

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24580491

研究課題名(和文) 超電導放射線検出器を用いた新しいバイオマス測定装置の開発

研究課題名(英文) Development of the measurement device for dry weight ratio of biomass using a cryogenic radiation detector

研究代表者

佐藤 泰 (Sato, Yasushi)

独立行政法人産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：90357153

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)： ^{14}C 由来の β 線の測定を行うため、モンテカルロ計算により、 β 線のバイオマスにおける挙動のシミュレーションを行った。超伝導放射線検出器に接合する ^{14}C を含む放射線吸収体を製造した。多くの試料を同時に測定できるようにするため、多素子化に向けた機器の整備を行った。超電導放射線検出器の特性評価を行った。基準となる ^{14}C 放射能の測定方法を確立した。

研究成果の概要(英文)：Monte Carlo simulation was conducted for investigating beta rays behavior in biomass sample in order to measure beta ray emitted by ^{14}C . Radiation absorbers containing ^{14}C were fabricated to connect to superconductor radiation detectors. The instruments for the superconductor radiation detector array were developed. Characterization of a superconductor radiation detector was carried out. The measurement method for standard ^{14}C radioactivity was established.

研究分野：放射能計測、複合化学、分析化学

キーワード：バイオマス 超電導 炭素14 放射能

1. 研究開始当初の背景

平成18年3月に閣議決定されたバイオマス・ニッポン総合戦略では、地球温暖化防止に向けて、温室効果ガスの削減対策を推進している。この一環として、バイオマス燃料やバイオマスプラスチック等の利用促進が謳われている。これらのバイオマス製品を国民が安心して利用し、不正品の流通を抑制して、温室効果ガス削減を達成するには、製品のバイオマス成分の混合比(バイオマス度)を検証することが必要である。バイオマス成分割合を測定する方法としてはバイオマスに含まれている¹⁴Cの量を測定する方法が一般的である。現在のバイオマス由来の¹⁴Cを測定する主な方法としては、液体シンチレーションカウンタを用いる方法と、加速器質量分析装置を用いる方法がある。しかし、液体シンチレーションカウンタでは、液体試料しか測定できない、バイオ燃料など着色されているものは測定感度が悪い、一般的に精度よく測定することが難しい等、本質的な問題がある。加速器質量分析法は、微量な¹⁴Cを精度よく測定できるが、加速器質量分析装置の導入には、施設整備を含め50億円以上かかり、一般的な分析施設への導入は困難である。さらに、pMC(percent modern carbon)という¹⁴C量の指標について、液体シンチレーションカウンタによる測定値と、加速器質量分析装置による測定値では、数%の差異があることがわかっており、これらの原因を究明する必要もある。

一方、超電導転移端放射線検出器は、超電導金属の薄膜が超電導状態-常伝導状態の転移端で急激に電気抵抗値の変化を示すことを利用し、放射線のエネルギーを熱に変換して測定する放射線検出器である。線源から発生した線を熱パルスとしてパルスカウントすることが出来る。従来の線検出器では、線源自身の自己吸収により、検出効率の向上は困難であった。超電導転移端放射線検出器は放射線のエネルギーを熱に変換できるので、線源と超電導転移端放射線検出器を密着させれば、線源自身が吸収したエネルギーが熱パルスとして検出器に移行するので、線源自身の自己吸収で放射線検出の効率が悪化することが原理的になく、100%近い効率で、線を検出できることが期待される。

2. 研究の目的

筆者らは、放射能絶対測定法の研究開発、高度化、超電導放射線検出器の研究開発を継続的に行ってきた。現在までの研究成果に基づき、超電導転移端放射線検出器により、高感度にバイオマス試料から放出される¹⁴C由来の線の測定を行うことで、バイオマス由来の¹⁴C量を測定する方法を考案した。本研究開発では、超電導放射線検出器により¹⁴Cの放射線が測定できることを示し、これによりバイオマス度の測定が行えることを示すことを目的とする。

3. 研究の方法

¹⁴C由来の線の測定を行うため、モンテカルロ計算により、線のバイオマスにおける挙動のシミュレーションを行う。これに基づいて、超伝導放射線検出器に接合する放射線吸収体を製造する。さらに、多くの試料を同時に測定できるようにするため、多素子化に向けた機器の整備を行う。超伝導放射線検出器により、放射線の測定を行い、超電導放射線検出器の特性評価を行う。¹⁴C放射能の基準となる測定方法を確立する。

4. 研究成果

(1) モンテカルロ計算によるシミュレーション

モンテカルロシミュレーションコードEGS5MPIにより、バイオマスであるポリ乳酸試料内における、¹⁴Cより発生した線のエネルギー付与を計算し、ディスクリミネーションレベルにより、検出効率がどの程度変化するかを確認した。図1にシミュレーションコードに実装した¹⁴Cより発生する線のエネルギー分布を示す。

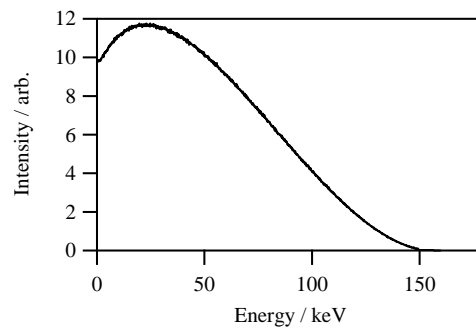


図1 ¹⁴Cより放出される線のエネルギー

ポリ乳酸の縦横の幅を10 mm×10 mmとし、厚みを0.5, 1, 5, 10 mmとして線のポリ乳酸に対するエネルギー付与を計算した。ディスクリミネーションレベルを0.5 keVから10 keVに変化させたときの、¹⁴Cより放出される線に対する検出効率を図2に示す。ディスクリミネーションレベルを上げていくと検出効率が下がっていくが、下がり方は、薄い試料のほうが大きい。これは、厚みが薄くなるとエネルギー付与量が低エネルギー側にシフトすることに対応している。

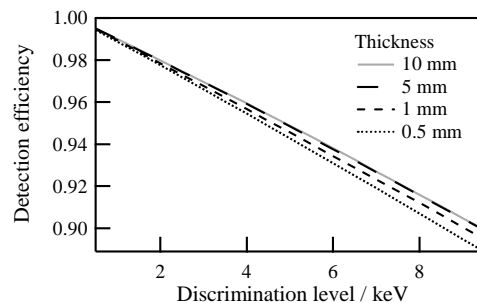


図2 線のエネルギー付与量

また、ディスクリミネーションレベルを 0.5 keV にすると検出効率は約 99.5% になることが確認でき、非常に高い検出効率による測定が可能になることが確認できた。

(2) 超伝導放射線検出器に接合する放射線吸収体の製造

ポリ乳酸を超伝導放射線検出器に装荷するため、プラスチックを含む放射線吸収体を製造する方法を開発した。試験のため、 ^{14}C プラスチックを用いて、放射線吸収体の製造を以下のように行った。

穴の開いた作業台を準備し、穴の部分に台座に固定された粘着性ゴムを設置した。ポリテトラフルオロエチレンで粘着性ゴムの周囲をかこんだ。錫箔を粘着性ゴムで固定した。錫箔は直径 1.75mm、厚みは 0.015mm である。 ^{14}C プラスチックを錫箔の上に載せた。 ^{14}C プラスチックの大きさは、1mm 角程度で、厚みは 0.02mm 程度である。穴の開いた作業台を上昇させ、錫箔を粘着性ゴムから分離した。 ^{14}C プラスチックが載った錫箔の上にポリ塩化ビニリデン及び錫箔を被せ、その上にポリテトラフルオロエチレンを被せた。このようにしてできた集合体を、セラミック製の耐熱板の上に載せ、これらをグローブボックスの中にある平板型ホットプレートの上に載せた。さらに、これらの上に、セラミック製の錘を載せた。グローブボックス内の空気をアルゴンガスで置換した。平板型ホットプレートで集合体を 100 度程度に加熱し、冷却後、集合体からポリテトラフルオロエチレンを分離し、放射線吸収体を製造することができた。本件に関して、特許を出願した。

(3) 多素子化に向けた機器の整備

産総研で開発が進められている、多数の検出素子に異なる共振周波数で信号を変調し、これらを周波数軸上に並べて出力を読み出すマイクロ波帯周波数多重読出法を適用するため、マイクロ波を導入して複数の超伝導放射線検出器の信号を読み出せる機構を、冷凍機に構築した(図3)。これにより、熱流入・発熱の抑制と素子数増大の両立が可能となり、低廉な冷凍機で多数の TES を動作させることができると考えられる。

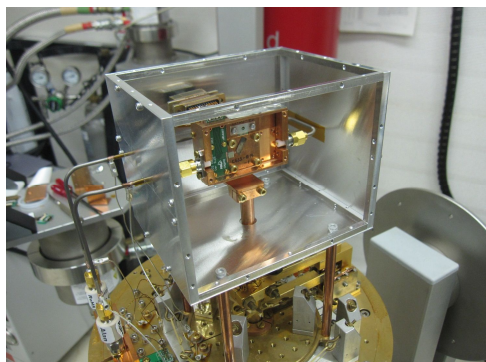


図3 マイクロ波多重読出を行う機構

(4) 超伝導放射線検出器の特性評価

超伝導放射線検出器の特性試験として、Au 吸収体と接合している Ti/Au 二層薄膜を用いた TES により、Fe-55 の X 線の測定を行った。Au 吸収体の形状は 300nm×300nm×300nm、Ti 薄膜の形状は 1000nm×500nm×70nm、Au 薄膜の形状は 1000nm×500nm×70nm である。特性値として、電流ノイズ密度とエネルギー分解能を測定した。図4に 200mK における電流ノイズスペクトル密度、図5にいくつかの動作特性点におけるエネルギー分解能を示す。これらの特性は ^{14}C の線を測定するのに充分であると考えられる。また、これらは単素子における測定であるので、複数素子での測定における特性値と比較される予定である。

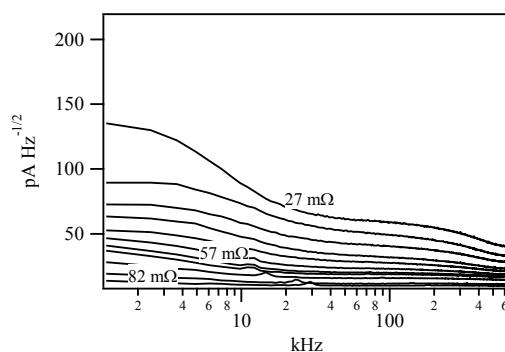


図4 電流ノイズスペクトル密度

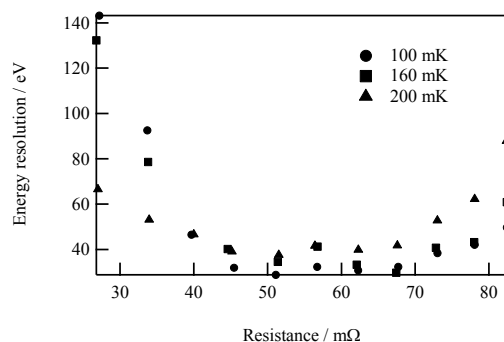


図5 超伝導放射線検出器のエネルギー分解能

(5) ^{14}C 放射能の基準となる測定方法の確立

^{14}C の放射能の測定の妥当性を確認するためには、基準となる放射能線源が必要である。 ^{14}C は前述のとおり、線のみを放出する核種であるので、液体シンチレーションを用いた 2 つの互いに異なる測定装置、測定方法である ^{14}C の放射能測定法を用いて、基準となる放射能の測定を行った。ひとつの方法は、CIEMAT-NIST 法である。これは、 ^3H 標準線源を用いて、クエンチ指標、 ^3H 検出効率、フリーパラメータの関係を得ると共に、着目する ^{14}C 線源のクエンチ指標から、フリーパラメータと ^{14}C 検出効率を算出し、 ^{14}C の計数率と ^{14}C 検出効率から ^{14}C の放射能を求めるものである。もう一方の方法は TDCR 法である。本法は、3 台の光電子増倍管を用いて、2 台の光電子増倍管の同時計数率に対する 3 台の光電

子増倍管の同時計数率の比を指標として、 ^{14}C 検出効率を算出し、 ^{14}C の計数率と ^{14}C 検出効率から ^{14}C の放射能を求めるものである。TDCR 法については、筆者らが開発した繰り返し計算を用いた放射能算出法を世界で初めて ^{14}C の放射能測定に適用した(図6)。その結果、CIEMAT-NIST 法では、 $5.406 \pm 0.043 \text{ kBq/g}$ ($k=2$)、TDCR 法では、 $5.402 \pm 0.032 \text{ kBq/g}$ ($K=2$)と求められた。2つの、測定装置、測定方法が共に異なる方法で、不確かさの範囲内で一致する結果を得られたので、これらの方法で、求められた放射能を基準として、超電導放射線検出器で測定された放射能と比較することにより、超電導放射線検出器による放射能測定の妥当性評価が出来ると思われる。

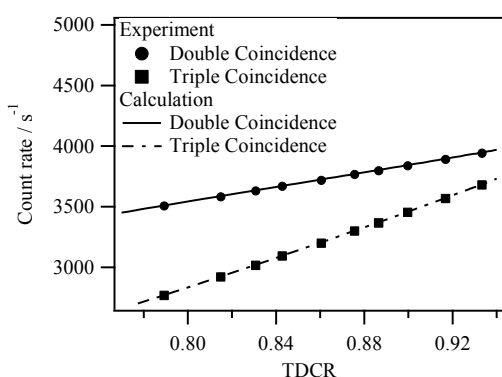


図6 繰り返し計算を用いた TDCR 法による ^{14}C 放射能測定

(6)新たな放射能絶対測定法

超電導放射線検出器による新たな放射能絶対測定法を考案した。この方法は、放射性核種をシンチレータ内に封入し、これを超電導放射線検出器と接合することにより、シンチレータ中に放出される放射線を超電導放射線検出器で検出するものである。これに加え、シンチレータからの発光を別途光検出器により検出することにより、超電導放射線検出器と光検出器による同時測定が行えるようになる。超電導放射線検出器の計数率と光検出器の計数率、及びこれらの同時計数率を用いることにより、放射能絶対測定が行える。本件に関して、特許を出願した。

(7)まとめ

超電導放射線検出器を用いて製品のバイオマス成分の混合比を測定する、新たな技術の基盤を開発できた。今後、本研究をさらに進展させ、超電導放射線検出器による ^{14}C の測定を行い、これに基づき、製品のバイオマス成分の混合比を測定できるようにしてゆく。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計0件)

〔学会発表〕(計2件)

佐藤 泰、福田 大治、田中 啓一、神代 暁、平山 文紀、山森 弘毅、永沢 秀一、佐藤 昭、日高 睦夫、畠山 修一、入松川 知也、大野 雅史、高橋 浩之、Fe-55によるTESのベンチマーク試験、応用物理学学会、2015年3月11日~2015年3月14日、東海大学、神奈川県

佐藤 泰、福田 大治、超伝導放射線検出器用放射能線源の製作、計量標準成果発表会、2015年1月21日~2015年1月22日、産業技術総合研究所、茨城県

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計2件)

名称：熱量検出器及び光検出器を用いた放射能絶対測定装置

発明者：佐藤泰、福田大治、浮辺雅宏、神代暁、平山文紀、前畑京介、高橋浩之、大野雅史

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許権

番号：特願 2014-008905

出願年月日：2014/01/21

国内外の別：国内

名称：極低温マイクロカロリーメータ用放射線源の製造方法及び装置

発明者：佐藤泰、福田大治、宮崎有希、廣瀬正樹

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許権

番号：特願 2014-213776

出願年月日：2014/10/20

国内外の別：国内

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ

http://www.nmij.jp/~quant-rad/radio/text_results_nn.htm

(pdf ファイルからはリンクが正常に動作しませんので、ブラウザのアドレスバーに直接入力願います。)

6. 研究組織

(1)研究代表者

佐藤泰 (SATO, Yasushi)

産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・放射能中性子標準研究グループ・主任研究員

研究者番号：90357153

(2)研究分担者

福田大治 (FUKUDA, Daiji)

産業技術総合研究所・物理計測標準研究部門・レーザ放射標準研究グループ・研究グループ長

研究者番号：90312991

(3)連携研究者

沼田雅彦(NUMATA, Masahiko)

産業技術総合研究所・物質計測標準研究部門有機組成標準研究グループ・研究グループ長

研究者番号：20357734

連携研究者

国岡正雄(KUNIOKA, Masao)

産業技術総合研究所・機能化学研究部門・高分子化学グループ・研究グループ長

研究者番号：60211885