

論 文

液体シンチレーションカウンタにおける 波高スペクトルへの化学クエンチングの影響

原 正憲^{a,*}, 中野 史菜^a, 阿部 信介^a, 中山 将人^a

^a富山大学 研究推進機構 水素同位体科学研究センター
〒930-8555 富山市五福 3190

Effect of chemical quenching on pulse height spectrum
in liquid scintillation counter

Masanori HARA^{a,*}, Fumina NAKANO^a, Shinsuke ABE^a, Masato NAKAYAMA^a

^aHydrogen Isotope Research Center

Organization for Promotion of Research, University of Toyama

Gofuku 3190, Toyama 930-8555

masahara@ctg.u-toyama.ac.jp

(Received February 19, 2016; accepted March 15, 2016)

Abstract

In liquid scintillation counting, quenching correction of the sample is indispensable for measuring radioactivity. The chemical quenching is corrected by a quenching correction

curve obtained with a quenched standard set. In this work, the applicability of a quenched standard set to various chemical substances was studied using angle distributions in 2D scintillation spectra. The quenching dependence of the angle distributions measured from various chemical quenchers was found to coincide. Namely, the relationship between the chemical quenching and the angle distribution is maintained whatever chemical substances is used. This result indicates that a single quenched standard can be used to correct for the effect of various chemical quenchers.

1. 緒言

液体シンチレーションカウンタ(以下, LSC)はトリチウムの測定に広く利用されている。しかし, LSCによるトリチウム測定では, 試料毎にクエンチングの影響を補正する必要がある[1]。クエンチングには化学クエンチングとカラークエンチングの2種類がある。液体シンチレータの発光過程を妨げるのが化学クエンチングである。一方, カラークエンチングは発光により発生した光子が試料中に共存する化学種により吸収されてしまう現象である。このため, カラークエンチングは有色の試料で強く表れる。

通常, 化学クエンチングはクエンチドスタンダードを使用する事で補正が行われている。化学クエンチングを引き起こす化学種は無数にあり, 水分子も化学クエンチングを引き起こす。このため, 液体シンチレータに試料を混合したシンチレータカクテルは, 化学クエンチングの影響をつねに受けている。化学種により化学クエンチングの強さは異なっており, 水による化学クエンチングの影響は弱い, ニトロメタンは強い化学クエンチングを引き起こす事が知られている。一般的に, 試料中の化学クエンチングを引き起こす化学種が市販のクエンチドスタンダードで用いられている化学種と異なっても, 市販のクエンチドスタンダードがクエンチング校正に使用される。

クエンチングを引き起こす化学種が異なっても, 市販のクエンチドスタンダードが使用できるかを検討した。クエンチングの影響を評価するために, 以前報告した自

作の LSC[2]により 2 本の光電子増倍管(PMT)それぞれからのパルスの波高値を用いて 2 次元のシンチレーションスペクトルを測定した。

2. 実験

化学クエンチングを施したシンチレーションカクテルを調製した。化学クエンチングを引き起こすクエンチャーとして水、アセトン及びニトロメタンを使用し、シンチレータには Ultima Gold AB を用いた。バイアルにはガラスバイアルを用いた。調製したカクテルの詳細を Table 1 に示す。いずれのカクテルにおいても、相分離は見られず、無色の均一相を保持した。

2 次元のシンチレーションスペクトルの測定には、以前報告した自作の LSC を使用した[2]。この装置では、それぞれの PMT からのパルス出力を同時計数回路に通す事により矩形波のトリガー信号を生成している。このトリガー信号を受けてデジタルオシロスコープにより 2 本の PMT のパルス信号を記録し、波高値を求めている。得られた波高値より 2 次元のシンチレーションスペクトルを得ている。

市販の LSC ではクエンチングの強さを評価するのに、外部のガンマ線源より誘起されたコンプトン電子のシンチレーションスペクトルを使用している。このため、本実験では ^{22}Na の密封線源を用いて試料カクテルのコンプトン電子のシンチレーションスペクトルを測定した。クエンチングの強さの指標として、ガンマ線照射により得られたシンチレーションスペクトルを 3:1 に分割する波高値を ESCR (External Standard Channel Ratio) として評価した。具体的には、2 本の PMT より得られた波高値を加算し、全波高値(PMT1+PMT2)のヒストグラムを作成し、シンチレーションスペクトルを得た。このシンチレーションスペクトルの面積比が 3:1 となる波高値を ESCR 値としている。この ESCR 値は ALOKA 社製の市販の LSC による評価と同じ手法である。一方、2 次元シンチレーションスペクトルでは縦軸、横軸に PMT それぞれの波高値を取り、2 次元ヒストグラムを作成してシンチレーションスペクトルを得

Table 1. Specification of samples

Sample ID	Reagent as quencher	Scintillator /g	Quencher /g
A1	Water	14.623	----
A2	Water	13.633	1.005
A3	Water	12.663	1.999
A4	Water	11.690	2.981
A5	Water	10.696	3.997
A6	Water	9.724	4.979
D1	Acetone	14.661	----
D2	Acetone	13.655	0.691
D3	Acetone	12.720	1.533
D4	Acetone	11.743	2.366
D5	Acetone	10.727	3.146
D6	Acetone	9.754	3.925
D7	Acetone	8.740	4.612
D8	Acetone	7.741	5.438
N1	Nitromethane	14.830	----
N1.2	Nitromethane	14.781	0.027
N1.3	Nitromethane	14.771	0.049
N1.4	Nitromethane	14.760	0.085
N1.5	Nitromethane	14.855	0.113
N1.6	Nitromethane	14.733	0.131
N1.7	Nitromethane	14.740	0.147
N2	Nitromethane	14.670	0.170
N3	Nitromethane	14.599	0.253
N4	Nitromethane	14.477	0.340
N5	Nitromethane	14.374	0.425
N6	Nitromethane	14.271	0.512

ている。1次元シンチレーションスペクトルと2次元シンチレーションスペクトルの例を Fig.1 に示す。

3. 結果と考察

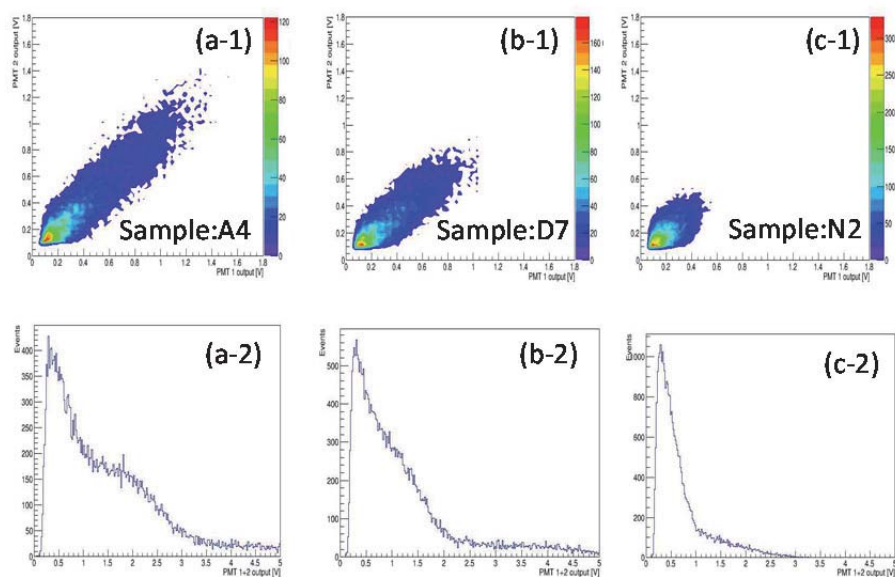


Fig. 1. 1D and 2D scintillation spectra of various chemical quenchers.

3.1 シンチレーションスペクトル

Fig. 1 に ^{22}Na により得られたいくつかのシンチレーションスペクトルを示す。上段は2次元シンチレーションスペクトル，下段はその1次元シンチレーションスペクトルである。2次元シンチレーションスペクトルは45° 右上方に広がっている事が分かる。これは、それぞれの PMT より同程度の波高パルスを出力している事を示す。クエンチャーは Fig. 1(a-1)では水，(b-1)はアセトン，(c-1)はニトロメタンである。クエンチャーが異なってもこの傾向に変わりがないが、クエンチングが強くなるに従い波高値が小さくなっている事が分かる。なお、これらスペクトルは 30000 回の計数より得た。クエンチングの傾向は下段の1次元シンチレーションスペクトルにも現れており、クエンチングが強くなるに従い波高値が低い方向に圧縮されている。

3.2 発光の角度分布

シンチレーションスペクトルに及ぼす様々なクエンチャーの影響を評価するため

に、1次元及び2次元シンチレーションスペクトルを使用する。市販のLSCでは1次元のシンチレーションスペクトルより評価しているが、今回はさらに2次元のシンチレーションスペクトルも用いて評価する。評価手法は、1次元のスペクトルよりESCR値を求める。2次元のシンチレーションスペクトルより、スペクトルの広がりを実評価する。それぞれの光電子増倍管より得られた波高値よりスペクトルの原点からの角度として、以下の式より評価した。

$$\theta = \tan^{-1} \left(\frac{PMT2}{PMT1} \right) \quad (1)$$

ここで、PMT1及びPMT2はそれぞれのシンチレーションパルスの波高である。得られたパルス毎の角度の分布を分析し、スペクトルの広がりとした。

Fig. 2にクエンチャーとして水を用いた際の ^{22}Na より誘起されるコンプトン電子の1次元シンチレーションスペクトルを示す。A1からA6になるに従いクエンチングは強くなっている。これに従いシンチレーションスペクトルは低波高側に圧縮されている。これは、クエンチングに伴い発光が阻害されているため、発光強度が低下し、PMTで検出されるシンチレーション発光のパルス波高が小さくなるためである。Fig. 3に2次元シンチレーションスペクトルより得た角度の分布を示す。また、図中の実線は正規分布に対応するものである。全計数はいずれも30000カウントで統一した。クエンチングの小さなA1からA6になるに従い、角度分布が広がる傾向が見られた。しかし、大きな角度分布の広がりの変化ではない。同様に、Figs. 4, 5にアセトンを用いた結果を示す。Fig. 5に示す角度の分布も水と同様にクエンチングが強くなるに従い広がる傾向が見られた。次に、Figs. 6, 7にニトロメタンの結果を示す。クエンチングに伴う角度の分布の変化はクエンチャーとして水、アセトンを使用した場合と同様であった。つまり、角度の分布は化学クエンチングが強くなると広がる傾向があるが、その変化は大きくなく、クエンチャーを変えても変化の傾向は同様である事が分かった。次に、これを定量的に示すために、角度の分布の標準偏差を求め、それぞれの試料のESCRとの関係を検討した。その結果をFig. 8に示す。横軸

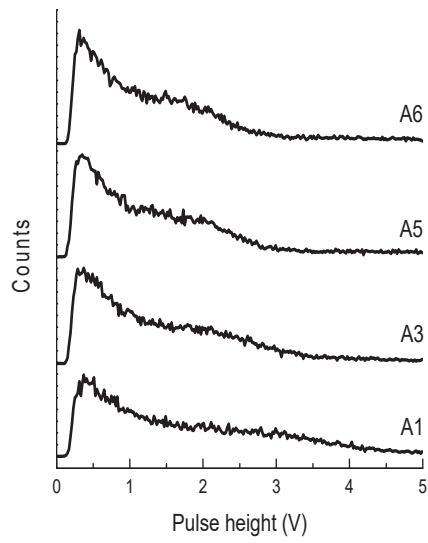


Fig. 2. 1D scintillation spectra of quenched cocktails by water.

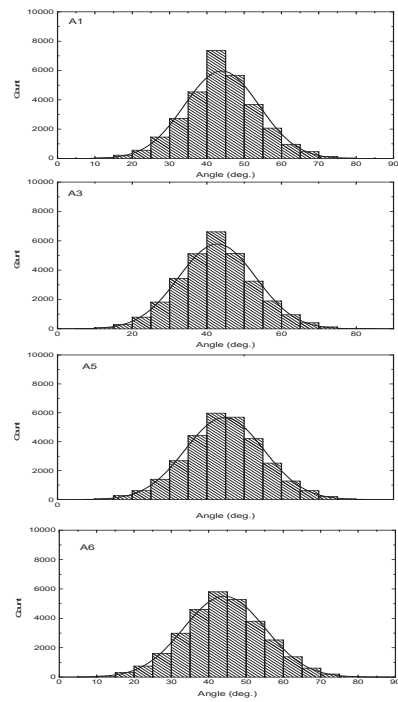


Fig. 3. Angle distribution from quenched cocktails by water.

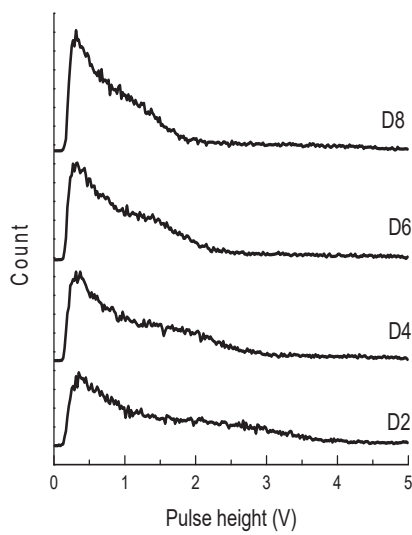


Fig. 4. 1D scintillation spectra of quenched cocktails by acetone.

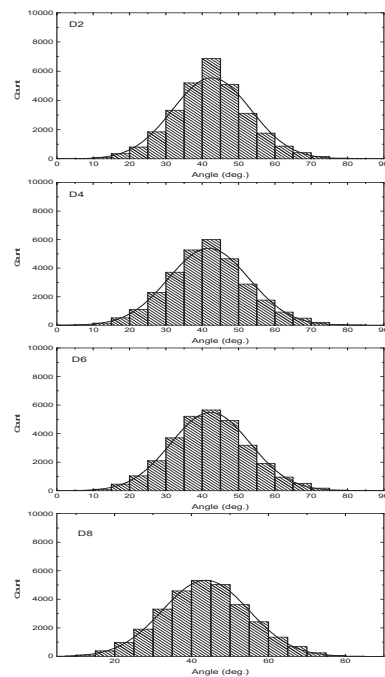


Fig. 5. Angle distribution from quenched cocktails by acetone.

は ESCR を表し、1次元のシンチレーションスペクトルのスペクトル面積を 3:1 に分

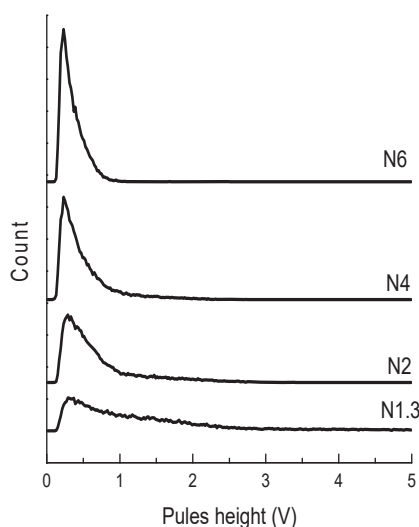


Fig. 6. 1D scintillation spectra of quenched cocktails by nitromethane.

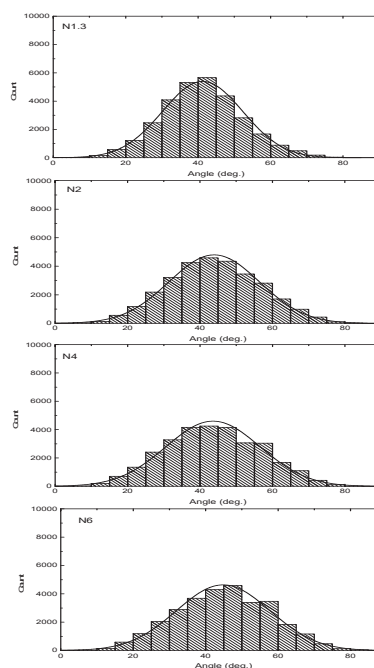


Fig. 7. Angle distribution from quenched cocktails by nitromethane.

割する波高値を示す。この図で示した ESCR の変化の範囲はクエンチングに伴う大きなスペクトルの圧縮を含んでいる(Fig. 1 参照)。縦軸は角度の分布の標準偏差であり、2次元シンチレーションスペクトルの対角線からの広がりに対応している。角度の分布は、クエンチングにより波高値が小さくなっても、 3° 程度の変化である事が分かる。また、水、アセトン、ニトロメタンとクエンチャーを変えても、変化の傾向は一致している。これは、クエンチャーとして化学物質を変えても、同様の変化が起こる事を示唆している。言い換えると、ESCR が同じであれば、化学クエンチャーを変えても同じ角度の分布を持ち、 γ 線により誘起された2次元シンチレーションスペクトルも同じになる。即ち、市販のクエンチドスタンダードで様々な化学物質で引き起こされる化学クエンチングを補正できる事を示している。また、この傾向から逸脱する場合は、化学クエンチング以外のカラークエンチングの影響が現れている事を示唆する。2次元スペクトルからの角度分布を利用する事により、化学クエンチングとカラークエンチングを分けて評価できる可能性がある事が示された。

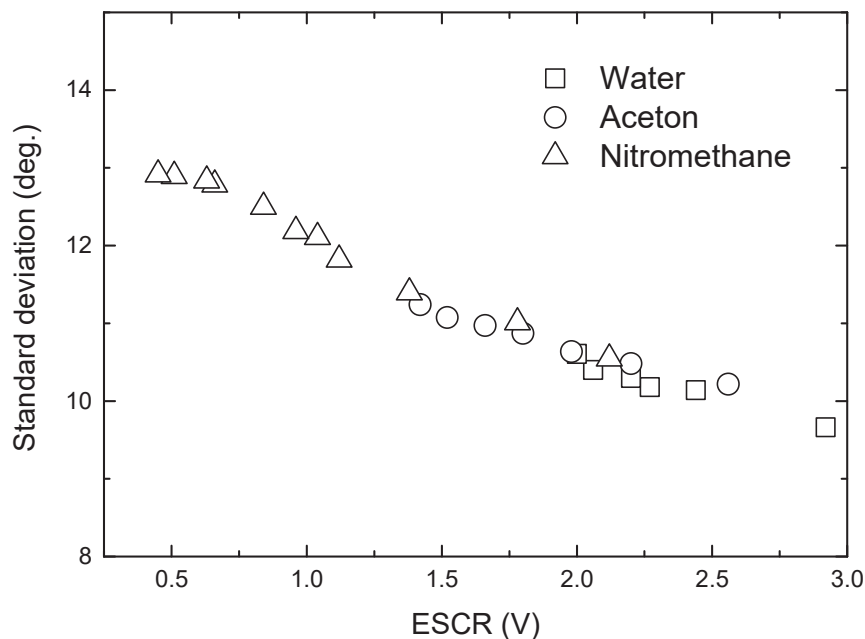


Fig. 6. Quenching dependence of angle distribution in various chemical quenchers.

5. まとめ

LSC による ^3H , ^{14}C の放射能測定で使用される市販のクエンチドスタンダードで様々な化学種による化学クエンチングが補正できるかを検討した。様々な化学物質により化学クエンチングを施したシンチレーションカクテルの1次元及び2次元シンチレーションスペクトルを測定した。1次元シンチレーションスペクトルからクエンチングに伴う波高の変化, 2次元シンチレーションスペクトルからそれぞれの PMT で観測される波高値の広がりの評価を行った。広がり評価は2次元シンチレーションスペクトル状での波高値の広がりを角度に換算して行った。その結果, 化学クエンチングが強くなるに従い, 角度の広がりが大きくなる傾向が見られたが, その変化は顕著ではなかった。その変化は化学種を変えても同じ傾向を示していた。その結果, 化学クエンチングを引き起こす化学種が異なっても, 2次元のシンチレーションスペクトルは同様なものである事が示された。つまり, 市販のクエンチドスタンダードで様々

な化学種による化学クエンチングを補正できる事が分かった。

References

- (1) M. F. L'Annunziata, M. J. Kessler, Liquid Scintillation Analysis: Principles and Practice. in "Handbook of Radioactivity analysis" (M. F. L'Annunziata Ed.), 2nd ed., Chapter 5.
- (2) 原 正憲, 二上 ひかり, 阿部 信介, "NIM モジュールを用いた液体シンチレーション分析器の構築", 水素同位体科学研究センター研究報告, 34(2014)51-57.