

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：53203

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2017

課題番号：26610065

研究課題名(和文)放射線物理と分子化学を融合した液体シンチレータの発光・消光シミュレータ開発

研究課題名(英文)Simulation of photon yield and quenching characteristics based on physics and chemical processes in liquid scintillator

研究代表者

阿蘇 司 (Aso, Tsukasa)

富山高等専門学校・電子情報工学科・教授

研究者番号：30290737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：液体シンチレーションカウンタ(LSC)装置のモデル化を行い、核種崩壊で放出される線によって起こるシンチレーション発光とその伝搬、そして光電子増倍管で観測される波高分布を計算するシミュレータを構築した。そして、計算と測定との波高分布を比較することにより、液体シンチレータの発生光子数を求めた。また、発生光子数、計数効率、消光効果の指標ESCR(外部標準チャンネル法)、TDCR(Triple to double coincidence ratio)との相関を解析した。これらの成果から、従来の標準線源試料を用いて計数効率の校正曲線を測定する手法に対して、シミュレーションが代替できることを示した。

研究成果の概要(英文)：A simulator for liquid scintillation counter (LSC) has been developed. It calculates the LSC spectrum for the signal detected at the photomultipliers by taking into account disintegration of radionuclide, scintillation photon emission and propagation of the optical photons. The scintillating photon yields for a series of standard quenched samples were estimated by comparing the calculated LSC spectrum with that in the measurements. The correlation between photon yields, counting efficiency, ESCR (External standard channel ratio) and TDCR (Triple to double coincidence ratio) were analyzed.

The simulation is capable of estimating both photon yield and detection efficiency without a series of standard quenched samples. Therefore the simulation can be used as an alternative method for estimating detection efficiency.

研究分野：計算科学、放射線物理学

キーワード：Geant4 シミュレーション 液体シンチレータ 消光効果 計数効率 クエンチ ESCR TDCR モンテカルロ・シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

液体シンチレーションカウンタ(LSC)は、液体シンチレータ・カクテルに放射性試料を溶解させて、そのシンチレーション発光を計測して放射能を定量する。LSCは検出効率が非常に高く、放射能汚染水に含まれるトリチウム等の低エネルギー・ベータ線放出核の唯一の放射能定量法であり、計測精度向上や他核種分析などの高度化が望まれている。

2. 研究の目的

LSCを用いた放射能定量では、溶媒・溶質のエネルギー移行の際に生じる消光効果の補正が不可欠である。本研究では、LSCの高精度・高度化を目指して、(1)シンチレーション発光・消光モデルを導入したモンテカルロ法シミュレータを開発すること、そして、(2)開発したシミュレータの有効性を評価し、シンチレーション光の発生光子数と消光効果との関係を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1)放射線シミュレーションツールキットであるGeant4を基盤として、LSC装置を構成する。シミュレーションでは、液体シンチレータ内でのベータ崩壊から検出に至る物理過程、シンチレーション発光、光の伝搬、境界面での反射屈折、そして光電子増倍管の光電変換特性を包括的に考慮し、実機のLSC装置をモデル化した体系を構築する。

(2)シミュレーションにより得られたベータ線放出核種試料の波高分布と計数効率を、測定結果と比較することにより、シンチレータの発生光子数が計数効率に与える影響を定量的に評価する。

(3)消光効果の異なるベータ線放出核種試料のシミュレーションを行い、測定結果と比較することにより、発生光子数、消光効果、計数効率のそれぞれの関係を明らかにする。

(4)ベータ線放出核種以外の他核種において、開発したシミュレーションが有効活用できることを示す。

4. 研究成果

(1)研究の主な成果

日立製作所製の液体シンチレーションカウンタLSC-5100並びにLSC-LB7の構造をモデル化したGeant4モンテカルロシミュレーションを構築した。液体シンチレータ内での核種崩壊により放出された荷電粒子とその電離により発生するシンチレーション光、そして光学光子の伝搬を計算するための装置の光学特性パラメータ等を設定し、実機を模擬した体系を構築した(図1)。光電子増倍管の光電面に達したシンチレーション光を変換した波高分布は、測定で得られた波高分布を再現できることが示されており、実機を模

したシミュレーションが構築できた。

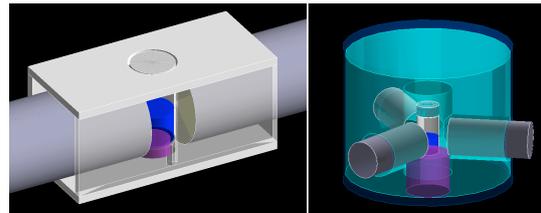


図1 シミュレーション体系

シミュレーションより得られた具体的な成果は次の通りである。

①C-14およびH-3のベータ線放出核に関して、シミュレーションにより得られた波高分布を、校正用標準線源試料を測定した結果と比較した。シミュレーションではシンチレーション光の発生光子数を変えることで波高分布が変化する。初めに、発生光子数を適切に設定することにより、測定波高分布と同等の結果が得られることを確認した。

②校正用標準線源試料は、核種当たり10種類の消光効果の度合いが異なる試料で構成されている。各消光効果の度合いの試料において、測定と同等の波高分布が得られることを条件に、発生光子数を調整した。これにより、消光効果の度合いと発生光子数の相関関係を確認した。

③見積もった発生光子数を適用し、シミュレーションを用いて計数効率を算出した。シミュレーション結果は、測定結果の計数効率を再現していることを確認した。

④消光効果の度合いを表す指標は、一般的に外部標準線源(ESCR)法を用いたESCR値が利用されている。シミュレーションにおいてもESCR法を適用し、ガンマ線照射時の波高分布を計算してESCR値を求め、測定ESCR値と比較を行った。シミュレーション条件として、ESCR計算において必要となる低エネルギー側のエネルギー閾値の設定、並びに出力値への変換を行う読み出し回路系の増幅率の2つを考慮することにより、測定と同等のESCR値が得られることを確認した。また、計算において導き出したこれらのエネルギー閾値および増幅率は、実機での適用値と矛盾ないことが確認されている。

⑤LSCにおける計測手法の1つとして、TDCR(Triple to double coincidence Ratio)法がある。LSC-LB7をモデル化したシミュレーション体系は、光電子増倍管を3本配置しており、TDCR法の計測手法の評価が可能である。シミュレーションを用いて、C-14、H-3、S-35のベータ線放出核種での計算を行い、TDCR値と計数効率の関係を解析した。

⑥ベータ線放出核種以外の核種への適用と

その有効性を確認するために、電子捕獲過程を介して壊変する I-125 のスペクトル分布のシミュレーションを行った。壊変に伴い、オージェ電子や特性 X 線が発生する。液体シンチレータの組成の違いにより波高分布が変化することが測定で確認されており、シミュレーションにおいても同様の傾向を確認することができた。これにより、この現象が生じる機構についての解析と考察を行うことが可能となった。

(2) 国内外における位置づけ

LSC 装置の性能評価は、これまで試作機などの実機を用いて行われてきた。本研究では、波高分布の測定に至る各過程をシミュレーションにより考慮する独自性のある手法を用いている。また、消光効果については、電離消光効果、化学消光効果、色消光効果などの要因があるが、これらの要因を、シミュレーションを用いることにより、個別に評価することができる。本研究期間では、電離消光効果と化学消光効果に焦点を絞り、シンチレーション光の発生光子数、計数効率、消光効果指標の ESCR 値について、それぞれの関係を包括的に明らかにした。これらの成果は国内外において、国際学会や査読付論文として報告を行っている。

(3) 今後の展望

本研究期間では、電離消光効果と化学消光効果による影響に焦点を絞った。そのうえでシンチレータの発生光子数の見積りに成功した。本研究の成果物となるシミュレータは、その他の消光効果を個別に評価する機能を有している。従って、今後、電離消光効果と化学消光効果の区別や、色消光効果の影響など、消光効果についての詳細モデルを構築して検証することができる。これらのモデルは、液体シンチレータに限らず、プラスチックシンチレータ等への応用も可能であり、本研究成果に基づいて、多様な分野における今後の展開が期待できる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 9 件)

(1) M. Shoji, T. Aso, M. Hara, R. Benii, Y. Kato, T. Furusawa, T. Yoshimura, Modification of LSC spectra of 125I by high atomic number elements, Applied Radiation and Isotopes 139, 2018, pp. 131-136. 査読有り, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.04.038>

(2) T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Estimation of photon yield in liquid scintillation counter by using Geant4 Monte Carlo simulation, Progress in Nuclear Science and Technology, 2018, 掲載予定, 査読有り

(3) M. Hara, H. Sakaguchi, M. Nakayama, S. Abe, M. Matsuyama, T. Abe, T. Aso, Tritium Counting

Using a Europium Coordination Complex, Fusion Science and Technology, 71, 2017, pp. 496-500, DOI: <http://dx.doi.org/10.1080/15361055.2016.1273708>

(4) T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, T. Kato, K. Aoyama, Systematic Counting Efficiency Estimation Due to Spectral Conformity Assessment in Geant4 Based Liquid Scintillation Counter Simulation, IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 2016, pp. 1-4. 査読無し, DOI: 10.1109/NSSMIC.2016.8069818

(5) M. Hara, M. Nakayama, K. Hirokami, T. Aso, Appropriate quenching level in modified integral counting method by liquid scintillation counting, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 310, 2016, pp. 857-863. 査読有り DOI: 10.1007/s10967-016-4841-2.

(6) R. Benii, T. Aso, M. Shoji, M. Hara, T. Furusawa, Y. Yoshimura, T. Kato, Analysis of 125I characteristics in liquid scintillation counter by using Geant4 Monte Carlo simulation, Proceedings of Asia Simulation Conference (AsiaSim2015), 2015, pp. 718-725. 査読有り

(7) R. Benii, T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Y. Tsubouchi, Geant4 Monte Carlo simulation for Iodine-125 spectrum in liquid scintillation counter, Proceedings of the 34th JSST Annual Conference (JSST2015), 2015, pp. 504-508. 査読有り

(8) Y. Tsubouchi, T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, R. Benii, Geant4 Monte Carlo simulation for beta ray spectra in liquid scintillation counter for estimating detection efficiency, Proceedings of the 34th JSST Annual Conference (JSST2015), 2015, pp. 500-503. 査読有り

(9) T. Aso, M. Hara, K. Ogiwara, T. Yoshimura, E. Takada, Validation of Scintillation Spectra in Liquid Scintillation Counter using Geant4 Simulation, IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 2014, pp. 1-3. 査読無し, DOI: DOI: 10.1109/NSSMIC.2014.7431054

〔学会発表〕(計 18 件)

(1) 比嘉悠介, 阿蘇司, シミュレーションを用いた液体シンチレータの発生光子数に関する検証, 平成 29 年度北陸地区学生による研究発表会, 2018 年 3 月.

(2) T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Study on counting efficiency with triple to double coincidence ration in liquid scintillation counter by using Geant4,

2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 2017, Nov.

(3) 阿蘇司, 益田拓朗, 原正憲, 庄司美樹, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, Geant4 シミュレーションを用いた液体シンチレーションカウンタの TDCR 特性評価, 第 54 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2017 年 7 月.

(4) T. Aso, M. Hara, M. Shoji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Y. Tsubouchi, R. Benii, Usage of Geant4 Simulation for Estimating Detection Efficiency in Liquid Scintillation Counter, IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 2016, Nov., pp. 1-4.

(5) 青山翔蓮, 阿蘇司, 原正憲, 庄司美樹, 益田拓朗, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, LSC モンテカルロシミュレーションによる TDCR 値と計数効率の評価, 2016 年度日本物理学会北陸支部定例学術講演会, 2016 年 11 月.

(6) 青山翔蓮, 阿蘇司, 原正憲, 庄司美樹, 益田拓朗, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, Geant4 を用いた LSC の TDCR 値と計数効率の評価, 平成 28 年度電気関係学会北陸支部連合大会, 2016 年 9 月.

(7) 阿蘇司, 紅井里緒菜, 原正憲, 庄司美樹, 吉村共之, 加藤結花, 古澤孝良, LSC モンテカルロシミュレーションによる ESCR の解析, 第 53 回アイソトープ放射線研究発表会, 2016 年 7 月.

(8) H. Weerasekara, T. Aso, M. Hara, M. Shioji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Analysis of Compton Spectral Characteristics by using LSC/MC Technique, 2015 IEEE 7th International Conference on Engineering Education (ICEED2015), 2015, Nov.

(9) Y. Tsubouchi, T. Aso, M. Hara, M. Shioji, T. Furusawa, T. Yoshimura, Y. Kato, Systematic Procedure for Determining Scintillation Photon Yield in LSC/MC Simulation, 2015 IEEE 7th International Conference on Engineering Education (ICEED2015), 2015, Nov.

(10) 坪内勇樹, 阿蘇司, 原正憲, 庄司美樹, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, Geant4 コードによる液体シンチレーションカウンタの計数効率の解析, 平成 27 年度電気関係学会北陸支部連合大会, 2015 年 9 月.

(11) 紅井里緒菜, 阿蘇司, ウィーラセカラヘランカ, 庄司美樹, 原正憲, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, LSC/MC 法による 125I の波高分布特性の解析, 平成 27 年度電気関係学会北陸支部連合大会, 2015 年 9 月.

(12) 坂口春菜, 原正憲, 中山将人, 松山政夫, 阿蘇司, 希土類錯体を含む水溶液を利用した放射線測定, 第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2015 年 7 月.

(13) 原正憲, 中山将人, 阿蘇司, 古澤孝良, 吉村共之, LSC による光電子増倍管の電圧を変化させる改良積分法, 第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2015 年 7 月.

(14) 坪内勇樹, 阿蘇司, 原正憲, 庄司美樹, 古澤孝良, 吉村共之, 加藤結花, Geant4 コードによる液体シンチレーションカウンタの出力特性の解析, 第 52 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2015 年 7 月.

(15) 小野寺大輝, 高田英治, 原正憲, 短冊シンチレータを用いたトリチウムガス測定システムの開発, 平成 26 年度北陸地区学生による研究発表会, 2015 年 3 月.

(16) 井上穂乃芳, 阿蘇司, 原正憲, 萩原清, 吉村共之, LSC/MC シミュレーション手法によるトリチウム計測の計数効率の評価, 平成 26 年度電気関係学会北陸支部連合大会, 2014 年 9 月.

(17) 原正憲, 中山将人, 松山政夫, 阿蘇司, 液体シンチレーションスペクトルとベータ線スペクトルの比較, 第 51 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2014 年 7 月.

(18) 阿蘇司, 原正憲, 萩原清, 吉村共之, Geant4 モンテカルロコードによる液体シンチレーションカウンタ出力の検討, 第 51 回アイソトープ・放射線研究発表会, 2014 年 7 月.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

阿蘇 司 (ASO TSUKASA)

富山高等専門学校・電子情報工学科・教授
研究者番号: 30290737

(2) 研究分担者

原 正憲 (HARA MASANORI)

富山大学
水素同位体科学研究センター・准教授
研究者番号: 00334714

高田 英治 (TAKADA EIJI)

富山高等専門学校
電気制御システム工学科・教授
研究者番号: 00270885

(3) 連携研究者

村上 晃一 (MURAKAMI KOICHI)

大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
計算科学センター・研究機関講師
研究者番号: 10353369

佐々木 節 (SASAKI TAKASHI)

大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
計算科学センター・教授
研究者番号: 50259983