

LSC-LB7を用いたトリチウム分析における精度向上の検討について

武田海 芝啓太 金崎祥 松本純子 浮田陽一

1. はじめに

本県では、伊方発電所の周辺住民等の被ばく線量の推定及び評価を目的として、発電所から 5km 圏内の陸水、降水および海水のトリチウム濃度を測定してきた。また、緊急事態が発生した場合への平常時からの備えとして発電所からおおむね 30km 圏内の陸水のトリチウム濃度も測定してきた。

東京電力福島第一原子力発電所のALPS 処理水放出により、近年トリチウムへの関心が高まっているが、環境中に含まれるトリチウム濃度はかなり低く、現行の方法では測定している試料のほとんどが検出下限値未満である。

そこで、トリチウム分析における精度向上を図るため、液体シンチレーションカウンタ(以下「LB7」という。)を用いた解析条件の最適化を検討した。

2. 使用機器等

・試薬

過マンガン酸ナトリウム
過酸化ナトリウム
液体シンチレータ(Ultima Gold LLT)
BG 水(低トリチウム水)

・トリチウム測定装置

(液体シンチレーションカウンタ)
HITACHI AccuFLEX LSC-LB7 (2台)

・測定容器

テフロン(R)スーパーPFA 製ボトル(ビッグボーイ)細口 100mL

3. 測定方法

3.1. 現行方法

本県では、放射能測定法シリーズに準拠し、減圧蒸留を行った 50mL の試料を 50mL のシンチレータと混合して測定試料としている。30 分測定を 35 回行い、そのうちの 25 回(750 分間分)を採用している。BG 水を用いて同様に測定したバックグラウンド(以下「BG」という。)の値を試料の値から差し引いて、トリチウム濃度を算出している。

LB7 を用いたトリチウム分析では、トリチウムから発せられたベータ線が液体シンチレータを介して光電子となり、検出されている。また、LB7 は任意のエネルギー領域を設定することで、その範囲で検出された光電子の総量を出力することができる。すなわち、LB7 で測定できる 0.05-200keV のエネルギー領域の中で、トリチウム測定用の ROI (Region of interest)を設定することで、トリチウムが効率よく測定できる。この ROI は FOM(Figure of merit)と呼ばれる値を用いて決められており¹⁾、下記の式①で求められる。図 1 に FOM と BG の計数率及び計数効率のグラフを示す。

$$FOM = \frac{\text{計数効率}(\%)^2}{\text{バックグラウンド計数率}(cpm)} \dots \textcircled{1}$$

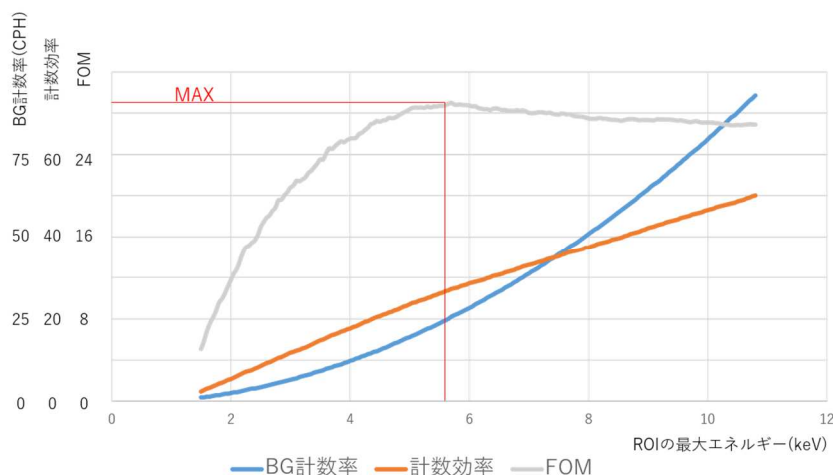


図1 FOMによるROIの最適化

計数効率は、トリチウム濃度が既知の標準トリチウム溶液を用いて測定している。

ROI を広くとるほど計数効率が大きくなるが、BGのカウント数が増加し、FOMが低下するため、FOMが最大となるROIが最適なROIとされている。

スペクトル解析をしない測定では、一般的にFOMが用いられている。

しかし、試料や測定時間などが変わることによって、バックグラウンドのスペクトルも変化し、標準トリチウム溶液と環境試料ではスペクトルが異なるため、試料や測定のためにFOMを計算しROIを設定するのが理想であるが、試料ごとに行うことは困難である。

3.2. 検討方法

試料ごとに計算が困難なFOMを用い

ることなくROIを試料ごとに最適化するため、LB7におけるROIを固定しないスペクトル解析法を検討した。

LB7では0.05-200keVのエネルギー領域を測定しているが、トリチウムのスペクトルはLB7において約2keVを中心としたピークを示すため、今回の分析では0-12keVのスペクトルデータを抜き取った。また、現行法と条件を揃えるため、750分間のデータを採用した。

例として、トリチウムが検出された令和5年度5月採取の海水の結果を図2に示す。視覚的な補助として、10区間移動平均を示した。1~3.15keVの間(黄線間)でカウント数にBGと差が見られる。このような領域をROIとし、分析する手法を検討した。

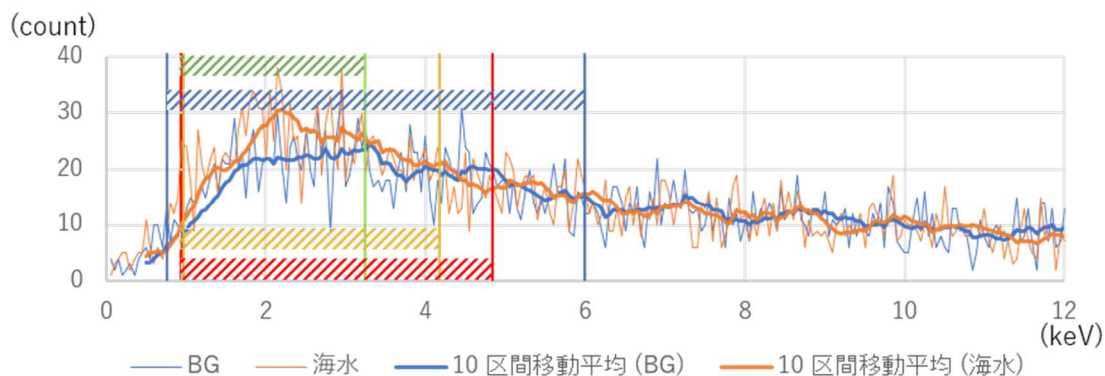


図2 令和5年度海水スペクトル

4. 評価方法の検討

ROI の選択方法に関して、検討を行った。図 2 で示した海水のスペクトルにおいて、試料の正味スペクトルと取得する 3 つの範囲(緑線間 1-3.15keV, 黄線間 1-4.1keV, 青線間 0.8-6keV)を検討した。1~4.85keV(赤線間)が現在モニタリングで用いている ROI である。検討した 3 つの ROI の内 2 つは、図 2 で示したように BG と試料の 10 区間移動平均に差がある部分(緑線間, 黄線間)を抽出した。もう 1 つの ROI は試料と BG のスペクトルがともに横ばいとなる 6keV を境界とした区間(青線間)を設定した。

5. 結果

表 1 に令和 5 年度 5 月採取の海水における ROI の広さと結果の関係を示す。ROI を狭めるほど計数率における検出下限値が下がっていることがわかる。これは検出下限値が式②③に示すように、ROI 内の BG と試料のカウント数の合算から求められるためである。そのため、10 区間移動平均で BG と試料に差が見られる部分のみを抽出することによって、正味計数率を維持したまま検出下限値を下げる可以考虑。

一方で、ROI を広げた場合には検出下限値は上がるものの、計数効率が上がるため、放射能濃度換算でより誤差の少ない分析が可能であると考えられる。

表 1 令和 5 年度海水の ROI の広さと結果の関係

ROI(keV)	0.8-6 青線間	1-4.85 赤線間	1-4.1 黄線間	1-3.15 緑線間
正味計数率(CPM)	0.325	0.248	0.297	0.239
検出下限値(CPM)	0.260	0.233	0.212	0.189
効率(%)	29.0	26.0	23.3	18.0

$$\text{正味計数率} = \frac{N_s}{t} - \frac{N_b}{t} \quad \dots \text{②}$$

$$\text{検出下限値} = 3 \times \sqrt{\left(\frac{N_s}{t}\right)^2 + \left(\frac{N_b}{t}\right)^2} \quad \dots \text{③}$$

N_s, N_b : 計数值(試料, BG), t : 測定時間

以上のことから、トリチウム濃度が検出下限値付近の試料に関しては、BG と試料の差が見られるなるべく狭い ROI を抜粋し分析するのが適当であり、検出下限値を大きく上回る試料は ROI を広くとって信頼性を担保することができると考えられる。

ROI の検討結果をうけて、令和 4 年度および令和 5 年度に採取した試料のうち 22 試料について、スペクトル解析を行った。検討法の各 ROI は前述の図 2 の海水のように、スペクトルを作成し、差がある部分を用いた。

その結果、トリチウムが検出されたもの

(灰色部分は不検出)を表 2 に示す。これまでの方法に比べて検出下限値が約 8 ~ 19% 下がった。その中でも図 3 に示す八幡浜市第 3 水源地の試料では現行法(赤線間)でトリチウムは検出下限値以下であったが、今回検討法(緑線間)での分析では検出下限値を上回った。

また、令和 5 年度放射能水準調査におけるクロスチェックの試料についても同様に分析した。その結果を図 4 および表 3 に示す。大きく検出下限値を上回る試料については、前述のとおり、ROI を広くとることで、標準誤差が小さくなり、より信頼性の高い分析となった。

表 2 現行法と検討法の比較

試料	R4 降水 11 月		八幡浜市 第 3 水源地		R5 海水 5 月		R5 降水 4 月		R5 降水 5 月		R5 降水 9 月	
	現行法	検討法	現行法	検討法	現行法	検討法	現行法	検討法	現行法	検討法	現行法	検討法
ROI(keV)	1-4.85	0.6-3.7	1-4.85	1.3-4.1	1-4.85	1-3.15	1-4.85	0.8-3.4	1-4.85	0.7-4	1-4.85	1-4.2
正味計数率 (CPM)	0.448	0.415	0.221	0.230	0.248	0.239	0.356	0.375	0.447	0.453	0.339	0.365
検出下限値 (CPM)	0.264	0.237	0.233	0.205	0.233	0.189	0.236	0.197	0.238	0.219	0.239	0.221
検出下限値 減少率(%)	10.2		12.0		18.9		16.5		7.98		7.53	
効率(%)	24.8	21.3	24.8	20.7	26.0	18.0	26.0	20.1	24.8	22.6	24.8	22.8

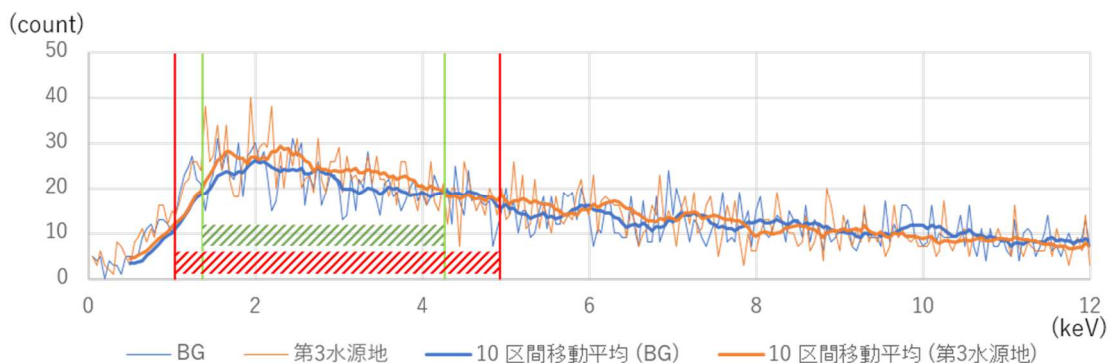


図3 八幡浜市第3水源地スペクトル

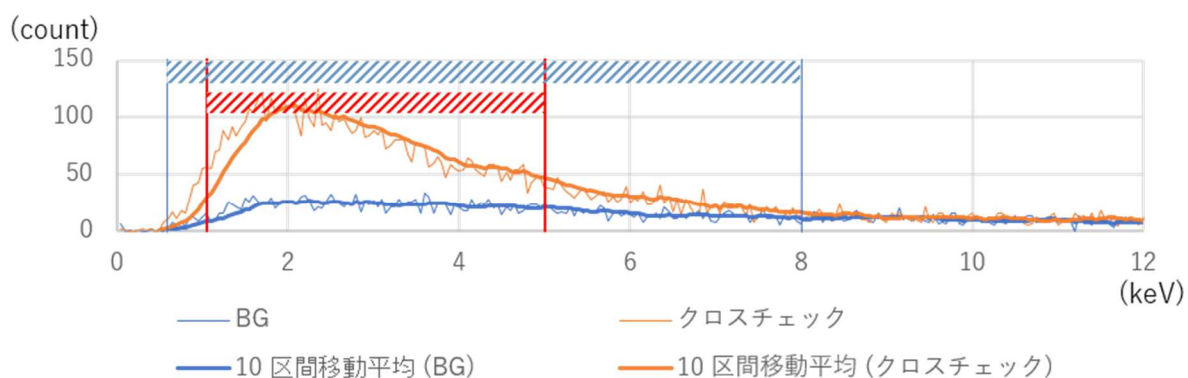


図4 クロスチェック標準トリチウム溶液スペクトル

表3 標準トリチウム溶液の結果比較

	測定値		基準値
	現行法	検討法	
分析方法	現行法	検討法	—
ROI (keV)	1-4.85	0.65-8	—
正味計数率(CPM)	5.81	6.96	—
検出下限値(CPM)	0.356	0.414	—
効率(%)	25.7	30.4	—
放射能濃度(Bq/L)	7.53	7.64	7.66
標準誤差(Bq/L)	0.154	0.151	—

6. まとめ

現行法に対して、今回検討した方法は検出下限値が有意に下がる結果となった。また、大きく検出下限値を上回る試料では、より信頼性の高い値が得られた。

さらに検討法では試料と BG との差が視覚的に明確になり、トリチウムが検出されていることが分かりやすく、分析方法の理解の一助となると考えられた。

一方で、今回 ROI の選択に統一的な規則を定義できた訳ではなく、同一試料においても分析者によって結果に差が生じることが考えられる。そのため引きつづき、今回検討に用いた 10 区間移動平均以外の様々な関数でのフィッティングを検討し、分析精度の向上を図りたい。

【参考文献】

- 1) 放射能測定法シリーズ No.9 トリチウム分析法, 文部科学省, (2002)