

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 30 日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05497

研究課題名(和文) マイクロ波電磁界制御による食品中トリチウム測定の前処理の迅速化

研究課題名(英文) Development of the previous treatment method for the tritium analysis using by microwave heating

研究代表者

高山 定次 (takayama, sadatsugu)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授

研究者番号：40435516

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：環境試料中のトリチウムは、固形物(食品)内部のトリチウムが放出する。線は食品内部で遮へいされ食品表面まで到達しないので、食品からトリチウムを取り出す前処理作業が必要となる。生物試料(食品)中のトリチウム分析手法は、試料の水分を凍結乾燥法で乾燥させた後、少量試料を石英管に導入し電気炉やガスバーナーで数時間かけて燃焼させる。測定に必要な試料量を鑑みると、燃焼操作を複数回繰り返さなければならない。そのため、大量試料の処理が難しく、作業時間の長期化は避けられない。その解決策として、マイクロ波を利用した迅速・簡便な試料前処理を提案し、そのためのマイクロ波処理炉を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の方法では食料品中のトリチウム濃度を測定するための前処理に長時間を要し1つの試料に1週間以上を要する。そのため測定試料の数が限定され、限られた食品しか測定できていない。多くの食品を測定することは、食品への安全性・安心感につながる。本提案は、マイクロ波を用いることで、簡便で迅速に灰化処理と水分回収を可能とし多試料のトリチウム濃度測定を可能とする。本提案は前処理時間を大幅に短縮できるため、試料点数を増やすことができるので、広範囲で長期間の測定データの蓄積が必要な放射線の拡散・循環モニタリングが可能となり、食物連鎖、生体影響、環境動態を含めた環境循環システム研究への発展が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The conventional method for tritium analysis is a liquid scintillation counting method after freeze-drying and combustion of the sample. However, pretreatment for tritium analysis are complicated and time consuming processes over weeks. To reduce the processing time, we investigate pretreatment of tritium analysis using by microwave heating technique. The fresh pine needle samples were heated by the multi-mode microwave heating furnace at 2.45GHz. As results, it was provided to good recovery yield within one hour. This result shows more preferable for the pretreatment of tritium analysis by microwave irradiation method than the conventional method.
Index Terms: the previous treatment method for the tritium analysis, microwave heating process

研究分野：マイクロ波応用

キーワード：トリチウム分析 前処理 マイクロ波

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

トリチウムは低エネルギーβ線を放出する水素の放射性同位体であり、経口摂取による内部被ばくに関与する重要な放射性核種の一つであるが、分析前処理法が煩雑かつ長時間を要するため、その測定データは福島第一原子力発電所事故以降も十分とは言えないのが現状である。この前処理とは、試料中の水分の乾燥と有機物を燃焼・灰化する工程である。

特に、トリチウムは水分のみならず植物の光合成によって有機物中に取り込まれ、植物連鎖で畜産物や海産物にも拡散するので、環境動態まで考慮する必要がある。有機物中のトリチウムは体内に長くとどまるので、食品中のトリチウム測定は水分に含まれるトリチウム(FWT)と有機物中のトリチウム(OBT)のトータルの線量評価が求められる。

水素の放射性同位元素であるトリチウムは、比較的長い半減期(12.3年)を有し、β線(最大エネルギー18.6 keV)を放出してヘリウムに壊変する。人体に取り込まれた場合、水として全身に分布し、一部はタンパク質や、DNAなどの生体組織(有機物)に取り込まれる。生体組織に取り込まれた場合、比較的長く(生物半減期: 40日以上)体内にとどまる。そのため、体内の放射線被ばく(内部被ばく)が問題となる。

固形物(食品)内部のトリチウムが放出するβ線は、減衰のため食品表面に到達しない。トリチウムを分析するには食品から取り出す前処理が必要となる。生物試料(食品)中のトリチウム分析手法は、文部科学省放射能測定法シリーズ「トリチウム分析法」に記載されている。試料の水分を凍結乾燥法で乾燥させた後、少量(30~50g程度)試料を石英管に導入し、電気炉やガスバーナーで数時間かけて燃焼させる。放射線測定に必要な試料量を得るためには燃焼操作を複数回繰り返さなければならないので、作業時間が長く試料数が制限される。現実的な問題として、食品の安全性を担保できるだけの試料数を測定できないのが現状である。

その解決策として期待されるのがマイクロ波を利用した迅速・簡便な試料前処理である。マイクロ波は、お茶や乾燥麺などですでに利用されており、凍結乾燥法の代替手法として期待できる一方、燃焼・灰化処理については実績が少ない。また、食品によってはお茶などよりも水分量や油脂分が多い食品が多く存在する。そのため、部分的な乾燥や燃焼が課題となる。その対応として、マイクロ波の電磁界分布と出力制御に着目した。マイクロ波の交流電場が水分子に対して励起する振動モードは良く知られているが、分子構造が複雑な有機物に対しては十分に理解されていない。マイクロ波の電場や磁場が有機物に励起する振動を詳細に調べ、上記の課題の解決を目指した。

2. 研究の目的

マイクロ波を利用した食品の乾燥は、お茶や乾麺で用いられている。しかし、これらの製造ラインでは、水分の回収は行われていない。また、燃焼まで行う事例は見当たらない。今回対象とする食品は、お茶や乾麺よりも水分量や油脂分が多い食品も多く見受けられる。そのため、部分的な乾燥や燃焼と言った課題が考えられる。その対応として、マイクロ波の出力制御と電磁界分布の最適化である。今回、マイクロ波の電場と磁場の効果を明確にし、マイクロ波出力の制御を最適化することで回収効率を向上させ迅速化を図る。これらの手法によるトリチウム測定の迅速・簡便な前処理法の開発とトリチウムの分離・回収に最適なマイクロ波処理装置を開発する。

そこで、長時間を要する従来の凍結乾燥法とガスバーナーによる前処理を単にマイクロ波加熱に置き換えるのではなく、電磁界制御と出力制御と言ったマイクロ波制御法まで踏み込んだ開発を行うことが必要となる。はじめに定在波を生成するマイクロ波共振器で電場と磁場の実

験で、交流電場や交流磁場が有機物に励起する振動モードが化学反応に与える影響について知見を得ることを目指す。それらの結果を基に最適なマイクロ波処理炉を設計・制作し、出力制御の違いによる回収効率の評価を行う。一連の実験結果から、マイクロ波制御の最適化を図り、前処理の迅速化につなげる。前処理が迅速に行えれば試料点数を増やすことができ、広範囲で長期間の測定データの蓄積が必要な放射線の拡散・循環モニタリングが可能となるので、食物連鎖、生体影響、環境動態を含めた環境循環システム研究へも貢献できる。

3. 研究の方法

トリチウムの分析は、前処理で水分を回収してから液体シンチレーターで放射線量を測定する。そのため、水分回収率が重要なポイントとなる。今回の研究対象である食品は、標準試料の松葉よりも水分含有量が多くかつ油脂分を多く含んでいるので、部分乾燥や部分燃焼が深刻な問題と考えられた。その課題をクリアーするために、マイクロ波の2つの要素に着目した。一つ目は、マイクロ波を構成する電場と磁場の最適利用法の確立である。二つ目が、マイクロ波出力制御法の最適化である。マイクロ波の出力制御には、最大出力値を変化させて出力制御を行う一定出力制御と最大値は変えずに on/off 制御により平均出力を変えるパルス制御の2つの方法がある。双方の特徴を生かした制御方法を開発する。

まず、マイクロ波を構成する電場と磁場の最適利用法の確立のために、マイクロ波共振器を用いる。マイクロ波共振器は定在波を生成し電場と磁場に分ることができる。さらに共振器では、電場と磁場の分離だけでなく、波の重ね合せによる増幅効果が期待できるので、小型で高エネルギー密度の加熱炉となる。

次にトリチウム分析の前処理用のマイクロ波反応炉を設計するために、既存のマイクロ波加熱炉で乾燥、燃焼灰化処理し問題点を明らかにする。試料は、これまでに指標植物として燃焼法による分析データがある松葉(含水率:約60%)を用い、従来法との比較を行う。水分捕集はコールドトラップを用い、加熱温度や水分蒸発量を評価する。流すガスは、乾燥処理には窒素ガスを、有機物灰化処理には酸素と窒素の混合ガスを流す。水分回収率が不十分なときには、液体窒素を用いた冷却装置を用いる。回収した水分中の残留有機物を評価するために、吸光光度計で、200 nm 付近に見られるスペクトルを測定する。

既存のマイクロ波加熱炉で得られた知見を考慮して、トリチウム分析の前処理用のマイクロ波反応炉を設計する。トリチウムの分析は、既存の低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置(日立アロカ, LSC-LB-5)で行う。同一試料について複数回の繰り返し処理・分析を行い、処理精度の確認も行う。

4. 研究成果

マイクロ波を構成する電場と磁場の最適利用法について検討した。そのため、マイクロ波共振器を用いた実験を行った。試料は、水分量が多い食品を想定して、水の蒸留試験をおこなった。用いた実験装置を図1に示す。マイクロ波発振器(周波数:2.45 GHz)はマイクロ波発振器、パワーモニター、アイソレーター、共振器型加熱炉、還流法ガラス器具から構成される。この実験結果は、マイクロ波

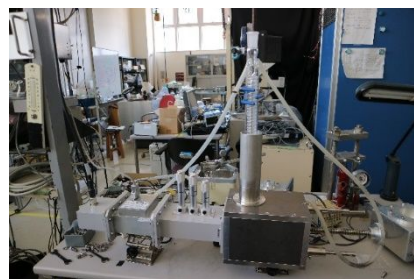


図1 マイクロ波共振器実験装置

の電界加熱の方が蒸留速度は速かった。また、マイクロ波出力制御では、パルス制御では定期的に強いマイクロ波が印加されるため、そのタイミングで突沸が起こり問題となったので、一定出

力制御の方がマイクロ波出力制御法として適していることが明らかとなった。

トリチウム分析の前処理に適したマイクロ波反応炉の設計指針を得るために、既存のマイクロ波加熱炉で松葉の乾燥、燃焼実験を行った。使用したマイクロ波加熱炉を図2に示す。この炉は、2.5kWの発振器が五台ついており、最大出力12.5kWである。発振周波数は、2.45GHzで、出力制御はパルス制御である。炉の構造は、容積が0.92m³のステンレス製で六角形の構造と金属製のスターラーが回転することでマイクロ波が均一になるように設計されている。



図2 マイクロ波加熱炉実験装置

図3にマイクロ波加熱炉内に設置した加熱試料の様子を示す。マイクロ波加熱炉内に、約80gの松葉を石英管に詰めて毎分2リットルの窒素ガスを流し、下流側にはコールドトラップで水蒸気を回収した。加熱条件は、マイクロ波出力0.5kW、1.0kW、2.5kWの3つの条件で加熱乾燥し、比較した。図4にそれぞれの条件で加熱処理した後の松葉試料と回収した水を示す。水分回収率は1.0kWが一番高く97%で、0.5kWでは93%、2.5kWでは83%であった。



図3 マイクロ波加熱炉内の様子

水分回収率は1.0kWが一番高く97%で、0.5kWでは93%、2.5kWでは83%であった。

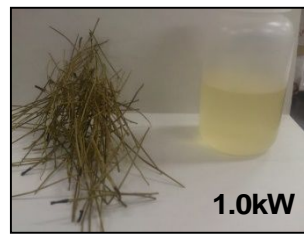
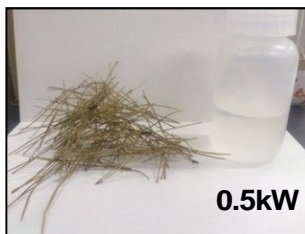


図4 回収した水分の写真

1.0kWと2.5kWの実験では回収した水分に色がついていたので、分光光度計(アズワン製ASUV-3100PC)で有機物の量を評価した。その結果を図5に示す。2.5kWでは、400nm以上の波長でも吸収が多く、多くの有機物が含まれた。これらのことから、マイクロ波出力が大きいと残留有機物が回収水分中に混入して水分の回収率が下がることが明らかになった。これらの結果から、マイクロ波出力ピーク値が低い一定出力の方が適しており、かつコールドトラップで水蒸気を回収する前に酸化触媒で残留有機物を分解する必要性が示唆された。

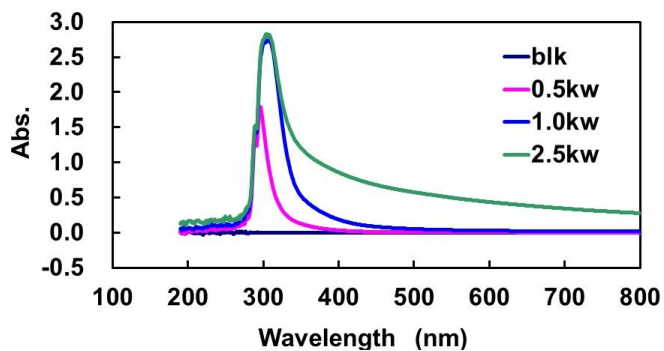


図5 回収した水の分光光度計の結果(FWT)

これらの実験の結果を踏まえ図6に示すマイクロ波加熱炉に至った。この炉は、ステンレス製で六角形の断面

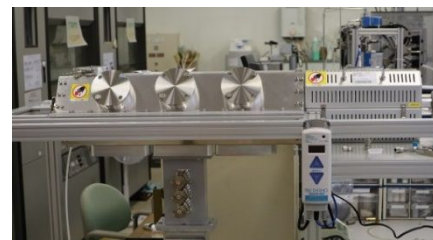


図6 トリチウム分析の前処理用マイクロ波加熱炉

をもつ長い形状で石英管を貫通させて設置できる構造になっている。マイクロ波発振器は、ガス導入口の上流・真ん中・下流側に必要に応じて3台設置できる。一定出力制御の発振周波数2.45GHzの半導体発振器を使用した。図7に示すように、既存の装置による実験で問題となっ

た有機物を取り除くためにガス導入の下流側に酸化触媒と赤外線加熱炉を配置し、さらにガス下流側に水分回収のためのコールドトラップを設置した。

トリチウム分析の前処理は、自由結合型トリチウム(FWT)の分析のための乾燥工程と有機物中のトリチウム(OBT)を分析するための燃焼工程の2種類がある。乾燥工程は乾燥窒素ガスを流しながらマイクロ波加熱すると、燃焼させずに乾燥のみを行うことができるので、自由結合型トリチウム(FWT)を水分として回収できる。一方、有機物中のトリチウム(OBT)を分析するための燃焼工程は、窒素と酸素の混合ガスあるいは酸素ガスを流しながら加熱することで燃焼させる。今回、マイクロ波加熱による燃焼実験を乾燥松葉で行った。



図7 下流側に設置された酸化触媒と赤外線加熱炉

図8にマイクロ波加熱炉内に設置した石英管を示す。石英管内部には、約14gの乾燥松葉とガス下流側に触媒を入れた。さらに、ガス上流側から下流側に燃焼が進行するように、ガス上流側に着火のための電界集中機構を設けた。この石英管を図6のマイクロ波加熱炉内部に設置し、毎分1リットルの酸素ガスを流して、マイクロ波加熱実験を行った。ガス下流側の触媒は赤外線加熱炉で450℃に加熱し、発生した水蒸気はコールドトラップで水分として回収した。



図8 マイクロ波加熱炉内に設置した石英管

図9に燃焼中のマイクロ波加熱炉内部の写真を示す。乾燥松葉のガス上流側から徐々にガス下流側に燃焼が進行し、水分回収に成功した。酸化触媒の効果を検証するために、回収した水分の有機物含有量を分光光度計(アズワン製 ASUV-3100PC)で測定した。図10に回収した水分の吸収分光測定の結果を示す。有機物の吸収ラインである300nmで触媒の有り無しで大きな差が見られる。これらの結果から、酸化触媒が十分に機能してコールドトラップで水蒸気を回収する前に有機物が分解されていることが確かめられた。



図9 燃焼中のマイクロ波加熱炉内部

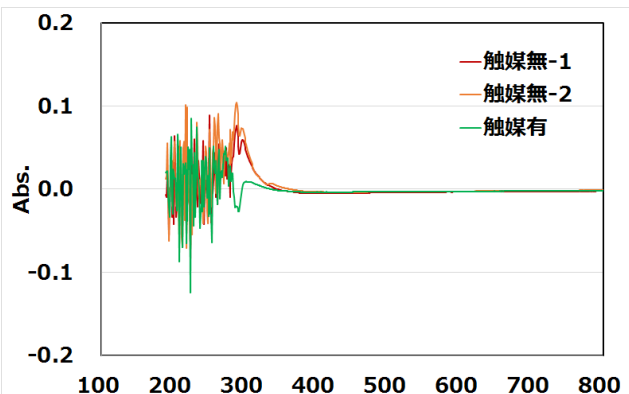


図10 回収した水分の吸収分光測定の結果(FWT)

本課題では、食品の燃焼にまでは至らなかった。問題となったのは、乾燥後の着火方法である。油脂分が多い松葉の場合には、マイクロ波が一部に集中するようにアンテナを用いることで着火することができたが、アルファ米のように油脂分の少ない食品の場合には、同じ方法で着火させることができず、今後の課題となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高山 定次
2. 発表標題 マイクロ波加熱によるトリチウム分析のための前処理法の開発
3. 学会等名 日本電磁波エネルギー応用学会
4. 発表年 2018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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------