

令和 2 年 6 月 24 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07006

研究課題名(和文) 全クエンチング補正法による食品中トリチウムの迅速測定

研究課題名(英文) Tritium measurement in foods by whole quenching correction method in LSC

研究代表者

原 正憲 (hara, masanori)

富山大学・学術研究部理学系・准教授

研究者番号：00334714

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000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)によりトリチウム濃度を求めるためには、クエンチング校正が必要不可欠である。カラークエンチングの校正を検討するために、LSCにつないだ外部の波高分析器を用いて2次元シンチレーションスペクトルを測定した。クエンチングの弱いカクテルにおいて、2次元シンチレーションスペクトルは45°上方に広がるスペクトルとなった。カラークエンチングが強くなるに従い、スペクトルは扇形に広がった。ゆえに、スペクトル形状はカラークエンチングの情報を含んでいる。2次元シンチレーションスペクトルを測定することで、化学クエンチングとカラークエンチングの影響を別々に考えることができる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

福島第一原子力発電所事故の収束作業に伴い、トリチウムを含む処理水が日々発生し、敷地内に貯水されている。処理水中のトリチウム濃度を迅速に測定する手法と社会的な要請として食品中のトリチウム濃度測定を行う手法が必要である。

液体シンチレーション計測法は、液体中のトリチウムを高感度で測定できる唯一の方法である。しかし、この計測法において正確なトリチウム濃度を求めるには、試料のクエンチング評価が必要不可欠である。カラークエンチングの影響を避けるための脱色処理に時間がかかるために迅速な測定ができない。本研究ではカラークエンチングの評価手法に関する研究を行った。

研究成果の概要(英文)：To obtain the activity of tritium by LSC, the quenching correction is indispensable. The two-dimensional scintillation spectra were measured by the conventional LSC connected with an external multi-channel analyzer. In less quenching cocktail, two-dimensional scintillation spectra were extended along the 45 deg. line. The shape of spectrum was changed into a kind of sector with increasing the color quenching. Therefore, the shape of spectrum would give the information of color quenching. However, the influence of color quenching was, qualitatively, less significant for the relationship between the counting efficiency of tritium and the quenching index parameter. The analysis method of two-dimensional spectrum should be considered to clearly separate the influence of color quenching.

研究分野：トリチウム安全取扱い

キーワード：トリチウム測定 液体シンチレーションカウンタ クエンチング校正

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

東日本大震災に伴う津波により引き起こされた福島第一原子力発電所事故により、環境中へ放射性物質が放出された。また事故の収束作業にともない放射性廃棄物が発電所構内に保管され続けている。中でも、トリチウムを含む処理水の量は膨大であり、その処分方法の検討が進められている。

環境に放出された放射性物質がどのように分布しているのか、食品中にどの程度の放射性物質が含まれているかを知る測定への社会的な要求は高い。対象となる放射性核種の一つである ^{137}Cs は透過力の強い線を放出する核種であるため、高感度の測定は容易である。一方、線を放出する核種の測定は、線を放出する核種に比べ測定が難しい。中でも、低エネルギーの線を放出するトリチウムは測定が難しい核種であり、固体中の低濃度のトリチウムを測定する手法はない。液体の試料であれば、液体シンチレーションカウンタ(LSC)を使用することで高感度の測定が可能となる。

LSCによるトリチウムの測定では、放射能を決定するため試料ごとにクエンチング作用(消光作用)を評価し計数効率を決定する必要がある。ここでのクエンチングとして、主に化学クエンチングとカラークエンチングの2種類が挙げられる。透明な試料では化学クエンチングの影響しか現れない。有色の試料ではカラークエンチングも同時に現れる。カラークエンチングについては、広く利用される評価手法は確立されていない。このため、測定試料は脱色処理を施したのちに測定が行われている。この脱色処理は煩雑で時間がかかるために、有色の試料中のトリチウム測定は迅速に行えない状況である。

一般に食品試料は有色であり、測定に際してカラークエンチングの影響が現れる。これは、緑茶や乾物類からのだし汁等で顕著となる。このため、食品中のトリチウム測定は、社会的な要望は高いが迅速な測定ができない。社会的な要望に応えるために、簡便なLSCのカラークエンチングの評価方法の構築が必要である。

2. 研究の目的

LSCによるトリチウム測定において、化学クエンチングとカラークエンチングを同時に評価するか、あるいはカラークエンチングの影響が現れているかを判定する手法が見いだせれば、煩雑で時間のかかる脱色処理をせずに測定にかかれ、迅速なトリチウム分析が行える。特に、有色な試料が多い食品に対する測定では、重要な分析方法となりえる。

3. 研究の方法

通常、市販されているLSCは対面する2本の光電子増倍管(PMT)を備え、放射線により誘起されたシンチレーション光を検出している。化学クエンチングのみ現れる試料であれば試料内でシンチレーション光を吸収しないため、2本のPMTで検出される光の強さに大きな差は表れない。一方、カラークエンチングを示す試料では、試料内で発生したシンチレーション光を吸収するためPMTまでの光路長の差を反映し、それぞれのPMTで検出される光の強さに差が現れる。

LSC内に対面で備えられている2本のPMTからの信号を個別に取り出し、2次元のシンチレーションスペクトルを構築することで、化学クエンチングとカラークエンチングを弁別できると考えた。しかし、市販されているLSCでは、各PMTからの光の検出信号を個別に取り出して、2次元のシンチレーションスペクトルを構築する機能はない。そこで、LSCをNIMモジュールを利用することで自作した。この自作LSCにより、2次元のシンチレーションスペクトルのクエンチングに伴う変化の基礎原理の確認とスペクトル測定時の同時計数時間等の基礎パラメータの測定を行った。ついで、市販のLSCを用いても同様のスペクトルが測定できるか検討した。この際には、LSCの内部基盤より取り出した信号を用いて2次元のシンチレーションスペクトルの測定を行った。すなわち、LSC内のPMTの信号を内部基盤で増幅後に外部へ取り出し、2チャンネル同時計数回路を備えた波高分析器へ入力し記録した。2次元シンチレーションスペクトルは記録されたデータを汎用の解析アプリケーションRootでヒストグラムとすることで得た。その一例を図1に示す。縦軸と横軸は光電子増倍管で検出された光の強さに対応する。2本のPMTで検出された光の強さが同じであれば、スペクトルは右45°上方へと広がる。なお、このスペクトルは ^{137}Cs を用いてカクテル内に発生させたコンプトン電子のスペクトルである。

使用する液体シンチレータとして、環境試料の測定に広く利用されているUltima Gold LLT(Perkin Elmer社製)を用いた。このシンチレータは400 nmから500 nmの光を発生させる。クエンチングの強さを評価する方法として外部標準線源法を利用した。外部の線源より

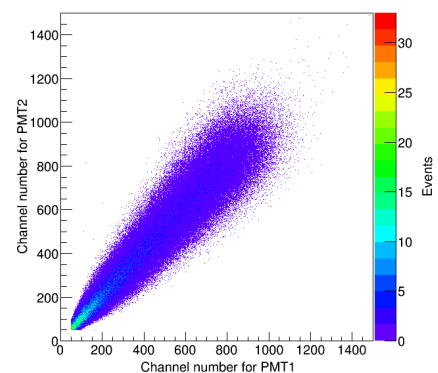


図1 2次元シンチレーションスペクトル

線を試料カクテルに照射することでカクテル内にコンプトン電子を発生させ、コンプトン電子によりシンチレーション発光を引き起こす。このシンチレーション発光の強さにより試料のクエンチングの強さを評価する。

測定試料へクエンチングの影響を出させるために、化学クエンチングの影響に対してはシンチレータへ純水を加えることを行った。これにより、透明な化学クエンチングの影響を持つカクテルを得た。純水の添加量を変えることでクエンチングの強さを調整した。一方、カラークエンチングの影響に対しては、食用色素を用いた。使用した色素として、赤色は赤色 102 号、黄色は黄色 4 号、緑色は黄色 4 号と青色 1 号の混合とした。

調製したカクテルには内部標準のトリチウムとして、3.28 kBq/ml のトリチウム水を 0.2 ml 添加した。これにより、各カクテル試料の計数効率を求めた。

4. 研究成果

化学クエンチングを施した透明のカクテルへ ^{137}Cs からの線を照射してえられた 2 次元のシンチレーションスペクトルを図 2 に示す。図 2(a) から (c) になるに従いクエンチングが強くなる。図 3 にはさらに黄色の色素によりカラークエンチングを施したものである。

クエンチングの影響が最も少ない図 2(a) から化学クエンチングが強くなるに従い PMT で検出される光の強さは弱くなり、スペクトルが低波高（低いチャンネル）側に圧縮されてることが分かる。図 2(c) では、化学クエンチングを引き起こさせるために添加した純水が多くなり、カクテルが白濁したことによるスペクトルの広がり（3 角形の形状）を見ることが出来る。この時のシンチレータへの純水の添加量はシンチレータの最大保水量に近い。一方、黄色の色素でカラークエンチングも加えた際のスペクトルは、化学クエンチングでのスペクトルに比べ、幅の広いスペクトルになっていることが分かる。これは、2 本の PMT で検出される光の強さに差が表れていることを示している。次にスペクトルの広がりを定量的に評価するために、2 本の PMT 検出された波高値の比を $\theta = \tan^{-1}(\text{PMT1 の波高値} / \text{PMT2 の波高値})$ として、角度分散を算出しその分布形状を評価した。その結果、化学クエンチングではおおむね正規分布に従う分布であるが、カラークエンチングでは正規分布から外れる分布となった。

化学クエンチングとカラークエンチングの影響を分けるために測定データより 2 つの指標を抽出した。一つは波高値がクエンチングに伴い小さくなる指標として、2 本の PMT からの出力を足し波高スペクトルを構築し、このスペクトルの平均値を求めた。他方は、カラークエンチングによるスペクトルの広がりの指標として、測定点の角度分散を正規分布で回帰しその標準偏差を指標とした。図 3(a) と (c) のスペク

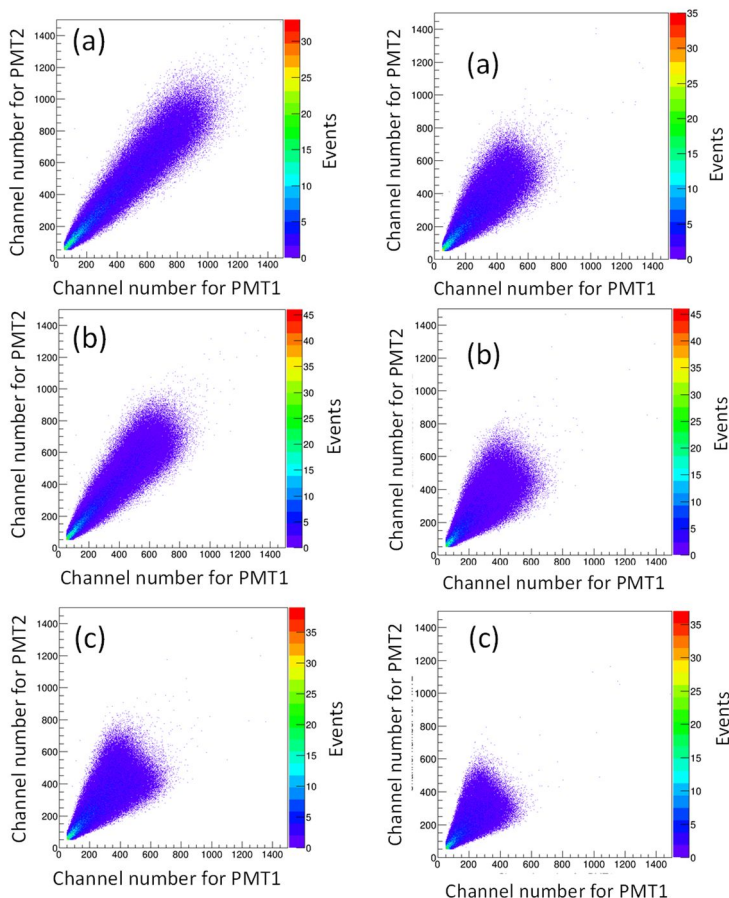


図 2 化学クエンチングを施したカクテルの 2 次元シンチレーションスペクトル

図 3 化学及び化学クエンチングを施したカクテルの 2 次元シンチレーションスペクトル

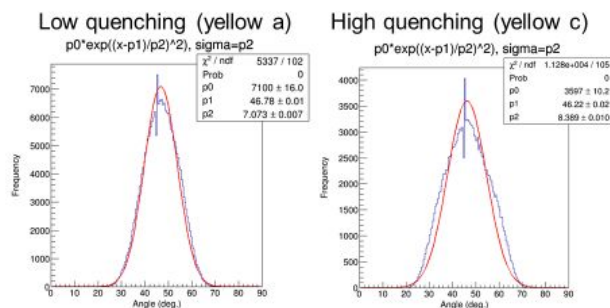


図 4 2 次元のシンチレーションスペクトルの角度分散の例。この角度分散は図 3(a) と (c) より得た。

トルの角度分散とガウス関数での回帰結果を図4に示す。左は図3(a)のスペクトルの角度分散であり、右は図3(c)のものである。クエンチングの弱い試料の角度分散はガウス関数でよく再現できるが、クエンチングの強い試料ではガウス関数では、ピークの肩の部分で一致が悪い。しかしながら、ガウス関数での回帰により得られた、標準偏差はピークの広がりを含んでいることから、この値をクエンチングの二つ目の指標とした。

図5に様々なカクテルから測定したスペクトルとトリチウムの計数効率の関係を示す。縦軸はトリチウムの計数効率、横軸はスペクトルの平均である。スペクトルの平均の値が大きいくほど、スペクトルは高波高まで広がっていることを示し、クエンチングは弱い。トリチウムの計数効率はクエンチングが弱いほど高い。計数効率とスペクトルの平均値の関係は、色素添加に関係なくおおむね一致している。しかし、クエンチングが強くなる(スペクトルの平均値が小さくなる)に従い、水だけをシンチレータへ添加したカクテルに比べ、色素を加えた試料で計数効率が小さくなり始める傾向が見られた。

図6に角度分散の標準偏差と計数効率の関係を示す。縦軸は計数効率である。図5に示す平均値では純水で化学クエンチングを施された試料と色素で着色された試料では、計数効率が30%に低下しても大きな差異が見られなかったが、角度分散の標準偏差には差異が見られ、同じ角度分散でありながら着色試料で計数効率が小さくなっている。つまり、計数効率が25%程度になってくると、カラークエンチングの影響が現れ始めることを示唆している。一方、図5より化学クエンチングが引き起こす影響は、カラークエンチングが引き起こす影響より大きい。黄色と緑の色素で着色した試料では、図6に示される角度分散の標準偏差と計数効率の関係は一致している。これは、緑色の色素は、黄色と青色の色素で調製されていることに起因する。しかし、計数効率が25%以上の試料では、添加している色素に関係なく一致している。純水添加により計数効率を25%まで低下させるには、今回使用したUltima Gold LLTのほぼ最大の水保持量まで添加する必要があった。つまり、イオン強度の強くない着色試料でトリチウム測定用のカクテルを調製し測定する際には、カクテルが二層に分離せず水が保持できている範囲であれば、通常の化学クエンチングの補正で5%の過小評価に収まることが示唆された。また、2次元シンチレーションスペクトルを使用することで、無色試料と着色試料で2次元スペクトルに差が出ることが示され、カラークエンチングの強さの評価に2次元スペクトルが利用できることが示された。

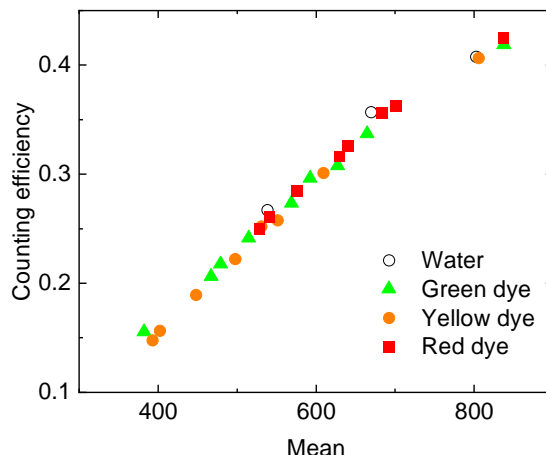


図5 スペクトルの平均値と計数効率の関係

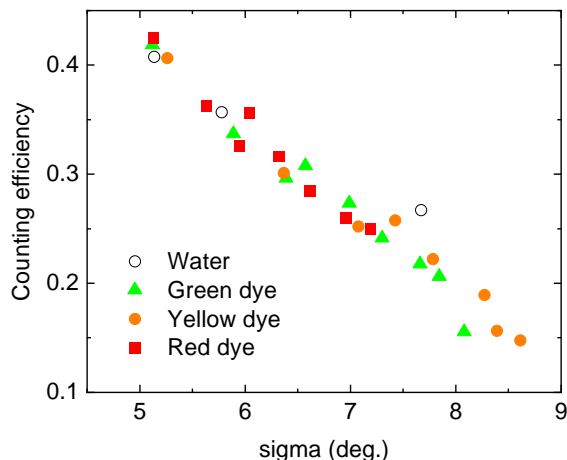


図6 角度分散の標準偏差と計数効率の関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hara Masanori, Shoji Miki, Aso Tsukasa	4. 巻 76
2. 論文標題 Quenching Correction with Two-Dimensional Scintillation Spectrum in Tritium Measurement	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Fusion Science and Technology	6. 最初と最後の頁 163 ~ 169
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1080/15361055.2019.1661720	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 原正憲、庄司美樹、阿蘇司、古澤孝良、益田拓朗、加藤結花、藤澤信司
2. 発表標題 汎用液体シンチレーションカウンタからの2次元シンチレーションスペクトルの測定
3. 学会等名 第55回 アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Aso T, Masuda T, Hara M, Shoji M, Furusawa T, Yoshimura T, Kato Y, Higa. Y
2. 発表標題 Study of counting efficiency with tritium to double coincidence ratio in liquid scintillation counter by using Geant4.
3. 学会等名 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, 24th Symposium on Room-Temperature X- and Gamma-Ray Detectors (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Aso T, Hara M, Shoji M, Furusawa T, Yoshimura T, Kato Y
2. 発表標題 Estimation of photon yield in liquid scintillation counter by using Geant4 Monte Carlo simulation
3. 学会等名 9th International Symposium On Radiation Safety and Detection Technology (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 5) 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
2. 発表標題 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
3. 学会等名 第54回アイソトープ・放射線研究発表会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 比嘉悠介, 阿蘇司
2. 発表標題 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
3. 学会等名 平成29年度北陸地区学生による研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hara M, Shoji M, Aso T, Furusawa T, Kato Y, Masauda T
2. 発表標題 Quenching Correction with Two-Dimensional Scintillation Spectrum in Tritium Measurement
3. 学会等名 Tritium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	阿蘇 司 (Aso Tsukasa) (30290737)	富山高等専門学校・その他部局等・教授 (53203)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	庄司 美樹 (Shoji Miki) (30361950)	富山大学・研究推進機構 研究推進総合支援センター・准教授 (13201)	2018年度，退職