



Title	事故時における被曝量の推定 : 3. 毛髪などイオウ含有物を用いた速中性子線量の推定
Author(s)	丸山, 隆司
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1968, 27(10), p. 1354-1360
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/18790">https://hdl.handle.net/11094/18790</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 事故時における被曝量の推定

### 3. 毛髪などイオウ含有物を用いた速中性子線量の推定

放射線医学総合研究所  
物理研究部 (部長 橋詰雅博士)  
丸 山 隆 司

(昭和42年4月4日受付)

#### Radiation Dose Estimation in Criticality Accident

#### 3. A Rapid Estimation of Fast-neutron Dose by Human Hair and Nail

by

Takashi Maruyama and Shoichi Kawamura  
Physics Division, National Institute of Radiological Sciences  
(Chief, Dr. Tadshi Hashizume)

In the case of accidental neutron releases, a rapid fast-neutron dose estimation is required for an appropriate medical treatment to the victims. By modifying the Peterson's method, a procedure is proposed to measure rapidly the induced  $^{32}\text{P}$  activity arising from the  $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$  reaction in human hair or nail. The sulfur and phosphor contents of hair or nail of the Japanese were  $43.7 \pm 4.6$  mg/g and  $0.171 \pm 0.024$  mg/g respectively. The activity in these samples can be measured by a coincidence type low background  $\beta$  ray spectrometer after incinerating without any chemical procedure. The procedure is very rapid comparing with the Peterson's method and only 3 hours are required to estimate 20 rads of neutrons with energies in excess of 2.5 MeV using 0.1 g of hair or nail.

#### 1. 緒 言

ヒトの毛髪にはかなり多量のイオウが含まれている。原子炉の事故などで速中性子に被曝したとき、 $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$  反応で毛髪中に生じた  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定することにより被曝速中性子線量が推定できる。また毛髪は身体表面上に局所的に分布しているので、被曝者の各部位の毛髪中に生じた  $^{32}\text{P}$  の放射能を比較することにより生殖腺など決定臓器の受けた速中性子線量の推定も可能である。

Petersen ら<sup>1)2)</sup>はこの方法で事故時における被曝速中性子線量を推定しているが、彼等の方法は速中性子に被曝した毛髪から  $^{32}\text{P}$  を化学的に分離しておりその操作のために十数時間を要する。放

射線障害治療の立場からすれば、被曝者に適切な医学的処置をほどこすために一刻も早く被曝線量を知ることが必要である。彼等の方法はその点迅速性に欠ける。

本研究では毛髪を燃焼灰化し、あるいは何処処理せず直接 coincidence type low background  $\beta$ -ray spectrometer<sup>3)</sup> で  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定し、迅速に速中性子線量を推定する方法を検討した。また線量推定上重要な因子である毛髪中のイオウとリンの含有量を測定したので報告する。

#### 2. 速中性子線量推定法

人体構成物質のうち、イオウを多量に含み試料採取の容易なのは毛髪、ツメなどである。また携帯品では万年筆にいれたインキなどもかなりのイ

オウを含んでいる。これらの物質中のイオウの含有量がわかれば、物質中に生成された  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定するだけで  $^{32}\text{S}$  (n,p) $^{32}\text{P}$  反応のしきい値エネルギー (2.5MeV) 以上の速中性子線量が推定できる。

中性子線量の線量の表示として first collision doseを用いれば、速中性子線量  $D_{nf}$  は次式で与えられる。

$$\frac{D_{nf}}{a} = \frac{W}{S \cdot N \cdot \lambda} \cdot \frac{\int_{2.5}^{\infty} f(E) \cdot D_0(E) dE}{\int_{2.5}^{\infty} f(E) \cdot \sigma(E) dE} \quad (1)$$

ここで

a : 被曝者から採取した試料 1 g 当りの  $^{32}\text{P}$  の壊変率 (dpm/sample g)

f(E) : 人体に入射したエネルギー E なる中性子の fluence (n/cm<sup>2</sup>/MeV) で、これは事故などで放出される中性子のエネルギー・スペクトルから求められる。

$D_0(E)$  : E なるエネルギーの中性子の fluence 当りの first collision dose (rad/n/cm<sup>2</sup>)

$\sigma(E)$  :  $^{32}\text{S}$  (n,p)  $^{32}\text{P}$  反応の微視的断面積 (cm<sup>2</sup>)

W : イオウ 1 g 分子量 (g)

N : アボガドロ数

S : 試料 1 g 中のイオウの含有量

$\lambda$  :  $^{32}\text{P}$  の崩壊定数 (1/min)

原子炉事故のさい放出される中性子のエネルギー・スペクトルは 2.5MeV 以上では核分裂による中性子のエネルギー・スペクトルと同一と考えられる。 $D_0(E)$  に I.C.R.P. Report の値<sup>4)</sup>を代入し、 $\sigma(E)$  に Liskien ら<sup>5)</sup>の算出した値を用い、さらにエネルギー・スペクトルとして Frye らが計算した結果<sup>6)</sup>を用いた。

$$\frac{\int_{2.5}^{\infty} f(E) \cdot D_0(E) dE}{\int_{2.5}^{\infty} f(E) \cdot \sigma(E) dE} = 2.02 \times 10^{16} \quad (2)$$

(1) 式に  $\lambda = 3.67 \times 10^{-5}$  (1/min),  $N = 6.02 \times 10^{23}$ ,  $W = 32$  g および (2) 式の結果を代入すれば (3) 式となる。

$$\frac{D_{nf}}{a} = 2.92 \times 10^{-2} \cdot \frac{1}{S} \quad (3)$$

したがって、前記物質中のイオウの含有量 S が

あらかじめわかっているならば、各物質中に生成された  $^{32}\text{P}$  の量を測定することにより、(3)式から容易に速中性子線量  $D_{nf}$  (rad) が算出できる。

### 3. イオウとリンの定量

毛髪中にはイオウの他にいろいろな物質が含まれる。特にリンは熱中性子による  $^{31}\text{P}$  (n, $\gamma$ ) $^{32}\text{P}$  反応によつて  $^{32}\text{P}$  を生ずる。しかも、(n, $\gamma$ ) 反応の断面積はイオウの (n,p) 反応断面積にほぼ等しいので、もし毛髪中にリンが多量に含まれていると毛髪中に生成された  $^{32}\text{P}$  の放射能から速中性子線量を推定するのに大きな障害となる。

毛髪中のイオウとリンの含有量は発毛の部位に無関係であることが Petersen ら<sup>1)</sup>によつて報告されている。われわれは毛髪を頭髮で代表させ、日本人の頭髮中のイオウとリンの含有量を種々の方法で定量した。また手足のツメ、万年筆用インキ中のイオウ量も測定した。尚、頭髮、ツメなどの試料の洗滌には中性洗剤、アセトンを用い上皮の破片などによるリンの汚染を除去した。

#### a. 化学的定量法

(i) イオウの定量 頭髮 50mg を過酸化水素 25ml, 6%, アンモニア水 25ml を加えて燃焼フラスコの中で液体窒素で冷却しながら点火燃焼させる。燃焼後よくかきまぜ、水溶液をビーカーに移し、約 10ml に濃縮する。0.05M, フタノール酸水素カリウム緩衝溶液 (pH=4ml) 10 とクロラニール酸バリウム 300mg を加え、水を加えて 100ml とする。10 分間ふりまぜ、ろ過したのち波長 530m $\mu$  で上澄液の吸光度を測定する。標準溶液は硫酸アンモニウム水溶液を用いる。

(ii) リンの定量 頭髮 1 g に硝酸 15cc, 過酸化水素 15cc を加え 4 時間環流する。これをルツボに移し蒸発乾固して燃焼灰化させトリクロール酢酸 10ml にとかす。

2% モリブデン酸アンモニウム溶液 2 ml を試験管にとる。イソブチルアルコール 4 ml と試料 1 ml を加え、10 秒間はげしく振りまぜよく混合させる。次に静止して二相に分離させたのち、イソブチルアルコールを分取し、0.5% アスコルビン酸 2 ml, エチルアルコール 1 ml を加えよくかきま

ぜ、37°Cで30分間加温して発色させる。室温に冷した後波長 690m $\mu$  で吸光度を測定する。リン酸の水溶液は  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  溶液を用いる。

#### b. 放射化分析法によるイオウの定量

##### (i) 頭髪中のイオウの定量

中性子被曝後の頭髪試料中の  $^{32}\text{P}$  を  $\beta$  計測する場合、線源の自己吸収や他の核種の共存をなくするためいろいろな処理方法が考えられる。Petersen らは  $^{32}\text{P}$  をリンモリブデン酸アンモニウムで共沈させ、これを  $\beta$  計測した。(これを沈殿法とよぶ) われわれはできるだけ迅速に頭髪試料中の  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定するため、化学的な処理を経ないで直接灰化して  $\beta$  計測した。(これを灰化法とよぶ)。

沈殿法と灰化法を用い、頭髪を放射化分析した。

灰化法 頭髪試料 1 g を薬包紙につつま、Van de Graaff 加速器を用いた  $^9\text{Be}$  (d, n) $^{10}\text{B}$  反応から生ずる速中性子を照射した。照射時にこれらの試料と同じ位置に厚さ 0.5mm、直径10mmのイオウ片をモニターとしておいた。照射後頭髪試料は電気炉中で 500°C で加熱灰化し、比較校正した coincidence type low background  $\beta$  ray spectrometer で  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定した。一方、イオウ箔は 200°C に加熱した電気炉中で燃焼灰化し、比較校正した  $2\pi$  gas flow counter で  $\beta$  計測した。イオウ箔および頭髪試料中には  $^{32}\text{P}$  以外の放射性核種が生成されないことを  $\gamma$ -ray および  $\beta$ -ray spectrometer でチェックした。

頭髪試料 1 g 中のイオウの含有量 S は次式から算出した。

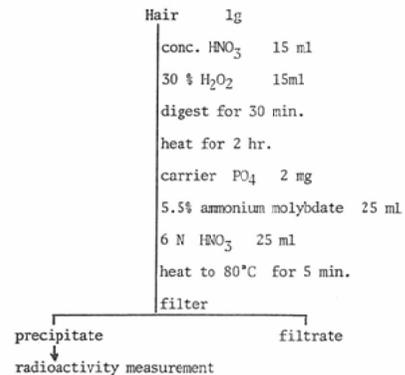
$$S = \frac{P_h}{P_s} \quad (4)$$

ここで、 $P_h$ : 頭髪 1 g 中に生成した  $^{32}\text{P}$  の量 (dpm/hair g),  $P_s$ : イオウ箔 1 g 中の  $^{32}\text{P}$  の放射能 (dpm/sulfur g)

沈殿法: 速中性子照射後の頭髪試料は Petersen らの方法に準じた Fig. 1 のような方法で化学的に処理し、生じた沈殿を灰化法の場合と同様に  $\beta$  計測した。

##### (ii) ツメ、インキ中のイオウの定量

Fig. 1. Schematic diagram of chemical separation.



手足のツメおよび万年筆用青インキ中のイオウの含有量は放射化分析法で測定した。ツメ試料は 0.5mm厚さのカドミウム箔につつま、インキはポリチレン試験管にいれ、頭髪の場合と同じように各試料にイオウ箔をつけて速中性子を照射した。照射後、ツメ試料は電気炉で灰化し、インキは蒸発乾固して試料中に生成された  $^{32}\text{P}$  の放射能を測定した。各試料中のイオウの含有量は (4) 式から算出した。

#### b. 測定結果と考察

一定量の  $^{32}\text{P}$  をつけた頭髪を灰化法および沈殿法で処理し、 $^{32}\text{P}$  の収率を測定した結果それぞれ

Table 1. Sulfur content of human hair

Sample	Chemical analysis	Activation analysis	
		precipitation	incineration
1	47.1mg	45.5mg	46.9mg
2	43.1	39.6	42.9
3	48.8	45.0	49.3
4	...	43.7	43.1
5	46.2	43.2	40.3
6	...	49.1	50.3
7	...	45.4	45.2
8	40.9	41.3	39.3
9	42.5	44.3	43.9
10	43.1	42.1	42.4
11	40.9	41.1	40.3
12	41.1	39.7	43.5
13	...	45.0	43.4
average	43.8	43.5	43.9

Table 2. Sulfur and phosphor content of human hair, nails and ink.

Sample	Number of samples	Sulfur content	Phosphor content
Hair	68	43.6±4.6 mg/g	* mg/g 0.171±0.024
Nail	20	42.0± 4.9	—
Ink	4	4.0± 0.5	—

(\* Number of samples ; 9)

94.6%, 94%であった。

同一頭髪試料中のイオウの含有量を化学定量法、灰化法、沈殿法で測定した結果、第一表の如くであった。異なつた三種類の定量法を用いて測定した結果は非常によく一致した。

したがつて、イオウの定量を行なうにはいずれの方法を用いても結果に差異はないであろう。第二表は放射化分析法で得られた頭髪、ツメ、およびインキ中のイオウの含有量と化学定量法によるリンの含有量を示す。

日本人の毛髪中のイオウの含有量は43.6± 4.6 (mg S/g hair) であり、アメリカ人について測定された結果<sup>1)</sup>では47.7± 5.5 (mg S/g hair) であり両者に多少の差異が認められる。リンの含有量は 0.171± 0.024 (mg P/g hair) であり、イオウの含有量の約 250分の1である。

パーマメント・ウェーブを経験した頭髪ではウェーブをつけるために使用される薬品の影響により、イオウの含有量がパーマメント未経験の頭髪に比べて2~4倍も多く、しかも一個人についても採取の時期によりイオウの含有量の変動が大きいことが認められた。

ツメは頭髪に類似した構成成分をもつので、リンの含有量も頭髪と同一であろう。インキではその組成<sup>2)</sup>をもとにして計算した結果からも、イオウの含有量は 3.8 (mg S/g ink) であり、リンの含有量は無視できる。<sup>32</sup>Pを生成するリンとイオウの放射化断面積はほぼ等しいが、毛髪、ツメおよびインキ等ではイオウに比してリンの含有量が微量であるため原子炉事故のように熱中性子束が速中性子束の数倍程度であれば、これらの物質

中に生成された<sup>32</sup>Pはすべて速中性子によつて放射化されたものと考えられる。

2の(3)式にここで測定された各物質1g当りのイオウの量を代入すれば、 $D_{nf/a}$ は次式の如く与えられる。

$$\left. \begin{aligned} \text{Hair } D_{nf/a} &= 0.670 \text{ (rad/dpm/g)} \\ \text{nail } D_{nf/a} &= 0.695 \text{ (rad/dpm/g)} \\ \text{ink } D_{nf/a} &= 7.30 \text{ (rad/dpm/g)} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

水、コンクリートなど遮蔽材のかげの熱中性子束が非常に大きい(速中性子束の数100倍程度)ところで被曝した毛髪などを用いて、速中性子線量を推定することは不可能である。

#### 4. 線量推定

##### a. 実験方法

頭髪、ツメ等に速中性子を照射し、生成された<sup>32</sup>Pの放射能から速中性子線量を推定しそれらの結果を<sup>32</sup>Sしきい値検出器を用いて測定した値と比較した。

中性子源として、Van de Graaff 加速器を用い、<sup>9</sup>Be(d,n)<sup>10</sup>B反応から発生する中性子を利用した。人体表面上での速中性子線量分布を測定するために、組織等価物質をみたしたポリエチレン製マネキン・ファントムの表面に毛髪をつけて速中性子を照射した。

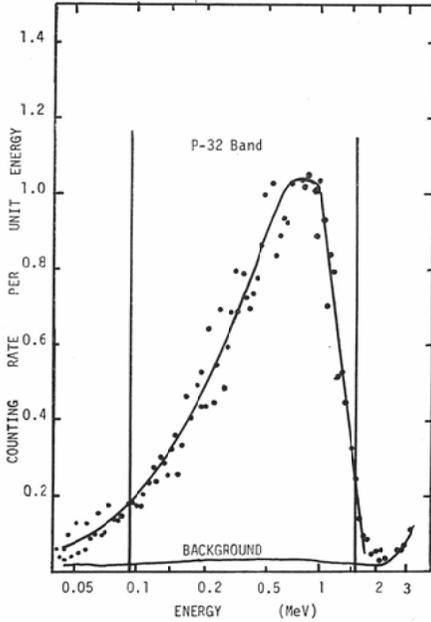
照射後の頭髪試料を(1)沈殿法、(2)灰化法あるいは(3)直接法(頭髪をハサミなどでこまかく切るだけである)で処理して、生成した<sup>32</sup>Pの放射能をcoincidence type low background  $\beta$  ray spectrometerで測定した。ツメは灰化法で処理して<sup>32</sup>Pの放射能を測定した。

中性子源のエネルギー・スペクトルとして、time of flight法で測定された結果<sup>3)</sup>を用いた。このスペクトルから平均の<sup>32</sup>S(n,p)<sup>32</sup>P反応断面積、単位neutron fluence当りのfirst collision doseを算出したところ次のような結果を得た。

$$\frac{\int_{2.5}^{10} D_0(E) \cdot f(E) dE}{\int_{2.5}^{10} \sigma(E) \cdot f(E) dE} = \frac{4.06 \times 10^{-9}}{0.232 \times 10^{-24}} = 1.75 \times 10^{16} \quad (6)$$

(1)式を用いて、<sup>32</sup>Pの放射能から速中性子線量

Fig. 2. Typical  $\beta$ -rays spectrum obtained from irradiated human hair.



を推定し, twin chamber で測定した結果と比較した。

b. 実験結果と考察

頭髪試料を灰化法で処理して,  $\beta$  ray spectrometer で測定したエネルギー・スペクトルを Fig. 2 に示す.  $^{32}\text{P}$  の放射能の測定には90keV~1.60

MeV の範囲の計数を用いた。

頭髪,  $^{32}\text{S}$  しきい値検出器から得たファントム表面での速中性子線量分布を第三表に示す。

両者の結果はよく一致している。均一な放射線場での実験結果ではないため, 中性子の入射面にあつた試料でも多少位置による相違がある。しかし, 頭部, 胸部, 腰部の各ファントム部分についてみれば, 第三表の結果は有意な線量分布を示す。入射面にあつた試料から推定される線量を1とすれば, これと90°および180°の角度をなす面にあつた試料ではそれぞれ0.75~0.80, 0.06の線量が推定される。

毛髪を用いて速中性子線量を推定する場合にはできるだけ身体全域の毛髪を用いるべきであり, 一部分の毛髪だけを用いたのでは線量推定が不可能であろう。またフィルム・バツジなどを装着し

Table 4.  $^{32}\text{P}$  specific activity obtained from same hair samples.

Sample	Method		
	Precipitation	Incineration	Direction
1	9.94dpm/g	10.3dpm	9.84dpm/g
2	8.53	8.06	8.28
3	5.15	5.03	5.30
4	6.92	6.95	7.23
5	8.05	8.43	8.16

Table 3. Dose distribution on man phantom calculated from  $^{32}\text{P}$  activity of irradiated human hair.

Sample	Position on man phantom	Fast neutron dose		Per cent of estimated dose
		Hair	Threshold detector	
1	Pubis (anterior)	11.4 rads	11.6 rads	98.3%
2	Pubis (posterior)	0.61	0.72	85.0
3	Pubis (lateral)	8.32	8.53	97.5
4	Pubis (lateral)	7.96	7.08	112
5	Chest (anterior)	9.24	9.36	98.7
6	Chest (posterior)	0.62	0.53	117
7	Chest (lateral)	8.40	8.63	97.3
8	Chest (lateral)	8.90	8.53	104
9	Head (anterior)	9.28	9.63	96.4
10	Head (posterior)	5.90	6.10	96.7
11	Head (center)	5.96	6.22	95.8
12	Head (lateral)	6.56	6.89	95.2
13	Head (lateral)	7.78	7.19	108.

Table 5. Comparison of total neutron dose estimation based on hair, nails and ink activation measurements with a neutron chamber.

Sample	Total neutron dose (rad)			
	Hair	Nail	Ink	Physical dosimetry
1	11.4 rads	— rads	— rads	13.7 rads
2	39.1	28.5	33.4	36.6
3	62.3	58.6	63.5	56.4
4	125	130	145	110
5	238	244	236	206

ている場合でも、身体各部分の毛髪中の<sup>32</sup>Pの放射能を測定すれば、被曝時の線源の方向、被曝部位等について知ることができる。

中性子照射後の同一頭髪試料を種々の方法で処理してβ計測した結果を第四表に示す。頭髪試料は処理方法により<sup>32</sup>Pの放射能の測定結果に有意な差を認めなかつた。

頭髪、ツメおよびインキを用いて推定した速中性子線量と twin chamber で測定した線量を比較すれば、第五表の如くである。いずれの物質を用いても推定される線量は chamber で測定した線量と20%以内で一致した。

#### 5. 最小推定可能線量

<sup>32</sup>P はβ線だけを放出する核種で、β線の最大エネルギーは1.71MeVであり、比較的容易に測定できる。一般にβ計測に用いられる GM counter, 2π gas flow counter, さらに coincidence type low background β-ray spectrometer について<sup>32</sup>Pの最小検出可能量を推定し、毛髪、ツメ等を用いた場合の最小推定可能中性子線量を検討した。

各測定器の<sup>32</sup>P最小検出可能量はバックグラウンドの標準偏差の3倍とし、測定時間は50分とした。線量算定には3の(5)式を用いた。

第七表は医理研製 GM counter, 神戸工業製 2π gas flow counter, 放医研で開発された coincidence type low background β-ray spectrometer についての測定結果を示したものである。

放射線障害治療上問題となる速中性子線量を100radsとすれば、毛髪試料1gを用いて GM counter で十分に測定できよう。

#### 6. 結言

頭髪、ツメおよびインキ等を用いて迅速に速中性子線量を推定する方法について検討した。

(1) 日本人の毛髪中のイオウの含有量は43.6 ± 4.6 (mg S/g Hair) であり、速中性子線量推定にあたって障害となるリンの含有量は0.171 ± 0.024 (mg P/g Hair) である。

(2) 毛髪中のイオウの放射化を利用して速中性子線量を推定する場合、Petersen らのおこなったように毛髪を化学的に処理しなくても灰化するか、ハサミなどでこまかく切るかして線源の自己吸収を小さくしてβ計測するだけで十分である。われわれが用いた方法では0.1gの毛髪を用いた場合でも20radsの速中性子線量を推定するのに3時間を要するだけであつた。

(3) 毛髪の他にツメ、インキ等を用いても速中性子線量の推定は可能である。

(4) 毛髪、ツメなどを用いて推定された速中性子線量と twin chamber から得られた結果とは20%以内で一致した。

(5) 一般にβ計測に用いられている GM

Table 6. Minimum detectable neutron dose

Detector	Efficiency	Background mean ± s.d. (σ) (cpm)	Minimum detectable counting rate (dpm)	Minimum detectable dose		
				Hair (1g)	Nail (100mg)	Ink (1g)
G.M. counter	15.4%	14.3 ± 1.18	23.0	15.4 rads	160 rads	170 rads
2π gas flow counter	30	2.38 ± 0.322	3.22	2.2	22	23
Coincidence type low background β-ray spectrometer	11	0.204 ± 0.064	1.75	1.2	12	13

counter,  $2\pi$  gas flow counter 等で毛髪試料を測定した場合の最小検出可能線量を検討した。

おわりに、本研究をおこなうにあたり始終御懇篤な御指導ならびに御校閲をいただいた橋詰 雅部長および化学研究部河村正一室長に深く感謝します。また種々、有用な御助言を下された田中栄一室長、ならびに化学分析に御協力下さった大綱保司技官に心から御礼申し上げます。

#### 参考文献

- 1) D.F. Petersen, V.E. Mitchell, W.H. Langham: Estimation of fast neutron dose in body hair: *Health Physics* 6, 1, 1961.
- 2) D.F. Petersen and W.H. Langham: Neutron activation of sulfur in hair: Application in nuclear accident dosimetry study: *Health Physics* 12, 381-384, 1966.
- 3) D. Tanaka, T. Hiramoto and T. Maruyama:

Beta-spectroscopy of low level samples by a coincidence type scintillation spectrometer: *J. Nucl. Sci. Tech.* 1, 8, 1964.

- 4) I.C.R.U. Report 10e: Radiobiological dosimetry 1962.
- 5) H. Liskien and A. Paulsen: Compilation of cross section for some neutron induced threshold reactions: Euratom Central Bureau for Nuclear measurement: Nov. 1963.
- 6) G.M. Frye, J.H. Gammel and L. Rosen: Energy spectrum of neutrons from thermal neutron fission of  $^{235}\text{U}$  and from an untamped multiplying assembly of  $^{235}\text{U}$ . USAEC Report LA-1670, 1954.
- 7) E.A. Apps: Ink for the minor printing process and specialized application. 1963.
- 8) T. Inada, K. Kawachi and T. Hiramoto: Neutrons from thick target Beryllium (d, n) reactions at 1.0-to 3.0-MeV. to be published.