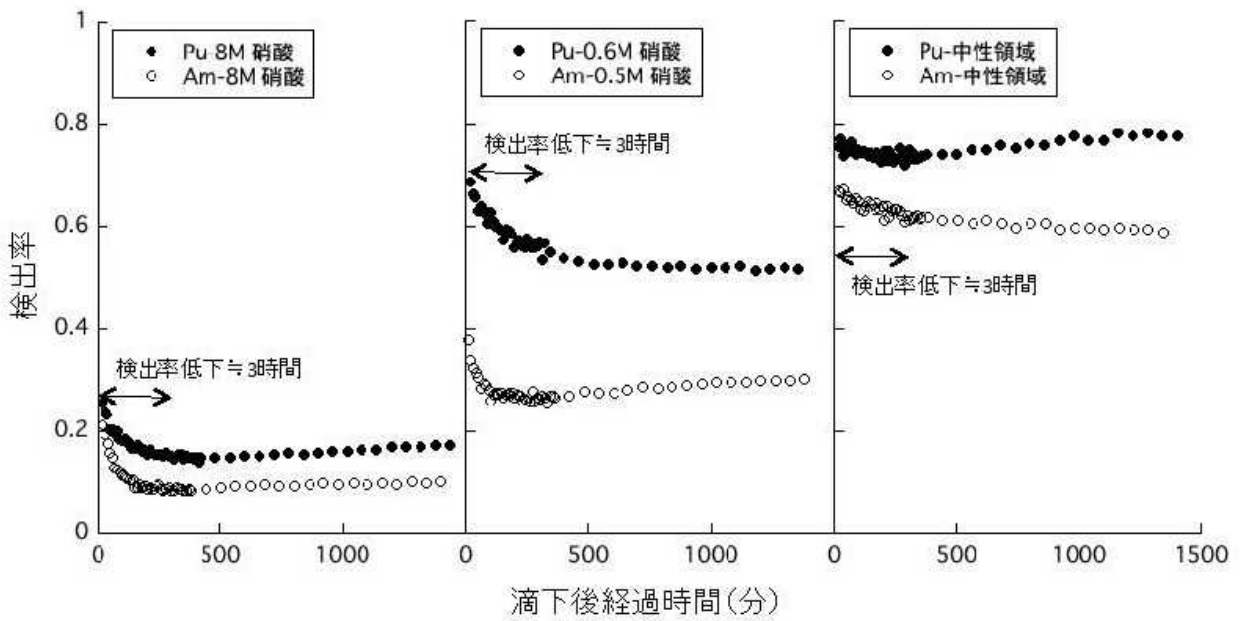


図22 ^{239}Pu と ^{241}Am の酸性度別汚染検出率

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⁾)

¹ T. Siiskonen et al., Nucl. Instr. Meth., A550, 425-434 (2005).

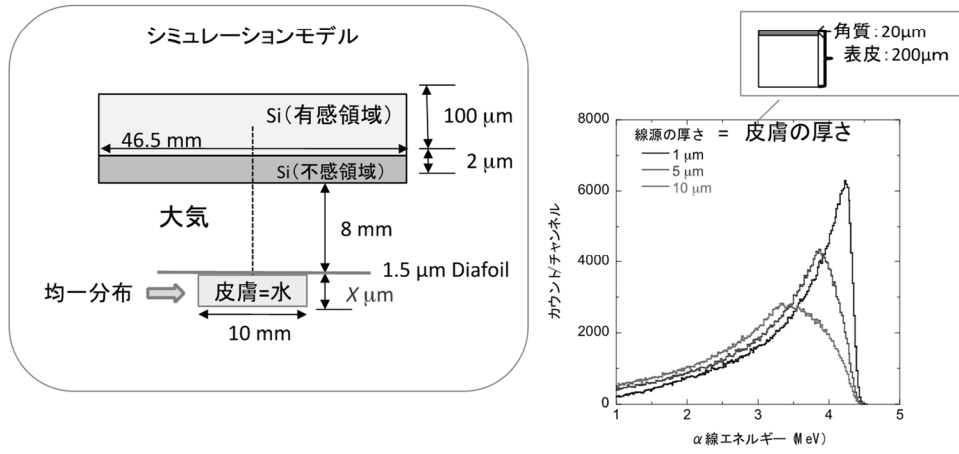


図23 皮膚浸透の深さ方向推定のためのシミュレーション

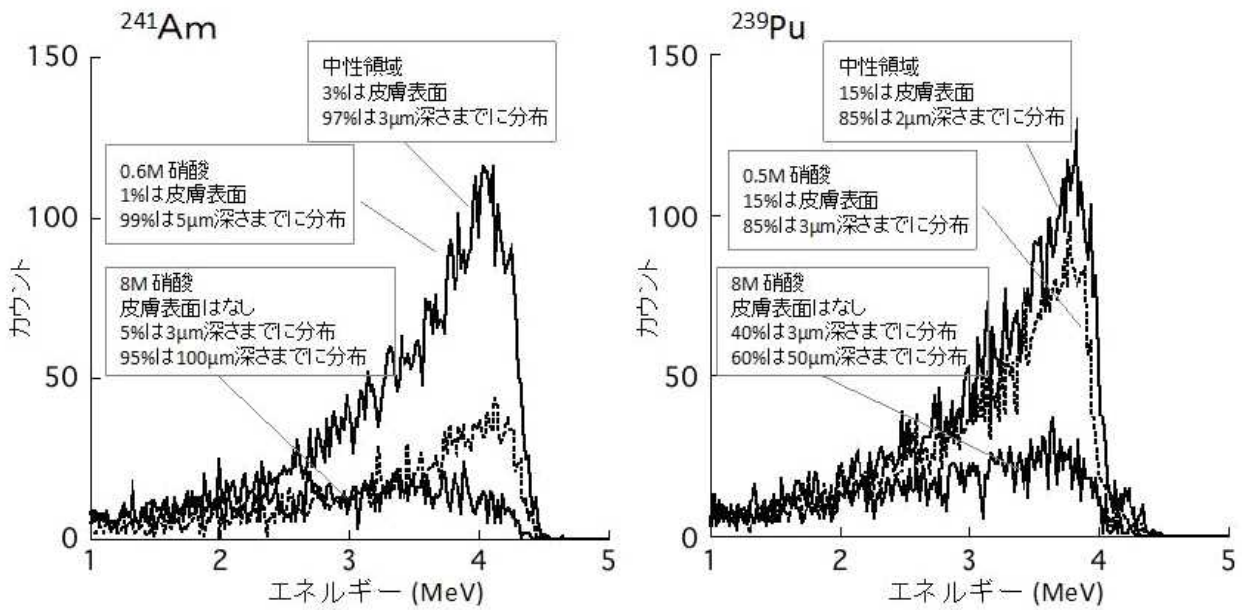


図24 α線スペクトル別シミュレーション結果

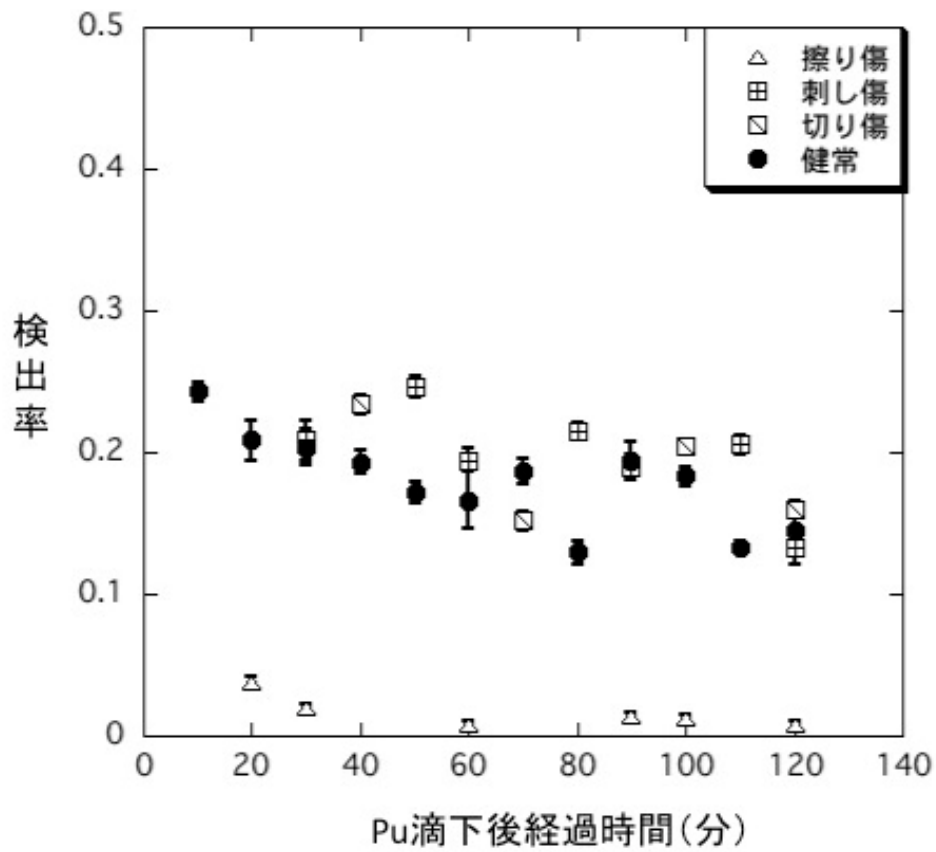


図25 モデルごとのプルトニウム検出率

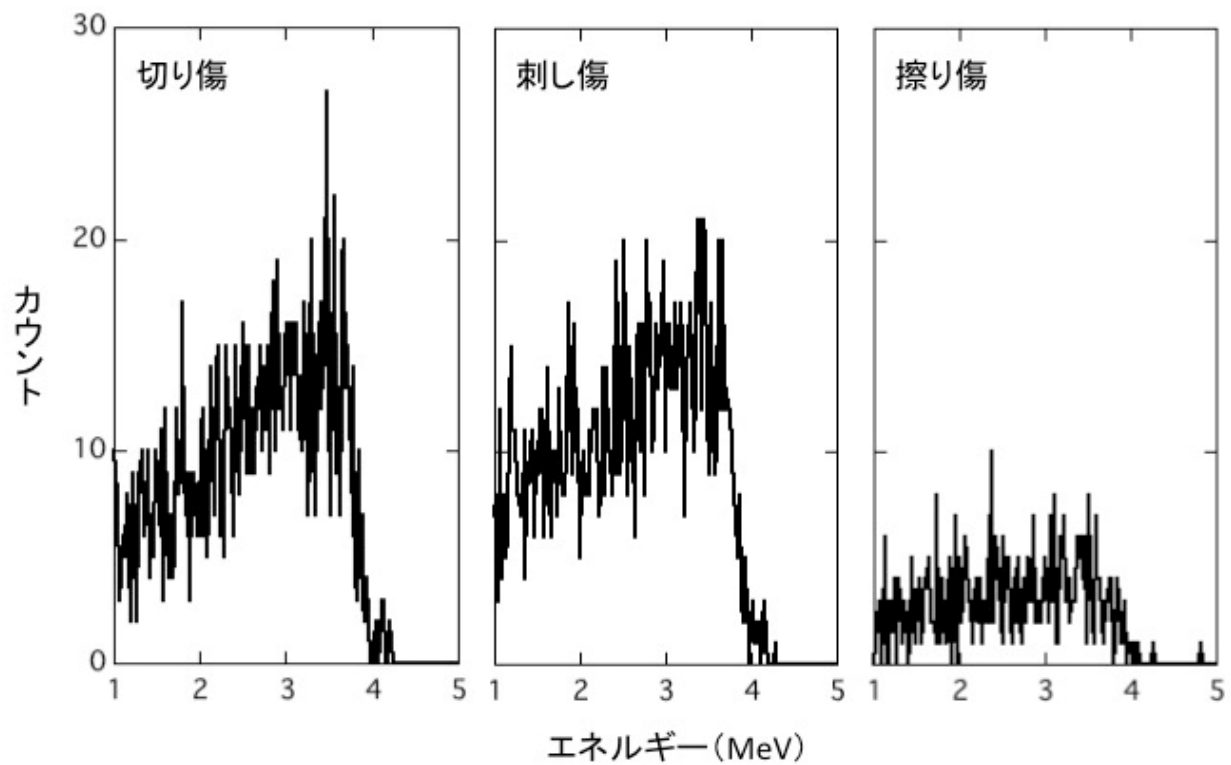


図26 プルトニウム滴下後20分経過時の α 線エネルギースペクトル

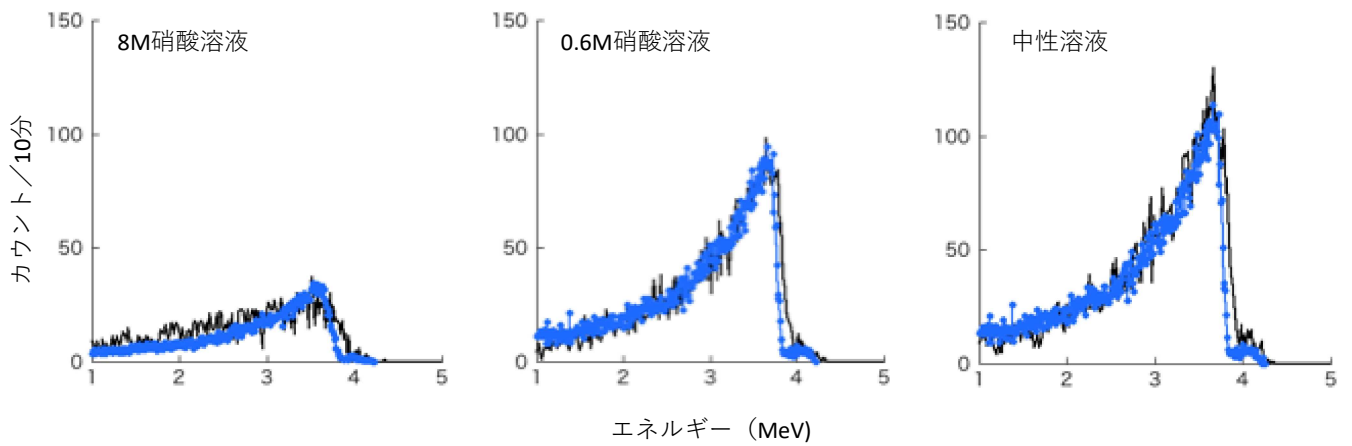


図27-1 エネルギースペクトルのピーク位置に全量分布と仮定したシミュレーション解析
 黒線：計測値、青線：シミュレーション解析値

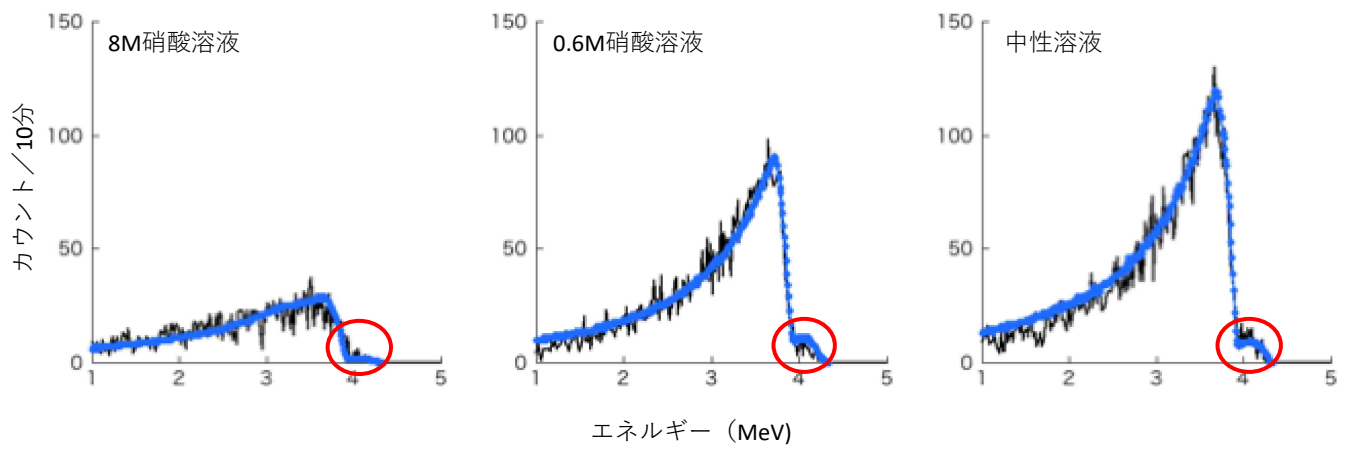


図27-2 浸透分布を深さ別に考慮したシミュレーション解析 (Pu・Am混合)

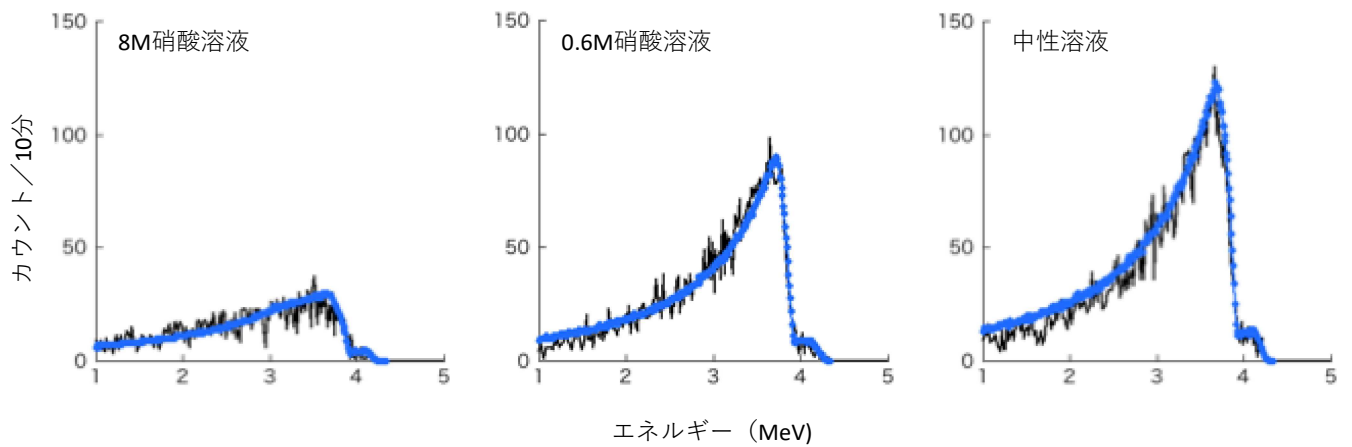


図27-3 浸透分布を深さ別に考慮したシミュレーション解析 (Pu・Am分離)

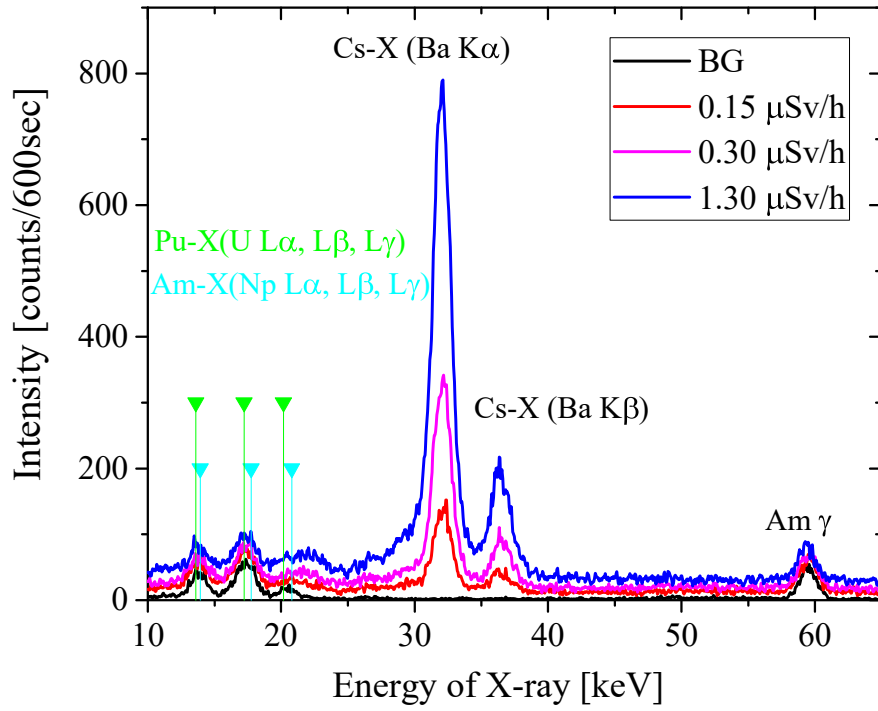


図28 HPGeによる高空間線量率環境下での特性X線測定

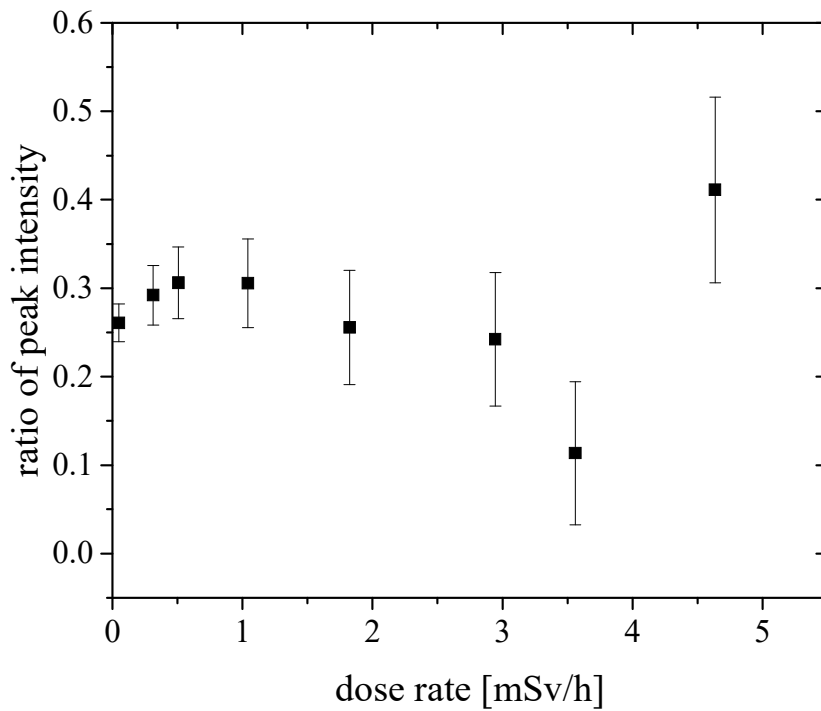


図29 ^{241}Am の信号から推定した ^{239}Pu の信号強度

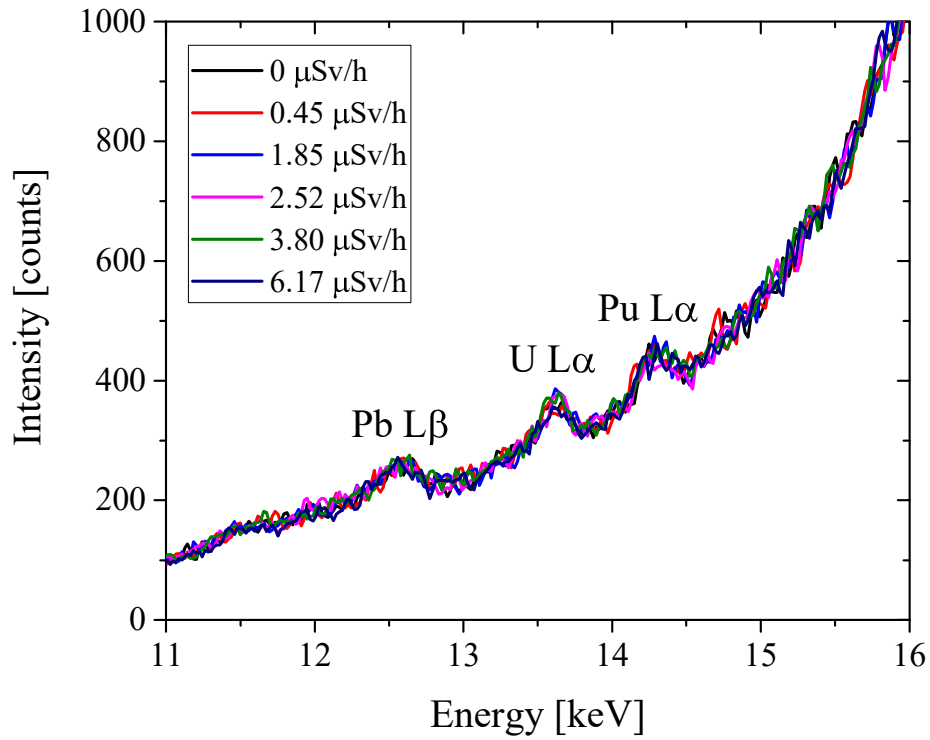


図30 高空間線量率環境下におけるXRFスペクトル

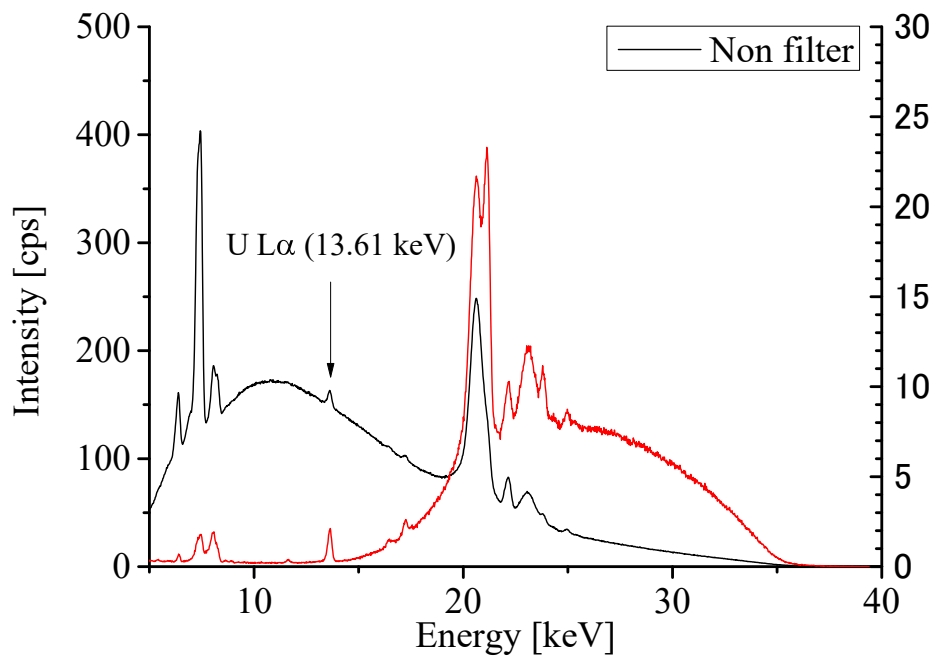


図31 フィルターの有無によるスペクトルの変化

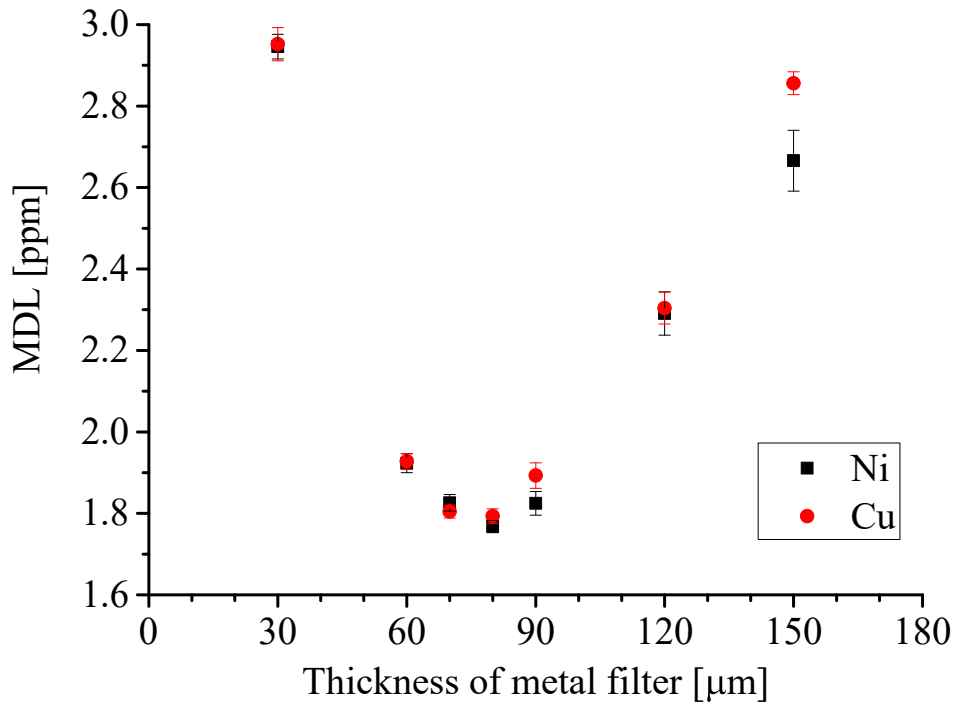


図32 Ni、Cuフィルターの厚さとU L α 線のMDLの関係

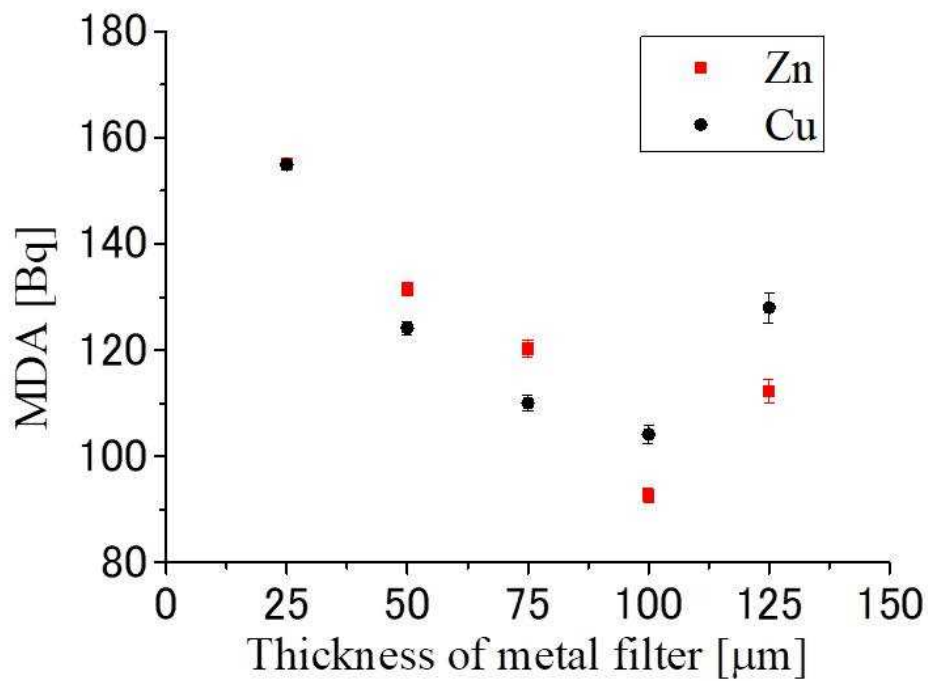


図33 Cu、Znフィルターの厚さとPu L α 線のMDLの関係

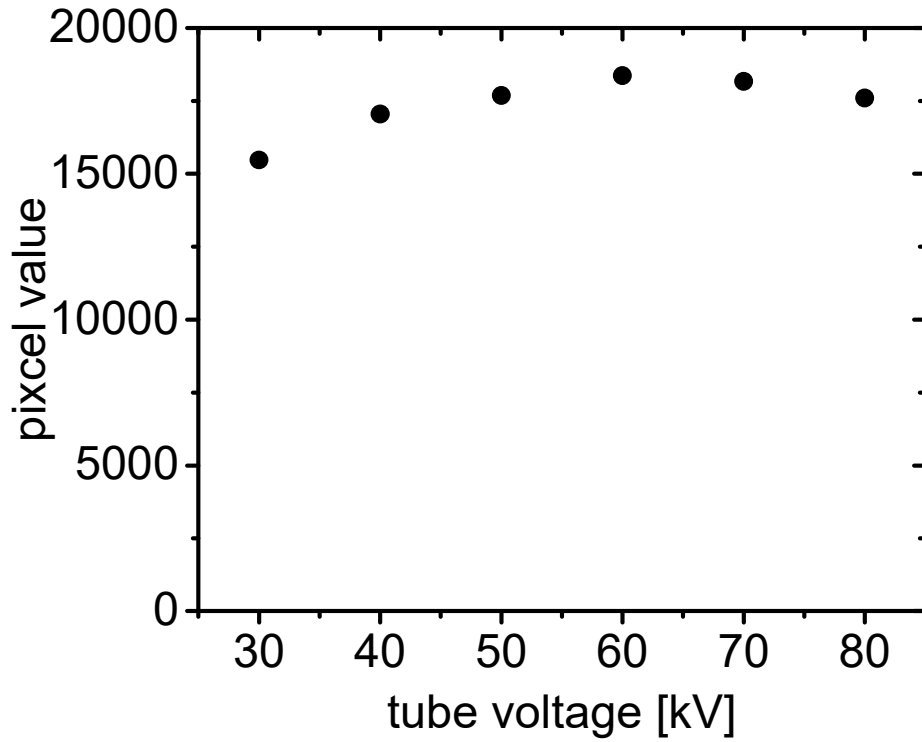


図34 ガフクロミック線量計における管電圧と黒化度の関係

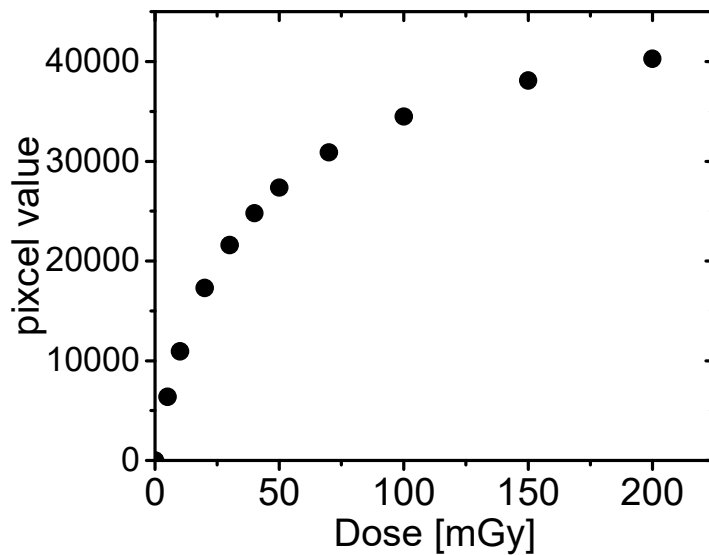


図35 ガフクロミック線量計における線量と黒化度の関係 (管電圧40 kV)

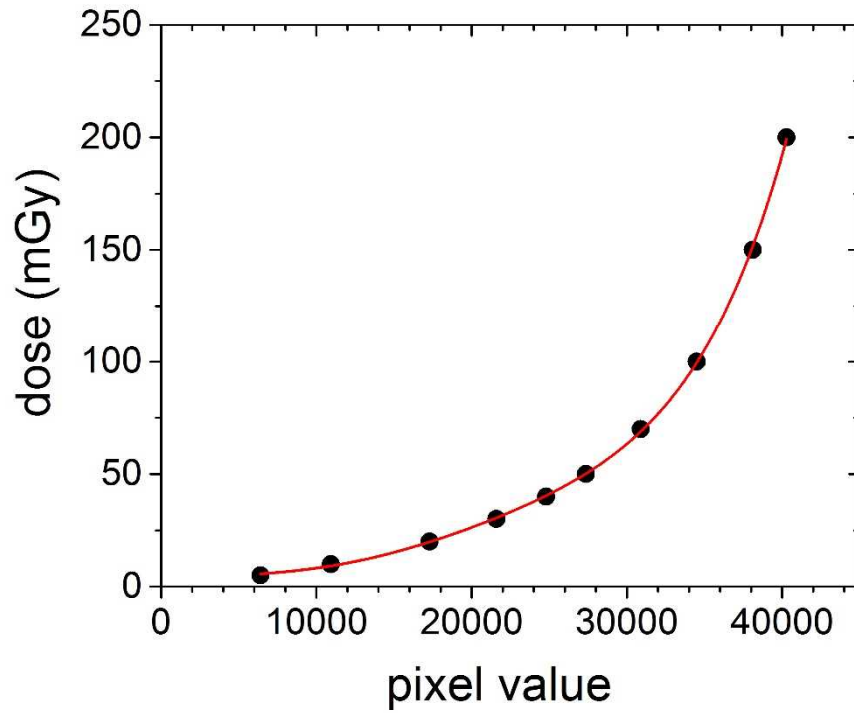


図36 ガフクロミック線量計における検量線

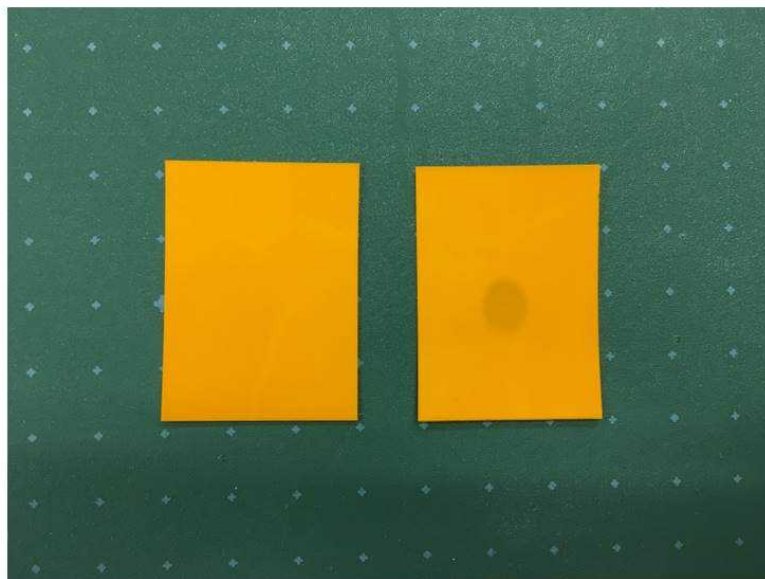


図37 ガフクロミックの写真。未照射のもの（左）とTracer-III-SDで1分間照射したもの（右）

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

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 alkalization 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