

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」  
研究結果の概要（全研究期間）

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）

研究の目的：事故により創傷部が放射性物質で汚染された際、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。しかし、 $\alpha$ 核種による創傷部汚染では、 $\alpha$ 線が血液によって遮蔽されるため検出は困難である。本研究では、創傷部アクチノイド汚染（特にプルトニウム汚染）を想定して、蛍光 X 線 (XRF) 分析法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ノイド汚染の迅速な検出・定量法を提案する。本研究の目的は、上記のスキームに基づいて、(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  $\gamma$  線による創傷部イメージングを行うための手法 (Am 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を可能にする手法を確立することである。

研究結果の概要：(1) 捕集法については、5.5mm $\phi$  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、マイラ膜とポリプロピレンシートで密封して XRF 測定を行う手法を確立した。模擬試料を用いた研究で、プルトニウムの検出下限値として 24 Bq を得た。(2) 直接法については、まず、凹型ポリエチレンブロックの凹みにヒト皮膚を埋め込み、切創を模した傷をつけて硝酸プルトニウムを滴下し、その上からにじみ出た血液を模したヒト血液を滴下し、マイラ膜で密封するモデルを確立した。ここで、ヒト皮膚とヒト血液は凍結状態で試薬として販売されているものである。このモデル試料を用いて、XRF 測定を行い、プルトニウムの検出下限放射能として 175 Bq を得た。(3) Am イメージングでは、既存装置に対して高感度に Am イメージングを行うためのソフトウェア開発を行い、簡便に Am イメージングを行うことのできる手法を確立した。(4) XRF 装置の測定面積よりも広い創傷部位を有するプルトニウム汚染モデル試料を作成し、アメリシウムイメージング、XRF 測定、ガフクロミック線量計で確認した XRF 測定範囲の情報を組み合わせ、創傷全体の汚染量を算出する手法を確立した。この手法により、硝酸プルトニウム滴下量 1500 Bq に対して評価値  $1763 \pm 440$  Bq を得た。また、これらに付随して、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、創傷モデルに対する  $\alpha$  線計測と XRF 測定の比較、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、一次 X 線フィルターの開発、広照射野蛍光 X 線分析装置の開発、検査による被ばく線量評価法の開発を行った。

研究の実施経過：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、実験系を確立した。これに基づき、平成 27 年度中にウランを汚染元素とする実験を行い、平成 28 年度にはプルトニウムを汚染元素とする実験を行った。直接法については、平成 27 年度にユカタンピッグ皮膚による基礎検討を行うとともに、将来の動物実験に備えてラット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。これらの生体材料を使用したモデルは保存性が低いため、ポリエチレンブロックに針刺しによる刺傷を模した直径 3 mm 程の小さな凹みを設け、その凹みに汚染元素として硝酸プルトニウムや酢酸ウランを滴下した保存性の高いモデルも作成した。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ヒ

ト皮膚と同様に臭素やルビジウムが含まれている点で異なっている。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。このモデルは、平成 28 年度に後述する高空間線量率環境下での特性 X 線測定との比較に用いた他、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。ユカタンピッグ皮膚を埋め込んだモデルを用いて平成 29 年度に創傷部プルトニウムに対する検量線を作成し検出下限を決定した。平成 29 年度後半にはヒト皮膚に XRF 装置の測定面積よりも大きな切り傷をつけて硝酸プルトニウム (5%のアメリカシウムを含む) とヒト血液を滴下したモデルを作成し XRF 測定を行った。Am イメージングでは、平成 27 年度に装置の基本性能の評価、平成 28 年度に測定用ソフトウェアの開発、平成 29 年度にこの装置を用いた創傷モデルの Am イメージング実験を行った。平成 29 年度後半では、この Am イメージングとモデルの創傷部のうち一部分の XRF 測定による定量を組み合わせて、汚染の全量を推定するための実験を行った。これにより、本研究で想定していた汚染検査スキームを確立することができた。これらに関連して、まず、平成 27 年度には本研究に最適な XRF 装置の選定と購入を行った。 $\alpha$  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や硝酸アメリカシウムを滴下し、 $\alpha$  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  $\alpha$  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、核種による分布深さの相違を明らかにした。アクチニドの多くは自発的に特性 X 線を放出するので、これを薄型ゲルマニウム半導体検出器で検出する汚染検査法が存在する。これと 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の増大が観測されたのに対して、XRF 測定ではバックブランド信号に影響が現れないことを明らかにした。ウランやプルトニウムの検出を容易にする一次 X 線フィルターの開発では、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  $\mu\text{m}$  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  $\mu\text{m}$  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 年度に基礎検討を行い、平成 29 年度に装置を制作した。本研究で提案している手法では、直接法で創傷部の 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。

#### 結論と今後の展望：

本研究により、蛍光 X 線分析を利用した創傷部アクチニド汚染迅速評価法として、捕集法、直接法、イメージングと組み合わせた直接法の各方法における適用可能範囲を示すことができた。しかし、直接法における被ばく量は、フィルターのさらなる開発により低減が図れるものと考えられる。検査による患部の被ばく量の低減は実用化の可能性を広げるものとなるため、さらなる被ばく量低減化のための検討を進めていくべきである。