

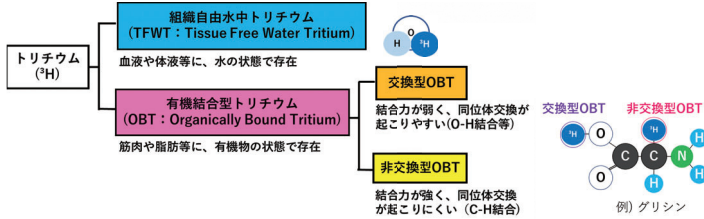
海産物に含まれる有機結合型トリチウム (OBT) の迅速分析手法の開発

日本原子力開発機構 廃炉環境国際共同センター
放射線計測技術開発グループ 藤原 健壮

緊急時のモニタリング手法を確立することは、環境中へ放出された放射性物質による影響を評価する重要な手段である。 β 線放出核種の一つである有機結合型トリチウム(OBT)の測定は、煩雑な前処理が必要であるため、前処理工程の時間を短縮させ、技術的に簡便な方法を開発することが必要である。

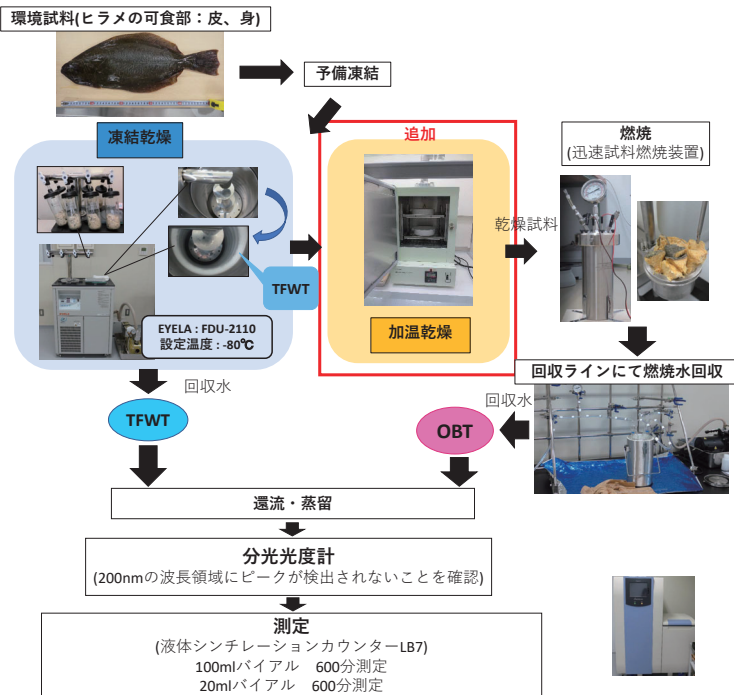
OBT分析における、モニタリング評価を想定した検出限界(1Bq/kg)を目標とした前処理手法を開発した。福島のヒラメを試料として用いて検討、実験を行ったところ、通常14日程度かかる乾燥工程を3日程度に、通常7日程度かかる燃焼工程を1日程度に短縮できた。

有機結合型トリチウム(OBT)について



- タンパク質などの有機物の状態で存在している有機結合型トリチウム(OBT)の場合は、乾燥工程により生物の組織内自由水に含まれるトリチウム(TFWT)を除去した後に有機物を燃焼し水を回収するといった前処理を施す必要がある。
- 食物として摂取した場合、内部被ばくの評価をする上で、存在形態及び実効線量の異なるTFWT及びOBTを分別してモニタリングをすることが重要である。

前処理方法について



検討項目

○乾燥工程に加熱乾燥を追加

従来の乾燥工程である凍結乾燥に加熱乾燥を組み合わせた方法により、トリチウム分析の短縮化を検討した。

○乾燥工程の供試料量の最適化

凍結乾燥瓶1本あたりの試料の充填量を変化させ、乾燥時間を確認した。同時に試料を1cm程度の大きさにすることにより表面積を大きくし、乾燥時間の短縮を図った。

○燃焼回数の合理化

凍結乾燥を行った乾燥試料を用いて検出下限値を基に燃焼回数の合理化を図った。

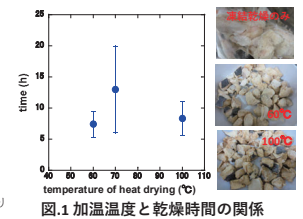
結果

○乾燥工程に加熱乾燥を追加

表1 乾燥工程における乾燥日数と乾燥重量の変化

測定法	総供試量 (g)	凍結乾燥		加熱乾燥			
		時間 (日)	重量 (g)	TFWTの回収率 (%)	時間 (日)	重量 (g)	TFWTの回収率 (%)
※公定法	3090	14(恒量)	717	76.8	-	-	-
a	3001	1.0	1312	56.3	-	-	-
b	3100	3.0	736	76.3	1.0	735	76.3
c	3050	5.0	662	78.3	2.0	661	78.3

※ 文部科学省 放射能測定法シリーズ9 トリチウム分析法 平成14年改訂より



公定法で約3000gの生試料の乾燥を行った場合、恒量になるまでに13日。凍結乾燥で約70%以上のTFWTを回収後、加熱乾燥し、約7日に短縮した。60-100°Cにおいては時間に差がなかったが、100°Cで変色が見られた。

○乾燥工程の供試料量の最適化

表2. 乾燥工程における乾燥重量と処理日数の関係

供試量 (g)	凍結乾燥		加熱乾燥			
	時間 (日)	重量 (g)	TFWTの回収率 (%)	時間 (日)	重量 (g)	乾燥工程で除去した水分率 (%)
① 400.5	2.0	97.5	75.7	2.0	84.3	79.0
② 300.8	2.0	68.7	77.2	2.0	65.0	78.4
③ 200.9	1.0	58.8	70.7	2.0	43.9	78.2
④ 106.5	1.0	25.1	76.4	2.0	24.0	77.5

400g~100gにおいて3~4日程度で恒量に到達していることが確認された。検出限界(1Bq/kg)を目標とした場合、このシステムでは、サンプル処理量と時間を考えたときに200gが最適と考えられる。

○燃焼回数の合理化

表3. 乾燥工程における乾燥重量と処理日数の関係

採取日	TFWT(Bq/kg-生)			OBT(Bq/kg-生)			
	濃度	DL	預託実効線量 (mSv)	濃度	DL	預託実効線量 (mSv)	
5回燃焼	2016.12.22	ND	0.96	6.3E-07	ND	0.16	2.5E-07
1回燃焼	2016.12.22	ND	0.96	6.3E-07	ND	0.73	1.1E-06
1回燃焼	2018.12.18	ND	0.90	5.9E-07	ND	0.84	1.3E-06

本迅速燃焼装置では、1回の燃焼で乾燥試料は最大10g程度。燃焼水は約5ml回収できる。通常20回燃焼し、100mlバイアルで測定していたが、合理化のため、5回燃焼及び1回燃焼し、20mlバイアルにて測定を行った。その状況においても検出限界(1Bq/kg)を下回る結果となった。1回の燃焼操作は1日程度かかってしまうため、これまで3週間程度かかっていた工程を1日で終わらせることが可能となった。

ちなみに、検出限界の値を用いて内部被ばく評価を行ったとしても年間の被ばく線量の限度である1mSvを大きく下回る結果となっている。

まとめ

- 検出限界(1Bq/kg)を目標として、供試料量の合理化と凍結乾燥に加熱乾燥を組み合わせることで乾燥に要する時間は、2週間程度かかっていた状態から約4日に短縮した。

- OBT分析においても、乾燥試料の合理化を行い、これまで1週間程度かかっていた燃焼工程が1日に短縮された。

- 本法におけるTFWT及びOBTの測定結果はすべて検出限界値未満であり、預託実効線量に換算するとnSvレベルであった。