

JAERI-M

8 5 7 8

環境中での<sup>3</sup>Hの挙動〔I〕  
(低バックグラウンド液体シンチレーション  
計数装置の特性と海水中<sup>3</sup>H濃度の測定)

1979年12月

天野 光・笠井 篤

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

環境中での<sup>3</sup>Hの挙動 (I)  
(低バックグラウンド液体シンチレーション  
計数装置の特性と海水中<sup>3</sup>H濃度の測定)

日本原子力研究所 東海研究所 環境安全研究部  
天野 光・笠井 篤  
(1979年10月27日受理)

環境試料中の低エネルギーβ線放出核種の定量のため最近良く使われだした低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置について、その特性のいくつかを明らかにし、測定容器についての考察を行なった。また海水中<sup>3</sup>H濃度の簡便な定量法について検討し、東海村沿岸の表面海水中<sup>3</sup>H濃度のデータを蓄積し解析した。本法による海水中<sup>3</sup>H濃度の検出限界は約20pCi/lである。

Behavior of Tritium in the Environment (I)  
(Characteristics of the Low Background Liquid Scintillation  
Counter and Prompt Measurement of Tritium in the Seawater)

Hikaru AMANO and Atsushi KASAI  
Division of Environmental Safety Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI  
(Received October 27, 1979)

A simple method to measure tritium in the seawater was studied. Fifty milliliters of seawater was emulsified directly with the same volume of a liquid scintillator in a 100ml vial. Samples were measured by the low background liquid scintillation counter; reliability of the method was examined. This report describes characteristics of this apparatus and the concentration of tritium in the seawater off Tokai-mura. By this method, a minimum detectable activity for tritiated water was about 20 pCi/l of seawater.

Keywords: Prompt Measurement, Tritium, Seawater, Low Background Liquid Scintillation Counter, Sensitivity, Tritiated Water

## 目 次

1. まえがき	1
2. 装置の概要	1
3. データ処理	2
4. $^3\text{H}$ 測定上の最適条件の決定	9
4.1 測定装置の最適条件の設定	9
4.2 校正曲線の作成	9
4.3 測定容器の選択	12
5. 海水中 $^3\text{H}$ 濃度の定量法	14
6. 東海村沿岸海水中 $^3\text{H}$ 濃度の測定と時間変動	15
7. むすび	16
参考文献	16

CONTENTS

1. Introduction .....	1
2. Low Background Liquid Scintillation Counter .....	1
3. Description of the Data Processing .....	2
4. Optimization for Measurement of Tritium .....	9
4.1 Optimization of Apparatus .....	9
4.2 Calibration .....	9
4.3 Vials for Measurement .....	12
5. A Simple Method for the Measurement of Tritium .....	14
6. Concentration of Tritium in the seawater off Tokai-mura ...	15
7. Summary .....	16
References .....	16

## List of Tables

- Table 1 Chi-square distribution at the 95 % confidence level
- Table 2 Relation between the external ratio and the counting efficiency
- Table 3 Relation between the external ratio and the counting efficiency
- Table 4 Relation between the external ratio and the counting rate for quenching by salt
- Table 5 Relation between the quenching by vial and the counting rate
- Table 6 Relation between the external ratio and the counting rate dependent on the color of vial cap
- Table 7 Comparison of concentration of tritium between the distilled method and the direct method
- Table 8 Concentration of tritium in seawater off Tokai-mura

## List of Figures

- Fig. 1 Block diagram of low background liquid scintillation counter
- Fig. 2 Relation between the gain of photomultiplier and the counting efficiency
- Fig. 3  $\beta$  spectrum of tritium
- Fig. 4 Variation of the external ratio with the elapse of time
- Fig. 5 Long term variation of the external ratio
- Fig. 6 Stability of the counting rate
- Fig.7-10 Relation between the external ratio and the counting efficiency
- Fig. 11 Relation between the weight of vial and the external ratio
- Fig. 12 Relation between the quenching by vial and the counting rate
- Fig. 13 Relation between the wall thickness of vial and the counting rate

- Fig. 14 Relation between the external ratio and the counting rate dependent on the color of vial cap
- Fig. 15 Comparison of concentration of tritium between the distilled method and the direct method
- Fig. 16 Fluctuation of the counting rate
- Fig. 17 Concentration of tritium in seawater off Tokai-mura



## 1. ま え が き

原子力の平和利用の進展に伴ない、環境中に放出されるトリチウム( $^3\text{H}$ )とその挙動が注目されている。特に今後のエネルギー需要の急激な増加に対処するための大型原子力発電所の急速な建設と、核燃料サイクルの一環としての再処理工場の稼動によって周辺環境に放出される $^3\text{H}$ の大幅な増加が予想され、それに伴って環境中での $^3\text{H}$ の簡便なモニタリング技術の確立が急務とされている。更に、将来核融合炉が稼動するようになれば、 $^3\text{H}$ の管理が問題となることは明らかである。

$^3\text{H}$ による被曝は、 $^3\text{H}$ の崩壊による $\beta$ 線の平均エネルギーが5.7 keV、大気中での飛程は平均6 mm水中では6  $\mu\text{m}$ と極めて短いことと、HTOの形で人体に容易にとりこまれることから、内部被曝が大きな位置をしめる。環境に放出された $^3\text{H}$ は最終的には水の形で存在し、水の循環に伴って拡散するので、海水中 $^3\text{H}$ の濃度とその変化を追跡することは $^3\text{H}$ の挙動解明や環境モニタリングにおいて特に重要である。

海水中 $^3\text{H}$ の測定には、海水中 $^3\text{H}$ 濃度が低レベルであるために、海水を電解濃縮し $^3\text{H}$ 濃度を高め、液体シンチレーション計測法により定量するという方法が行なわれてきた。しかしながら $^3\text{H}$ の電解濃縮は、電解条件を厳密に一定にしなければならない等熟練を要し、煩雑で時間がかかり環境モニタリング及び多数試料を測定しての環境中における $^3\text{H}$ の挙動解明には不適である。

本論文では最近開発された低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置を使用し、海水を電解濃縮することなしに簡便に海水中 $^3\text{H}$ 濃度を定量する方法を検討確立し、その方法を用いて実際に東海村沿岸における海水中 $^3\text{H}$ 濃度とその変化を測定し、結果を考察した。

## 2. 装置の概要

本法で使用した低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置はアロカ製LSC-LB1である。装置のブロック・ダイヤグラムを図1に示す。この装置は低レベルの低エネルギー $\beta$ 線測定のために岩倉、樫田らにより開発された<sup>(1)(2)</sup>本装置は15個の100 ml容量バイアル瓶測定容器を自動試料交換装置により順次測定できると、プラスチックシンチレーターの宇宙線検出器が、中心検出器をとり囲んだ鉄および鉛しゃへい体の上部に装荷され、宇宙線等を逆同時計数回路でバックグラウンド計数を低減したのが特徴である。外部標準用の $\gamma$ 線源は取り外し可能となっている。中心検出器には100 mlバイアル瓶測定容器をはさんで、光電効率のよい2個のRCA-4501-V4光電子増倍管が使われ、測定器からのシンチレーションを同時計数する。逆同時計数用の板状のプラスチックシンチレーターには対角線上に2個のRCA-4501-V3光電子増倍管が装荷されている。また冷却装置により、恒温構内の検出部および測定試料は常に一定温度に保たれている。本装置は5個のシングルチャンネルアナライザを有し、このうち3個は、それぞれ $^3\text{H}$ エネルギー領域の計数測定用、 $^{14}\text{C}$ エネルギー領域の計数測定用、 $^{32}\text{P}$ エネルギー領域の計数測定用となっている。残りの2つは外部線源比を測定するためのものである。装置の安定性を保持するために測定装置全体は空調された室内に配置した。室温の変動は通常 $\pm 3^\circ\text{C}$ 以内である。

## 1. ま え が き

原子力の平和利用の進展に伴ない、環境中に放出されるトリチウム( $^3\text{H}$ )とその挙動が注目されている。特に今後のエネルギー需要の急激な増加に対処するための大型原子力発電所の急速な建設と、核燃料サイクルの一環としての再処理工場の稼動によって周辺環境に放出される $^3\text{H}$ の大幅な増加が予想され、それに伴って環境中での $^3\text{H}$ の簡便なモニタリング技術の確立が急務とされている。更に、将来核融合炉が稼動するようになれば、 $^3\text{H}$ の管理が問題となることは明らかである。

$^3\text{H}$ による被曝は、 $^3\text{H}$ の崩壊による $\beta$ 線の平均エネルギーが5.7 keV、大気中での飛程は平均6 mm水中では6  $\mu\text{m}$ と極めて短いことと、HTOの形で人体に容易にとりこまれることから、内部被曝が大きな位置をしめる。環境に放出された $^3\text{H}$ は最終的には水の形で存在し、水の循環に伴って拡散するので、海水中 $^3\text{H}$ の濃度とその変化を追跡することは $^3\text{H}$ の挙動解明や環境モニタリングにおいて特に重要である。

海水中 $^3\text{H}$ の測定には、海水中 $^3\text{H}$ 濃度が低レベルであるために、海水を電解濃縮し $^3\text{H}$ 濃度を高め、液体シンチレーション計測法により定量するという方法が行なわれてきた。しかしながら $^3\text{H}$ の電解濃縮は、電解条件を厳密に一定にしなければならない等熟練を要し、煩雑で時間がかかり環境モニタリング及び多数試料を測定しての環境中における $^3\text{H}$ の挙動解明には不適である。

本論文では最近開発された低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置を使用し、海水を電解濃縮することなしに簡便に海水中 $^3\text{H}$ 濃度を定量する方法を検討確立し、その方法を用いて実際に東海村沿岸における海水中 $^3\text{H}$ 濃度とその変化を測定し、結果を考察した。

## 2. 装置の概要

本法で使用した低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置はアロカ製LSC-LB1である。装置のブロック・ダイヤグラムを図1に示す。この装置は低レベルの低エネルギー $\beta$ 線測定のために岩倉、樫田らにより開発された<sup>(1)(2)</sup>本装置は15個の100 ml容量バイアル瓶測定容器を自動試料交換装置により順次測定できると、プラスチックシンチレーターの宇宙線検出器が、中心検出器をとり囲んだ鉄および鉛しゃへい体の上部に装荷され、宇宙線等を逆同時計数回路でバックグラウンド計数を低減したのが特徴である。外部標準用の $\gamma$ 線源は取り外し可能となっている。中心検出器には100 mlバイアル瓶測定容器をはさんで、光電効率のよい2個のRCA-4501-V4光電子増倍管が使われ、測定器からのシンチレーションを同時計数する。逆同時計数用の板状のプラスチックシンチレーターには対角線上に2個のRCA-4501-V3光電子増倍管が装荷されている。また冷却装置により、恒温構内の検出部および測定試料は常に一定温度に保たれている。本装置は5個のシングルチャンネルアナライザを有し、このうち3個は、それぞれ $^3\text{H}$ エネルギー領域の計数測定用、 $^{14}\text{C}$ エネルギー領域の計数測定用、 $^{32}\text{P}$ エネルギー領域の計数測定用となっている。残りの2つは外部線源比を測定するためのものである。装置の安定性を保持するために測定装置全体は空調された室内に配置した。室温の変動は通常 $\pm 3^\circ\text{C}$ 以内である。

### 3. データ処理

本装置には測定結果の信頼性向上と多数試料の測定のために、ミニコンによるデータ処理機構を組み込んだ。測定は1試料の長時間測定ではなしに、各試料のリピート測定、サイクル測定を行い、液体シンチレーション計数に固有な特異な値をとりのぞくために、計数値のカイ自乗検定と2シグマ検定による統計処理を行なう。<sup>(3)</sup>

#### (1) カイ自乗検定

一つの計数値の組がある分布に従っているかどうかを検定するために、次式で定義されるカイ自乗 ( $\chi^2$ ) 値を計算し、測定装置の擾乱を検定するものである。

$$\chi^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (C_i - \bar{C})^2}{\bar{C}} \quad \bar{C} = \frac{\sum_{i=1}^N C_i}{N}$$

ここでNは計数を行なった回数であり、 $C_i$ はi番目の測定値、 $\bar{C}$ は平均値である。本データ処理では、95%信頼度での $\chi^2$ 値の限界値をあらかじめミニコンに覚えこませておき、実際に測定した各々の計数値の組について $\chi^2$ 値を計算し、限界値と比較させ $\chi^2$ 検定を行なう。表1に95%信頼度での $\chi^2$ 値の限界値を示す。

#### (2) 2シグマ検定

計数値の組の中で、特に大きなゆらぎを持つ計数値を検定するために、個々の計数値が計数値の組の平均値と比較して、標準偏差 $\sigma$ の2倍以上の差があるならば、次式により異常値として棄却する。

$$\sigma = \sqrt{\sum_{i=1}^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2 / (N-1)}, \quad \left( \frac{C}{T} \right) = \frac{\sum_{i=1}^N \frac{C_i}{T_i}}{N}$$

$$\left| \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right| > 2\sigma \text{ のとき棄却}$$

ここで N : リピート回数  
 $T_i$  : リピート i 番目の計数時間  
 $\sigma$  : 標準偏差

計数値から濃度を求めるデータ処理は7つのJOBにより行なう。

以下に各JOBについて説明する。

#### (1) JOB 1とJOB 2

JOB 1と2は、標準試料の測定による校正曲線の作成である。校正曲線は標準試料の外部線源比と計数効率の測定によって作成する。15個の標準試料について測定可能である。JOB 1が外部線源比の測定で、JOB 2が計数効率の測定である。外部線源比の測定ではのちに述べる理由で最初の2サイクルの測定値、および各リピート測定での最初の5リピート値はデータとして採用しない。これはJOB 4においても同様である。

次に計算式を示す。

JOB 1

(i) リピート測定終了までの計算式

$$\begin{aligned} \text{Hチャンネルカイ自乗値} &= \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \left( \frac{C_i}{T_i} \right) - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)} \end{aligned} \quad \left( \begin{array}{l} T_i : \text{リピート } i \text{ 番目の計測時間} \\ N_i : \text{リピート回数} \\ C_i : \text{リピート } i \text{ 番目のHチャンネル計数} \end{array} \right)$$

$$\begin{aligned} \text{Cチャンネルカイ自乗値} &= \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \left( \frac{C_i}{T_i} \right) - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)} \end{aligned} \quad \left( \begin{array}{l} T_i, N_i \text{ は同上} \\ C_i : \text{リピート } i \text{ 番目のCチャンネル計数} \end{array} \right)$$

$$\overline{\left( \frac{C}{T} \right)} = \sum_i^N \frac{C_i}{T_i} / N$$

$$\begin{aligned} \bar{C}_H &= \sum_i^M \frac{C_i}{T_i} / M \\ \Delta C_H &= \sqrt{\sum_i^M \left( \frac{C_i}{T_i} - \bar{C}_H \right)^2 / M - 1} \end{aligned} \quad \left( \begin{array}{l} C_i ; \left| \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right| < 2\sigma_H \text{ を満たす計数} \\ M ; \text{上式を満たす } C_i \text{ の個数} \\ \sigma_H = \sqrt{\sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2 / N - 1} \end{array} \right)$$

$$\begin{aligned} \bar{C}_C &= \sum_i^L \frac{C_i}{T_i} / L \\ \Delta C_C &= \sqrt{\sum_i^L \left( \frac{C_i}{T_i} - \bar{C}_C \right)^2 / L - 1} \end{aligned} \quad \left( \begin{array}{l} C_i ; \left| \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right| < 2\sigma_C \text{ を満たす計数} \\ L ; \text{上式を満たす } C_i \text{ の個数} \\ \sigma_C = \sqrt{\sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2 / N - 1} \end{array} \right)$$

$$\text{外部線源比 ; } R = 2 \times \frac{\bar{C}_H}{\bar{C}_C}$$

$$\text{ゆらぎ幅 ; } \Delta R = R \sqrt{\left( \frac{\Delta C_C}{\bar{C}_C} \right)^2 + \left( \frac{\Delta C_H}{\bar{C}_H} \right)^2}$$

(ii) サイクル終了後の計算式

$$\begin{aligned} \bar{R} &= \frac{\sum_j^K R_j}{K} \\ \Delta R &= \sqrt{\frac{\sum_j^K (\Delta R_j)^2}{K}} \end{aligned} \quad \left( \begin{array}{l} R_j ; j \text{ サイクル番目の外部線源比} \\ \Delta R_j ; j \text{ サイクル番目の外部線源比のゆらぎ幅} \\ K ; \text{サイクル回数} \leq 5 \end{array} \right)$$

JOB 2

(i) リポート測定終了までの計算式

$$\text{カイ自乗値} = \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)}$$

$T_i$  ; リポート i 番目の計測時間  
 $N$  ; リポート回数  
 $C_i$  ; 指定されたチャンネルの計数

$$\overline{\left( \frac{C}{T} \right)} = \frac{\sum \left( \frac{C_i}{T_i} \right)}{N}$$

$$\overline{C} = \frac{\sum_i^M \frac{C_i}{T_i}}{M}$$

$$\Delta C = \sqrt{\frac{\sum_i^M \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{M-1}}$$

$C_i$  ;  $\left| \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right| < 2\sigma$  を満たす計数  
 $M$  ; 上式を満たす  $C_i$  の個数

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{N-1}}$$

$$E = \frac{\overline{C} - BG}{\text{STD DPM}} \times 100$$

$$\Delta E = E \times \sqrt{\left( \frac{\text{ERROR DPM}}{\text{STD DPM}} \right)^2 + \left( \frac{\Delta \text{CPM}}{\overline{C} - BG} \right)^2}$$

$BG$  ; バックグラウンド試料のCPM値  
 $\text{STD DPM}$  ; 標準試料のDPM値  
 $\text{ERROR DPM}$  ; 標準試料の誤差  
 $\Delta \text{CPM} = \sqrt{(\Delta C)^2 + (\Delta BG)^2}$

(ii) サイクル終了後の計算式

$$\overline{E} = \frac{\sum_j^K E_j}{K}$$

$$\Delta \overline{E} = \sqrt{\frac{\sum_j^K (\Delta E_j)^2}{K}}$$

$E_j$  ; j サイクル番目の測定効率  
 $\Delta E_j$  ; j サイクル番目の計数効率のゆらぎ幅  
 $K$  ; サイクル回数  $\leq 5$

(2) JOB 3

JOB 3 は独立しており、測定試料の単位時間あたりの計数値(cpm)を求めるものである。このときバックグラウンド試料を試料番号 1 に配置する。以下計算式を示す。

(i) リポート測定試料までの計算式

$$\text{カイ自乗値} = \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \overline{\left( \frac{C}{T} \right)} \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)}$$

$T_i$  ; リポート i 番目の計測時間  
 $N$  ; リポート回数  
 $C_i$  ; 指定されたチャンネルの計数

$$\overline{\left( \frac{C}{T} \right)} = \frac{\sum \left( \frac{C_i}{T_i} \right)}{N}$$

$$\bar{C} = \frac{\sum_i^M \frac{C_i}{T_i}}{M}$$

$$\Delta C = \sqrt{\frac{\sum_i^M \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{M-1}}$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{N-1}}$$

$C_i$  ;  $\left| \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right| < 2\sigma$  を満たす計数  
 $M$  ; 上式を満たす  $C_i$  の個数

CPM =  $\bar{C}$  - BG

BG ; バックグラウンド計数率

$\Delta CPM = \sqrt{(\Delta C)^2 + (\Delta BG)^2}$

(ii) サイクル終了後の計算式

$$\overline{CPM} = \frac{\sum_j^K CPM_j}{K}$$

$$\overline{\Delta CPM} = \sqrt{\frac{\sum_j^K (\Delta CPM_j)^2}{K}}$$

$CPM_j$  ;  $j$  サイクル番目の CPM 値  
 $\Delta CPM_j$  ;  $j$  サイクル番目の CPM 値のゆらぎ幅  
 $K$  ; サイクル回数  $\leq 5$

(3) JOB 4 と JOB 5

JOB 4 と JOB 5 は測定試料の崩壊率(DPM)を求めるJOBである。JOB 4で試料の外部線源比を求め、JOB 5は試料の計数率の測定と、JOB 4で得られた値から計数効率を算出し、試料のDPM値を求める。

JOB 4

(i) リピート測定終了までの計算式

$$\text{Hチャンネルカイ自乗値} = \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \left( \frac{C_i}{T_i} \right) - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)}$$

$$\text{Cチャンネルカイ自乗値} = \frac{T_N \times \sum_i^N \left\{ \left( \frac{C_i}{T_i} \right) - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)}$$

$T_i$  ; リピート  $i$  番目の計測時間  
 $N_i$  ; リピート回数  
 $C_i$  ; リピート  $i$  番目の Hチャンネル計数  
 $(T_i, N_i)$  は同上  
 $C_i$  ; リピート  $i$  番目の Cチャンネル計数

$$\left( \frac{C}{T} \right) = \frac{\sum_i^N \frac{C_i}{T_i}}{N}$$

$$\bar{C}_H = \frac{\sum_i^M \frac{C_i}{T_i}}{M}$$

$$\Delta C_H = \sqrt{\frac{\sum_i^M \left( \frac{C_i}{T_i} - \bar{C}_H \right)^2}{M-1}}$$

$$\sigma_H = \sqrt{\frac{\sum_i^N \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{N-1}}$$

$C_i$  ;  $\left| \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right| < 2\sigma_H$  を満たす計数  
 $M$  ; 上式を満たす  $C_i$  の個数

$$\bar{C}_C = \frac{\sum_i C_i}{\sum_i T_i} / L$$

$$\Delta C_C = \sqrt{\frac{\sum_i \left( \frac{C_i}{T_i} - \bar{C}_C \right)^2}{L-1}}$$

$$\sigma_C = \sqrt{\frac{\sum_i \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{N-1}}$$

$C_i$  ;  $\left| \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right| < 2\sigma_C$  を満たす計数  
 $L$  ; 上式を満たす  $C_i$  の個数

外部線源比 ;  $R = 2 \times \frac{\bar{C}_H}{\bar{C}_C}$

ゆらぎ幅 ;  $\Delta R = R \sqrt{\left( \frac{\Delta C_C}{\bar{C}_C} \right)^2 + \left( \frac{\Delta C_H}{\bar{C}_H} \right)^2}$

(ii) サイクル終了時の計算式

$$\bar{R} = \frac{\sum_j R_j}{K}$$

$$\Delta \bar{R} = \sqrt{\frac{\sum_j (\Delta R_j)^2}{K}}$$

$R_j$  ;  $j$  サイクル番目の外部線源比  
 $\Delta R_j$  ;  $j$  サイクル番目のゆらぎ幅  
 $K$  ; サイクル回数  $\leq 5$

JOB 5

(i) リポート測定終了までの計算式

カイ自乗値 =  $\frac{T_N \times \sum_i \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{\left( \frac{C}{T} \right)}$

$T_i$  ; リポート  $i$  番目の計測時間  
 $N$  ; リポート回数  
 $C_i$  ; 指定されたチャンネルの計数  
 $\left( \frac{C}{T} \right) = \frac{\sum_i \left( \frac{C_i}{T_i} \right)}{N}$

$$\bar{C} = \frac{\sum_i C_i}{\sum_i T_i} / M$$

$$\Delta C = \sqrt{\frac{\sum_i \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{M-1}}$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_i \left\{ \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right\}^2}{N-1}}$$

$C_i$  ;  $\left| \frac{C_i}{T_i} - \left( \frac{C}{T} \right) \right| < 2\sigma$  を満たす計数  
 $M$  ; 上式を満たす  $C_i$  の個数

DPM値 ;  $DPM = \frac{CPM}{E} \times 100$

$\Delta DPM = DPM \sqrt{\left( \frac{\Delta E}{E} \right)^2 + \left( \frac{\Delta CPM}{CPM} \right)^2}$

$E = \frac{E_{P+1} - E_P}{R_{P+1} - R_P} (R - R_{P+1}) + E_{P+1}$

$\Delta E = \sqrt{\frac{(A+B)}{(R_{P+1} - R_P)^2} + (\Delta E_{P+1})^2}$        $R_P < R < R_{P+1}$

$$A = \{ (R - R_{P+1})^2 + 4(R_{P+1} - R)(R - R_P) \} \{ (\Delta E_P)^2 + (\Delta E_{P+1})^2 \}$$

$$B = \{ (\Delta R)^2 + (\Delta R_{P+1})^2 \} (E_{P+1} - E_P)^2$$

$(R_P, E_P), (R_{P+1}, E_{P+1})$  ; 補正曲線用ポイント

$(\Delta R_P, \Delta E_P), (\Delta R_{P+1}, \Delta E_{P+1})$  ; 上記ポイントのゆらぎ幅

(ii) サイクル終了時の計算式

$$\overline{DPM} = \frac{\sum_j^K DPM_j}{K}$$

$$\overline{\Delta DPM} = \sqrt{\frac{\sum_j^K (\Delta DPM_j)^2}{K}}$$

{

DPM<sub>j</sub> ;

j サイクル番目のDPM値

{

$\Delta DPM_j$  ;

j サイクル番目のDPM値のゆらぎ幅

{

K ;

サイクル回数 ≤ 5

(4) JOB 6

JOB 6はタイプライターからのキー入力による効率曲線の作成である。効率曲線の作成は、外部標準線源比R、そのゆらぎ $\Delta R$ 、計数効率E、そのゆらぎ $\Delta E$ の4個の入力を最大15回まで行うことができる。

(5) JOB 7

このJOBはキュリー値、検出限界値の算出および計数値が有意か否かの判定および有意ならば試料採取日時までの半減期による補正を行う。検出限界値については測定試料の計数値とバックグラウンド計数値との差が $K\sigma$  ( $K$  ; 標準偏差の幅,  $\sigma$  ; 標準偏差) 以上を有意な計数であるとして、検出限界濃度L (pCi/ $\ell$ ) を算出する。

(i) 検出限界値Lの計算値

$$L = \frac{1}{2.22} \times \frac{1}{E V} \times \frac{K}{2} \left[ \frac{K}{T_s} + \sqrt{\left(\frac{K}{T_s}\right)^2 + 4N_b \left(\frac{1}{T_s} + \frac{1}{T_b}\right)} \right]$$

- E ; 試料の計数効率
- V ; 試料の体積( $\ell$ )
- $T_s$  ; 試料の測定時間(分)
- K ; 標準偏差の幅
- $N_b$  ; バックグラウンド計数率(cpm)
- $T_b$  ; バックグラウンドの測定時間(分)

(ii) キュリー値計算式

$$Q = \frac{DPM}{2.22} \times \frac{1}{V}$$

{

Q ;

濃度 (pCi/ $\ell$ )

{

DPM ;

オンライン測定によるDPM値(記憶値)

{

V ;

試料の体積( $\ell$ )

(iii) 判定

検出限界値(L)によってキュリー値(Q)が有意であるか否かを判定する。

$Q > L$ ならば \* を印字する (検出可)

$Q \leq L$ ならばNDを印字する (検出不可)

(iv) 試料採取日時のキュリー値計算式 (減衰補正)

$$Q_0 = Q \cdot e^{\left(\frac{T_e \cdot \ln 2}{T_{1/2}}\right)}$$



- $Q_0$  ; 試料採取日時での濃度,  $\text{pCi}/\ell$
- $Q$  ; 測定キュリー値, (ii)における計算値,  $\text{pCi}/\ell$
- $T_e$  ; 試料採取から測定までの経過時間
- $T_{1/2}$  ; 測定対象核種の半減期

## 4. $^3\text{H}$ 測定上の最適条件の決定

### 4.1 測定装置の最良条件の設定

放射線測定器の感度の指標に $E^2/B$ ( $E$ : 計数効率,  $B$ : バックグラウンド試数率)があり, 測定器の性能を最大に発揮させるために, この値が最大になるように調整する必要がある<sup>(1, 2)</sup>。液体シンチレーション計数装置の $\beta$ 線の計数効率は, 測定器の核種, 測定容器, クエンチング, 光電子増倍管の印加電圧, 増幅器のゲイン, 波高分析器のエネルギー幅によって決定される。増幅器のゲイン, 波高分析器のエネルギー幅以外はすべて一定条件として, 最適条件を決定する。はじめに $^3\text{H}$ の標準試料を用い, 光電子増倍管の印加電圧, 波高分析器のエネルギー幅を一定とし, 増幅器のゲインを変えて計数率の変動を調べた。この結果を図2に示した。図2において最高計数を与えるゲインがバランスポイントと呼ばれるものであり, バランスポイントでの測定は電圧, ゲイン等の微小変動に対しても, 比較的安定した計数を与える。なおこのとき実際の測定試料とほぼ同程度のクエンチングを有する標準試料を使用した。次にこのバランスポイントで上記の $E^2/B$ 値が最大となるような波高分析器のエネルギー幅を決定した。これもやはり実際の測定試料とほぼ同程度のクエンチングを有する標準試料を使用し, いろいろのエネルギー幅について, 各々計数効率とバックグラウンド試数率とを測定し, 最大の $E^2/B$ 値を与えるエネルギー幅を決定した。この結果ゲイン0.4でエネルギー幅を下限60上限500に設定しバックグラウンド3 cpm計数効率12%で $E^2/B = 48$ という値が得られた。他の液体シンチレーション計数装置と性能を比較する場合は, いわゆるFM値,  $(EV)^2/B$  ( $V$ : 実際に測定に供した試料水の量,  $\text{ml}$ )で比較するのであるが, 上記の $E^2/B$ 値を与える試料水の量は50mlであるので $^3\text{H}$ について120,000という値が得られた。この値はこれまで報告されている市販の液体シンチレーション計数装置の中でも最高のものである<sup>(4)</sup>。同一機種の中でも特に高い値を示したのは, 本装置に量子効率の高いRCA-4501 V4光電子増倍管を使用したことによるものと思われる。

図3に本装置で得られた同一放射能強度の $^3\text{H}$ の $\beta$ 線スペクトルを示す。このスペクトルは, 波高分析器のエネルギー幅をエネルギー毎に順次移動して得られたものである。

### 4.2 校正曲線の作成

液体シンチレーション測定の際に, 最も注意を要するのがクエンチング(消光)の現象である。クエンチングとは調整試料中に存在する不純物, 添加剤あるいは放射性物質等によってケイ光が減少したり, 消失したり, 吸収したりする現象で, <sup>(5, 6)</sup>試料を溶解したほとんどすべての液体シンチレーターは強弱の差こそあれクエンチングがある。クエンチングの結果計数効率が減少する。この減少の度合は個々の測定試料により異なるので, 個々の測定試料について計数効率を求めなければならない。そのための方法として内部線源法, チャンネル比法, 外部線源法といった方法がある。内部線源法は測定試料の計数後に, クエンチングを起こさず測定核種と同種の放射性核種を持つ放射能既知の内部標準体を加えて再び計数することにより, 測定試料と同一クエンチング状態で測定試料の計数効率を求める方法であるが, 再測定できないという欠点を持っている。計

算方法は添加した内部標準体の放射能をD(dpm), 測定試料の計数率をC(cpm), 内部標準体を添加したのちの計数率をA(cpm)とすると計数効率(E)は

$$E = \frac{A(\text{cpm}) - C(\text{cpm})}{D(\text{dpm})} \quad \text{で与えられる。}$$

ところで図3からも明らかなように、クエンチングによりパルス波高が低下するためにβ線スペクトルは低波高側に変位するが、β線スペクトルの2つのチャンネルにおける計数の比(試料チャンネル比)もクエンチングの影響を受けるので、試料チャンネル比の値を知ることにより計数効率を決定できる。この方法がチャンネル比法である。この方法では、添加した放射能は同一であるがクエンチャーの添加量が違ういくつかの標準クエンチング試料を用いて、試料チャンネル比と計数効率の関係を表わすクエンチング補正曲線を作成し、しかるのち測定試料について同一条件でチャンネル比を測定して計数効率を求めるものであるが、測定試料の放射能が弱い場合には精度が著しく劣るという欠点を有し、環境試料中低レベル放射能の測定には不向きである。外部線源法は<sup>137</sup>Cs, <sup>133</sup>Ba, <sup>226</sup>Raなどのγ線源で測定試料の外側から照射し、γ線とシンチレーター溶液との相互作用の結果発生したコンプトン電子による発光で電気的パルスが生ずるが、パルスの波高は測定試料のクエンチングによって左右され、このときパルス波高は計数効率を支配するので、コンプトン電子の計数からクエンチングを補正した計数効率を求めることができる。この方法は簡便であり試料の汚染の心配がなく、再測定も可能であり、弱い放射能の場合にも大きな誤差を生じないことから、最近の液体シンチレーション計数装置はほとんどこの校正法を使用している。外部線源法にはクエンチングの程度を1つのチャンネルにおける外部標準体による全計数で表わす外部線源法と2つのチャンネルにおける外部線源による全計数の比で表わす外部線源比法とがある。しかしながら外部線源計数法では計数が測定試料の溶液量、γ線源の照射位置とその強度に依存するが、外部線源比法では2つのチャンネルの計数の比をとるために、こうした欠点は緩和される。本実験で使用した低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置は、クエンチングによる計数効率低下の校正方法としてこの外部線源比法を採用し、γ線源としてはほぼ10μCiの<sup>137</sup>Csを使用している。

ところで、液体シンチレーション計数装置において、高計数率の試料を測定する場合、計数率に光電子増倍管ゲインが強く依存し、場合によっては光電子増倍管にヒステリシス特性が見られることが指摘され、<sup>(7,8,9)</sup>高計数率測定となる外部線源法に疑問も提起されている。<sup>(9)</sup>

本実験においても図4に見られる如く、外部線源比に大きな時間変動が観察された。この場合は測定開始時と12時間経過後では外部線源比に12%程度の差が生じ計数効率に11%程度の差を生じた。そして、時間変動の程度はいつも同じというわけではなかった。しかしながら図4に見られるように外部線源比の値はある時間経過後には平衡値に達するので、この平衡値が許容誤差範囲内に収まれば、この平衡値を外部線源比の値として採用することで再現性の問題、ひいては校正の確度の問題は解決されることになる。図5にテフロン100mlバイアル瓶に乳化シンチレーター・アクアゾルIIを100ml満たし長期間にわたって断続的に外部線源比を測定した測定値の平衡値を示す。各々の場合の平衡値は計数誤差範囲内で一致しており、外部線源比の値として平衡値を使えば、外部線源比法による校正は問題がないと思われる。実験では外部線源比の測

定は、すべて平衡値に達していることを確認してのち、平衡値を外部線源比の値として採用した。

外部線源比によって測定試料の計数効率を校正する場合、クエンチングの程度を変えたクエンチング標準試料が必要である。この場合クエンチャーの違いによって、効率曲線に差の生ずる場合もある。<sup>(5)</sup> 本実験では海水および蒸留水を測定対象としているため、クエンチャーとして蒸留水および学術会議・標準海水委員会検定の標準海水を使用した。乳化シンチレーターとしては、含水率も高く発光効率も高い市販の乳化シンチレーター・アクアゾルⅡを使用した。クエンチング標準試料の作成はクエンチャーと乳化シンチレーターとの体積比を変えて均一に混合しない体積比（水：アクアゾルⅡ＝1：9～1：4）のところは除いて、全体の体積が100 mlとなるように、蒸留水と標準海水とで各々8個づつ2系列の標準試料を作成した。また<sup>3</sup>H内部線源用標準試料は、2つのアイソトープメーカーより購入し、各々について上記の方法でクエンチング標準試料を作成した。各サンプルにはおよそ0.1 μCiの放射能を添加した。なお購入した<sup>3</sup>H内部線源用標準試料の強度の仕様書に記された定量誤差はそれぞれA社±2%、B社±3%であった。各々全量をコマゴメピペットでとり秤量し全放射エネルギーを算出し、蒸留水でうすめ0.1 μCi/mlとし秤量し、これの各1mlを測定容器のテフロン100 mlバイアル瓶にとり秤量し、各標準試料の放射能を定量した。なお各標準試料の計数値は $10^4 \sim 10^5$ のオーダーであり、高計数率の試料測定の場合に心配されるゲイン変動による計数率の変動は観測されなかった。この結果を図6に示す。計数値の経時的変動は低計数率の測定から高計数率の測定、高計数率の測定から低計数率の測定を連続して行なう場合にあらわれるが、<sup>(7,8,9)</sup> 図6からBG試料の測定から $5 \times 10^4$  cpm試料の測定、 $2 \times 10^4$  cpm試料の測定からBG試料の測定を連続して行なっても本装置においては計数値の経時的変動は起こらないことがわかる。またこのとき計数値の再現性も計数誤差以内であった。

校正曲線の作成に際して得られた測定結果を表2、表3にそのうちの一部を図7～10に示す。

なお海水と蒸留水との混合比をいろいろ変えてクエンチャーとしたものについても計数効率の測定を行なった。これは計数効率に塩分量依存性があるかどうかを見るためであった。このとき測定試料の組成とクエンチャーの塩分及び測定結果を表4に示す。図7中にその測定結果を×印で示した。

図にみられる通り、これらの測定点はクエンチャーとして標準海水及び蒸留水を使って得られた校正曲線の間に系統性なくはさまれている。この測定結果から見る限り、図7において見られるクエンチャーの違いによる校正曲線の差は、測定領域の一部を除くとクエンチャーの違いが原因ではなく、むしろ計数効率のゆらぎ幅とみなすのが良いと思われる。図8はA社検定<sup>3</sup>Hを使用した結果であり、図7、図8から実際の測定試料（アクアゾルⅡ：<sup>3</sup>H水溶液、60：40～50：50）の測定領域をとりだしたのが図9、10である。図9、10から実際の測定領域における効率曲線の絶対誤差を±5%であるとした。なお外部線源比の値が10～12の領域では、校正曲線のバラツキが大きいが、この領域では混合溶液が目で見ても均一に混合していても実際には不安定であるのかも知れない。しかしこの領域で測定することは実際上ない。

以上の結果から、校正曲線はA社検定の<sup>3</sup>Hを使用し蒸留水をクエンチャーとして作製したクエンチング標準試料により得られた値を採用し、計数効率に5%の誤差を見込んだ。

### 4.3 測定容器の選択

測定試料容器は通常バイアルと呼ばれる。液体シンチレーション計数に用いられるバイアルには低バックグラウンドであること、試料溶液から生ずる光の吸収が小さいこと、化学的に不活性であること等の性質が要求される。通常の液体シンチレーション計数には20mℓ容量の低カリガラスバイアル、ポリエチレンバイアル、テフロンバイアル等が使用されている。

低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置では100mℓ容量のバイアルが使用可能であり、入手しやすく液体シンチレーション計数用測定試料容器として使用可能であると思われた市販の100mℓ容量硬質ポリエチレンバイアル、テフロンバイアルについて考察を行なった。

はじめに形状が同一であるテフロンおよびポリエチレン100mℓ容量バイアル各数十個に乳化シンチレーター・アクアゾルⅡのみを100mℓ満たし、外部線源比の測定を行なった。測定条件は校正曲線作製時と同一である。測定結果を図11に示す。横軸は外ふた、内ふたをとり除いたバイアル本体の重量である。図11からポリエチレンバイアルは重量の変動は小さくまた外部線源比の変動も小さいことがわかるが、テフロンバイアルでは重量のバラツキが大きく重量に無関係に外部線源比のバラツキも大きいことがわかった。なお図11中においてテフロンバイアルの○印および×印はそれぞれ同一購入時のバイアル群である。外部線源比のこうしたバラツキが測定試料中の放射能の定量結果に重大な影響を及ぼすことが懸念されたので以下の実験を行なった。

同一形状バイアルにおける外部線源比のバラツキは、各バイアルの肉厚、肉厚の均一性等に帰因していると思われ、当然測定試料の計数率もバイアルの違いにより異なると考えられるので、外部線源比の値の幅をすべてカバーできるようなバイアルを数個選びだし、均一濃度の<sup>3</sup>H水について、乳化シンチレーター・アクアゾルⅡとの混合が<sup>3</sup>H水対アクアゾルⅡ50mℓ対50mℓおよび5mℓ対95mℓの2つについてそれぞれ計数率の測定を行なった。この結果を表5図12に示す。なお使用したテフロンバイアルは図11中に数字1～4で示した。使用したポリエチレンバイアルは任意に選んだ。図12中の文字および数字は表5および図11中の文字および数字のバイアルを示している。図12において下図は各バイアルの外部線源比と、<sup>3</sup>H水単位体積あたりの計数率とをプロットしたもので外部線源比および計数率の統計誤差は○印以内である。なおテフロンバイアルを白丸、ポリエチレンバイアルを黒丸で示した。図12において上図は各バイアルの外部線源比と先に得られた校正曲線を使って得られた<sup>3</sup>H水の定量値である。このときの誤差は試料の計数率で3～5%あり計数効率の誤差を5%とした。図12から各バイアル毎に計数率が異なるが、最終的に得られる定量値は誤差範囲内で一致していることがわかる。ところで図11中のテフロンバイアルの外ふたは、○印がプラスチック製不透明緑色キャップ、×印がテフロン製白色透明キャップであった。バイアルキャップの違いも考慮し、各々のバイアルの肉厚と計数率との相関をみたのが図13である。肉厚の測定は各バイアルを中心において横に切断し、切断片の上下について各々対角線上に4箇所をノギスで測定し平均値を肉厚とした。図13にみられる通り、肉厚と計数率に負の相関が観察された。

さらにバイアルキャップの違いによる計数値の差を見るために実験を行なった。クエンチング標準試料の一つを使用し、外ふたのみ変えて順次計数を行なった。計数は外部線源比と<sup>3</sup>H計数率について行なった。この結果を表6図14に示す。各々の外部線源比と<sup>3</sup>H計数率には明らかに有意な差が見られたが、ある相関があった。表5において計数効率 $E_1$ と $E_2$ とはそれぞれ5%の誤差範囲内では有意な差を見出すことはできない。

以上の結果から、低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置用 100mℓ 容量測定容器としては、形状が同一であれば、市販のテフロンバイアル、硬質ポリエチレンバイアルどちらも使用可能であるけれども、系統的な誤差の生ずるのを防ぐため、バイアルの外ぶたは効率曲線作成時と同一のものを使用するのが望ましい。

## 5. 海水中 $^3\text{H}$ 濃度の定量法

現在日本における海水中  $^3\text{H}$  濃度は沿岸水で  $20\sim 200\text{pCi}/\ell$ , 深海水で  $\sim 3\text{pCi}/\ell$  と報告されている。<sup>(10)</sup> 本実験で使用している低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置を測定に際して最適条件に設定した時の検出限界濃度は  $15\sim 20\text{pCi}/\ell$  であるので、沿岸水については、 $^3\text{H}$  を濃縮することなしに  $^3\text{H}$  濃度の測定が可能である。海水を蒸留することにより、他の妨害核種を取り除くことができる。ところで、海に注入される  $^3\text{H}$  の動態を研究するためには、多数試料についての  $^3\text{H}$  濃度の測定が必要であり、このため、海水中に  $^3\text{H}$  以外の人工放射性核種の混入が考えられず、海水が目目で特に着色などしていない場合に、海水を直接乳化シンチレーターと混合して  $^3\text{H}$  濃度を測定する方法について検討した。海水中に含まれる主な天然放射性核種とその濃度については、 $\alpha$  線放出核種として、 $^{238}\text{U}$   $1\text{pCi}/\ell$ ,  $^{230}\text{Th}$   $0.001\sim 0.1\text{pCi}/\ell$ ,  $^{226}\text{Ra}$   $0.12\text{pCi}/\ell$ ,  $^{232}\text{Th}$   $0.00005\sim 0.05\text{pCi}/\ell$ ,  $\beta$  線放出核種として  $^{40}\text{K}$   $330\text{pCi}/\ell$ ,  $^{87}\text{Rb}$   $2.8\text{pCi}/\ell$ ,  $^{14}\text{C}$   $0.19\text{pCi}/\ell$  と報告されている。<sup>(11)</sup> これらの核種の  $^3\text{H}$  濃度定量に際しての妨害について検討した。

実験は原研東海第2排水口からの  $^3\text{H}$  放出時に沿岸各地点で採取した  $^3\text{H}$  濃度の異なる表面海水について、蒸留しない海水と同一海水を蒸留したものについて各々乳化シンチレーター・アクアゾルⅡと混合し、測定値を比較した。測定容器は  $100\text{ml}$  容量ポリエチレンバイアルである。バックグラウンド試料は、ポリエチレンバイアルにアクアゾルⅡ  $100\text{ml}$  を満たしバックグラウンド計数とした。試料水とアクアゾルⅡとの混合は測定バイアルを温浴により測定試料の粘調性を低め、激しく混合したのち、次却槽内に一昼夜静置し、測定に供した。海水試料の蒸留は、海水  $250\sim 300\text{ml}$  について、酸化剤を加えることなしに行なった。はじめステンレス製蒸留器にリービッヒ冷却管を連結して行なったが、蒸留器がさび、蒸留液にさびが混入し、測定試料のクエンチングが極端に大きくなったので、蒸留器はすべて硬質ガラス製蒸留器を使用した。蒸留は海水がすべて蒸発乾固するまで行なった。この測定結果を表7図15に示した。この結果  $^3\text{H}$  濃度がバックグラウンドレベルの海水から  $10^5\text{pCi}/\ell$  程度の海水について、両者の測定値に非常に良い一致が見られた。このことは海水試料を特に蒸留せずとも前述した天然放射性核種が存在していてもその影響を受けることなく  $^3\text{H}$  を定量できることを示している。しかしながら、高濃度での人工放射性核種が海水に混入している場合、その核種の放射線エネルギー、濃度によっては  $^3\text{H}$  計数に影響を及ぼすことがあるかもしれない。こうした場合の妨害を取り除く方法について検討中である。それは、本実験に使用した測定装置には3つの計数チャンネルがあり、それぞれ  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{32}\text{P}$   $\beta$  線エネルギー相当核種による計数が測定できるが、 $^3\text{H}$  チャンネル以外の計数チャンネルで妨害核種の混入を点検できる。さらにこれらの計数から  $^3\text{H}$  チャンネル計数中の妨害核種の寄与分を差引く方法を検討中である。

本実験では、各々の計数データについて、 $^3\text{H}$  チャンネル以外の計数チャンネルの計数値を相互比較することにより、異常がないことを確認した。

## 6. 東海村沿岸海水中<sup>3</sup>H濃度の測定と時間変動

これまで検討した測定方法に基づき、東海村沿岸海水中<sup>3</sup>H濃度の測定を行なった。海水試料採取地点は、日本原子力研究所東海研究所の第2排水口を起点にとり、そこから海岸線を南に100m地点および550m地点の2ヶ所で柄杓でくみとり、硬質ガラス製試薬瓶に各々250~1000ml採取した。採取頻度は週一回である。ゴム栓にて密封したのち、しばらく静置し、上澄み液の50mlをポリエチレンあるいはテフロンバイアルにとり、同量の乳化シンチレーター・アクアゾルIIと混合し、測定試料とした。河川水の混入の度合をみるために、採取海水の塩分を電気伝導法により測定した。塩分の測定は鶴見精機製タイプ304TS デジタル塩分計により行なった。本装置は電気伝導法により塩分を決定するもので、精度は $\pm 0.01\%$ Sである。

<sup>3</sup>H濃度測定に際し、バックグラウンド計数は試料と同じ測定バイアルに乳化シンチレーター・アクアゾルIIのみ100ml満たして行なった。図16にバックグラウンド計数及び異なった5個の試料計数の時間変動を示す。図中 $\chi^2$ とあるのは $\chi^2$ 棄却検定で棄却された計数データである。図からバックグラウンドレベル計数における測定装置の安全性は非常に良いことが解かる。

表8及び図17に東海村沖海岸線で採取した海水についての<sup>3</sup>H濃度の測定結果を塩分濃度と共に示す。

図17から、1977年12月23日および1978年5月29日および6月5日および12月13日の<sup>3</sup>H濃度のピークは、塩分濃度が低くないことから雨水及び河川水による影響ではなく、原子力施設によるものと思われる。77年12月23日および78年6月5日および12月23日の海水中<sup>3</sup>H濃度については、77年12月21日22日および78年6月5日および12月12日に原研東海研第2排水口より若干の<sup>3</sup>H放出があり、原研からの<sup>3</sup>H放出によるものかもしれない。東海村にある動燃の再処理工場が1977年9月からホットテストを開始しておりここから1977年10月~1978年6月の間に約800Ciの<sup>3</sup>Hが東海村沖合に放出されたと報告<sup>(12)</sup>されており、この影響によるとも考えられる。78年5月29日のピークについては当日および前数日原研東海研究所第2排水口より<sup>3</sup>Hの放出はなく、他の原子力施設からの<sup>3</sup>H放出によるものと思われる。1978年7月~10月においてS-100地点<sup>3</sup>H濃度が全般にS-550地点より高くなっているのは、第2排水口からの<sup>3</sup>H放出の影響を受けているのであろう。

<sup>3</sup>Hが沿岸に放出されると、通常は1両日中に拡散希釈されることが過去の拡散実験の結果から推定される<sup>(13)</sup>。我々の<sup>3</sup>H濃度測定の結果も沿岸拡散の状況を解明するためのデータとして今後さらに検討してゆく考えである。



## 7. む す び

環境試料中低レベルの低エネルギーβ線放出核種の定量のため最近良く使われだした低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置について、その特性のいくつかを明らかにし、測定容器についての考察を行なった。また、原子力施設から放出が予想される<sup>3</sup>Hについて、海水中<sup>3</sup>H濃度の簡便な定量法について検討し、東海村沿岸の表面海水中<sup>3</sup>H濃度のデータを蓄積した。今後は海水のみでなく雨水、地下水、河川水等の<sup>3</sup>H濃度を測定し、環境中での<sup>3</sup>Hの動態を明らかにしていく計画である。

おわりに海水試料採取に際して、心よく協力して下さった環境第2研究室の今井利夫、柳瀬信之の両氏に、心よりお礼を申し上げます。

## 参 考 文 献

- (1) 岩倉哲男, 樫田義彦: 低放射能試料の測定—ローバックカウンタと試料調整法. RADIOISOTOPES 24, No.9, 70 (1975)
- (2) T. Iwakura et al; A Low Background Liquid scintillation Counter for Measurement of Low-level Tritium: International Symposium of the Behaviour of Tritium in the Environment. San Francisco 16-20 October 1978.
- (3) プライス: 放射線計測—第3章 検出系に関する統計学 (コロナ社)
- (4) RADIOISOTOPES誌編集委員会, 液体シンチレーション計数技術(XII)—市販液体シンチレーション計数装置仕様一覧. RADIOISOTOPES 24, 926(1975)
- (5) 石河寛昭: 液体シンチレーション測定法, 南山堂 (1977)
- (6) 樫田義彦, 低エネルギーベータ線の測定—液体シンチレーションによる測定法(I) RADIOISOTOPES 16, 85 (1967)
- (7) M. Yamashita: Anomalous Gain Changes in Photomultiplier Tubes for Use in Scintillation Counting. Rev. Sci. Instrum. 49, 499 (1978)
- (8) 岩倉哲男他: 液体シンチレーションカウンタを用いた放射能測定における再現精度の評価—多機種の実用カウンタによる相互比較. RADIOISOTOPES. 28, 414 (1979)
- (9) 片岡滋他: 液体シンチレーションカウンタを用いた放射能測定における再現精度の評価—計数率に依存した光電子増倍管ゲインの異常変動の影響. RADIOISOTOPES. 28, 419 (1979)
- (10) 放射能測定法基準化委員会「トリチウム分析法」(1978)
- (11) 堀部純男編: 海洋学講座6—海洋無機化学 東京大学出版会(1975)
- (12) T. Nomura et al; Monitoring for the Dispersion of the Discharged Tritium in Seawater around the Tokai-mura Fuel Reprocessing Plant. IAEA-SM-232/27 (1978)
- (13) M. Fukuda, A. Kasai et al; Diffusion of Tritiated Water in Coastal Areas. Proceedings of the 3rd NEA seminar on marine Radioecology (1979), in print.

## 7. む す び

環境試料中低レベルの低エネルギーβ線放出核種の定量のため最近良く使われた低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置について、その特性のいくつかを明らかにし、測定容器についての考察を行なった。また、原子力施設から放出が予想される<sup>3</sup>Hについて、海水中<sup>3</sup>H濃度の簡便な定量法について検討し、東海村沿岸の表面海水中<sup>3</sup>H濃度のデータを蓄積した。今後は海水のみでなく雨水、地下水、河川水等の<sup>3</sup>H濃度を測定し、環境中での<sup>3</sup>Hの動態を明らかにしていく計画である。

おわりに海水試料採取に際して、心よく協力して下さった環境第2研究室の今井利夫、柳瀬信之の両氏に、心よりお礼を申し上げる。

## 参 考 文 献

- (1) 岩倉哲男, 樫田義彦: 低放射能試料の測定—ローバックカウンタと試料調整法. RADIOISOTOPES 24, No.9, 70 (1975)
- (2) T. Iwakura et al; A Low Background Liquid scintillation Counter for Measurement of Low-level Tritium: International Symposium of the Behaviour of Tritium in the Environment. San Francisco 16-20 October 1978.
- (3) プライス: 放射線計測—第3章 検出系に関する統計学 (コロナ社)
- (4) RADIOISOTOPES誌編集委員会, 液体シンチレーション計数技術(XII)—市販液体シンチレーション計数装置仕様一覧. RADIOISOTOPES 24, 926(1975)
- (5) 石河寛昭: 液体シンチレーション測定法, 南山堂 (1977)
- (6) 樫田義彦, 低エネルギーベータ線の測定—液体シンチレーションによる測定法(I) RADIOISOTOPES 16, 85 (1967)
- (7) M. Yamashita: Anomalous Gain Changes in Photomultiplier Tubes for Use in Scintillation Counting. Rev. Sci. Instrum. 49, 499 (1978)
- (8) 岩倉哲男他: 液体シンチレーションカウンタを用いた放射能測定における再現精度の評価—多機種の実用カウンタによる相互比較. RADIOISOTOPES, 28, 414 (1979)
- (9) 片岡滋他: 液体シンチレーションカウンタを用いた放射能測定における再現精度の評価—計数率に依存した光電子増倍管ゲインの異常変動の影響. RADIOISOTOPES, 28, 419 (1979)
- (10) 放射能測定法基準化委員会「トリチウム分析法」(1978)
- (11) 堀部純男編: 海洋学講座6—海洋無機化学 東京大学出版会(1975)
- (12) T. Nomura et al; Monitoring for the Dispersion of the Discharged Tritium in Seawater around the Tokai-mura Fuel Reprocessing Plant. IAEA-SM-232/27 (1978)
- (13) M. Fukuda, A. Kasai et al; Diffusion of Tritiated Water in Coastal Areas. Proceedings of the 3rd NEA seminar on marine Radioecology (1979), in print.

表1 95%信頼度での $\chi^2$ 値の限界値

自由度(N-1)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11~12	13~14	15~16	17~18
Y; $P(\chi^2 < Y) = 0.95$	3.84	5.99	7.81	9.49	11.07	12.59	14.07	15.51	16.92	18.31	19.68	22.36	25.00	27.59
自由度(N-1)	19~20	21~22	23~24	25~26	27~28	29~30	31~40	41~50	51~60	61~70	71~80	81~90	91~100	
Y; $P(\chi^2 < Y) = 0.95$	30.14	33.90	36.40	38.90	41.30	43.80	55.80	67.50	79.10	90.50	101.9	113.1	124.3	

N: リピート測定におけるリピート測定回数

Y: 95%信頼度での $\chi^2$ 値の限界値

$P(\chi^2 < Y)$ :  $\chi^2 < Y$ である確率

表2 蒸留水をクエンチャーとしてのクエンチングスタンダード

	外部線源比		<sup>3</sup> H測定領域における計数効率(%)						バイアル キャップ
	ゲイン	×10,0.6	0.4		0.5		0.5		
	ディスクリ	600-1000	60-500		60-500		100-500		
	R	ΔR	E	ΔE	E	ΔE	E	ΔE	
A	5.78	0.02	10.41	0.07	9.83	0.08	9.38	0.07	緑
	6.88	0.02	12.29	0.08	11.56	0.09	11.10	0.08	"
	7.91	0.02	13.51	0.09	12.61	0.08	12.11	0.09	"
	8.80	0.02	14.89	0.10	13.82	0.09	13.25	0.09	テフロン白
	8.93	0.03	14.83	0.11	13.61	0.09	12.98	0.10	"
	10.39	0.03	16.97	0.10	15.09	0.09	14.21	0.10	"
	14.81	0.04	23.75	0.15	20.67	0.13	20.02	0.13	"
	16.60	0.04	25.47	0.16	21.62	0.15	21.06	0.14	"
B	5.54	0.02	10.58	0.05	9.96	0.06	9.74	0.05	緑
	6.72	0.02	12.22	0.05	11.42	0.05	11.11	0.06	"
	7.81	0.02	13.38	0.07	12.38	0.06	12.14	0.07	"
	9.11	0.02	14.80	0.07	13.61	0.08	13.35	0.07	"
	10.80	0.03	16.92	0.07	15.22	0.09	15.02	0.08	"
	10.61	0.03	15.17	0.06	14.24	0.08	13.46	0.07	"
	11.80	0.03	17.37	0.08	15.85	0.10	15.16	0.08	"
	15.42	0.04	24.47	0.10	21.21	0.17	20.86	0.11	"
17.21	0.04	26.50	0.12	22.04	0.26	21.91	0.15	"	

A : A社検定の<sup>3</sup>H内部標準線源を使用 (79.2)

B : B社 " (78.10)

測定バイアルはテフロンバイアル

表3 標準海水をクエンチャーとしてのクエンチングスタンダード

	外部線源比		<sup>3</sup> H測定領域における計数効率(%)						バイアル キャップ の色
	ゲイン	×10, 0.6	0.4		0.5		0.5		
	ディスクリ	600-1000	60-500		60-500		100-500		
	R	ΔR	E	ΔE	E	ΔE	E	ΔE	
A	5.86	0.02	10.31	0.08	9.87	0.07	9.56	0.08	白
	6.90	0.02	12.26	0.09	11.77	0.08	11.06	0.07	〃
	7.63	0.02	12.98	0.09	12.34	0.10	11.58	0.09	〃
	8.03	0.02	13.39	0.10	13.22	0.09	12.22	0.08	〃
	10.56	0.03	15.45	0.11	13.75	0.10	13.30	0.10	〃
	13.77	0.04	22.19	0.15	19.61	0.13	18.93	0.14	〃
	16.60	0.04	25.47	0.16	21.62	0.15	21.06	0.14	〃
B	5.83	0.02			9.70	0.08	8.93	0.10	緑
	6.87	0.02			11.58	0.08	10.91	0.08	〃
	7.97	0.02			12.65	0.11	12.14	0.11	〃
	8.75	0.03			13.23	0.10	12.76	0.11	〃
	9.64	0.03			13.51	0.09	13.19	0.09	〃
	11.67	0.03			15.32	0.11	14.85	0.10	〃
	14.91	0.04			21.20	0.14	20.47	0.13	〃
	17.15	0.04			22.65	0.16	22.04	0.17	〃

A : A社検定<sup>3</sup>Hを使用(79.2)

B : B社検定<sup>3</sup>Hを使用(78.10)

測定バイアルはテフロンバイアル

表4 クエンチャーの塩分量と外部線源比及び<sup>3</sup>H計数効率

アクア ゾル II (mℓ)	標準 海水 (mℓ)	蒸留水 (mℓ)	表面 海水 (mℓ)	塩分 (‰ S)	外部線源比		<sup>3</sup> H 領域計数効率				備考		
					ゲイン × 10, 0.6		0.5		0.5			0.5	
					600-1000	4R	100-500	4E	E	E		4E	
50	50	0	0	35.00	6.21	0.02	6.21	0.02	11.11	0.03	11.49	0.04	BG 試料  東海沖 x 地点 y 地点 z 地点
50	0	50	0	0.01	6.56	0.02	6.56	0.02	10.88	0.06	11.23	0.05	
50	49	1	0		6.80	0.02	6.80	0.02	11.43	0.03	11.67	0.03	
50	40	10	0	28.16	7.07	0.04	7.07	0.04	11.45	0.02	11.78	0.03	
50	30	20	0	21.32	7.14	0.02	7.14	0.02	11.60	0.03	12.03	0.06	
50	20	30	0	14.24	7.25	0.02	7.25	0.02	11.43	0.03	11.99	0.06	
50	10	40	0	7.39	7.04	0.02	7.04	0.02	11.06	0.02	11.38	0.04	
50	0	1	49 (x)		6.81	0.02	6.81	0.02	11.24	0.02	11.52	0.07	
50	0	1	49 (y)		6.95	0.02	6.95	0.02	10.66	0.03	10.97	0.04	
50	0	1	49 (z)		6.42	0.02	6.42	0.02					

測定バイアルはすべてテフロンバイアル

バイアルキャップの色はすべて緑色

表5 種々の測定バイアルでの同一濃度の<sup>3</sup>H水溶液の測定結果

	外部線源比		<sup>3</sup> H計数値		計数モード	<sup>3</sup> H濃度 ×10 <sup>4</sup> (pCi/ℓ)	測定 バイアル	vol比 試料水: アクアゾルII	バイアル キャップ	備 考		
	ゲイン ×10, 0.6	ディスクリ 600-1000	R	ΔR							cpm	Δcpm
a	6.92		0.02		742.6, 10.8	5.44 ± 0.28	ポリエチレン	1 : 1	白	BG試料は テフロンバイアルに アクアゾルII 100mℓ BG計数の平均値 3.14 ± 0.62 cpm 10分5リポート 8 サイクル測定		
b	7.70		0.02		783.0, 12.6	5.32 ± 0.28	"	"	"			
c	6.98		0.02		749.2, 13.0	5.44 ± 0.29	"	"	"			
d	7.19		0.03		755.2, 12.9	5.36 ± 0.28	"	"	"			
1	5.42		0.03		697.9, 10.6	5.69 ± 0.30	テフロン	"	テフロン白			
2	5.89		0.02		664.7, 9.3	5.65 ± 0.29	"	"	緑			
3	6.27		0.02		771.3, 15.7	5.62 ± 0.29	"	"	緑			
4	7.14		0.02		631.9, 10.2	5.52 ± 0.30	"	"	テフロン白			
a	16.82		0.04	4.9	163.4	5.73 ± 0.33	ポリエチレン	1 : 19	白		BG試料は テフロンバイアルに アクアゾルII 100mℓ BG計数の平均値 3.19 ± 0.45 cpm 10分5リポート 2 サイクル測定	
b	16.97		0.04	5.6	166.0	5.79 ± 0.35	"	"	白			
1	14.67		0.04	3.0	142.3	5.44 ± 0.30	テフロン	"	テフロン白			
2	15.25		0.04	2.6	147.8	5.50 ± 0.29	"	"	緑			
3	15.62		0.04	5.9	150.0	5.50 ± 0.35	"	"	緑			
4	16.25		0.04	7.0	157.8	5.65 ± 0.38	"	"	テフロン白			

(注) 計数効率に±5%の誤差を見込んだ。

表6 バイアル外ぶたの違いによる外部線源比と計数効率

	バイアル 外ぶた	外部線源比		<sup>3</sup> H 計 数		(*1) 計数効率 E <sub>1</sub>	(*2) 効率曲線 から得られた 計数効率 E <sub>2</sub>	備 考
		ゲイ ン	×10, 0.6	0.4				
		ディスクリ	600-1000	60-500				
		R	ΔR	cpm	Δcpm			
A	外ぶたなし	5.59	0.01	16437	108	0.111±0.006	0.102±0.005	・バイアル本体は 同じテフロン 100ml バイアル ・放射能強度は 1.48×10 <sup>5</sup> dpm
B	プラスチック 白 色	5.57	0.02	16126	165	0.109±0.005	0.101±0.005	
C	テフロン 白色透明	5.47	0.02	15596	85	0.105±0.005	0.100±0.005	
D	プラスチック 緑 色	5.28	0.02	14620	100	0.099±0.005	0.098±0.005	
E	プラスチック 赤 色	5.26	0.02	14428	97	0.097±0.005	0.097±0.005	

(\*1) 計数効率の誤差は±5%とした。

(\*2) 効率曲線は外ぶた緑色のテフロン100ml バイアルで得られた値である。  
ゆらぎを±5%とした。



表7 海水蒸留前後での<sup>3</sup>H濃度の比較

試料名	採取日時	採取時 水温 (°C)	塩分量 (‰S)	海水原液	海水蒸留液
				Hゲイン 0.5 ディスクリ 60-500 pCi/ℓ	Hゲイン 0.4 ディスクリ 60-500 pCi/ℓ
S-20	78.3.29 14:44	11.0	24.33	$1.29 \times 10^5$	$1.33 \times 10^5$
N-20	78.3.29 14:55	10.5	26.36	$7.19 \times 10^4$	$7.44 \times 10^5$
P-1	78.3.30 14:05	10.4	0.54	$5.63 \times 10^4$	$5.53 \times 10^4$
S-100	78.3.29 11:30	11.0	30.28	$2.78 \times 10^4$	$2.92 \times 10^4$
S-100	78.3.29 14:00	11.0	26.87	$2.50 \times 10^4$	$2.57 \times 10^4$
S-100	78.3.29 12:00	11.0	30.39	$1.06 \times 10^4$	$1.19 \times 10^4$
P-2	78.6.8 14:20	21.8	0.42	$1.14 \times 10^4$	$1.02 \times 10^4$
N-800	78.6.8 14:25	19.1	31.19	$7.73 \times 10^3$	$7.08 \times 10^3$
N-20	78.6.8 13:55	20.0	24.15	$6.09 \times 10^3$	$5.21 \times 10^3$
N-75	78.6.8 14:00	19.5	24.70	$5.74 \times 10^3$	$5.34 \times 10^3$
S-1000	78.3.29 14:31	11.0	29.55	$4.22 \times 10^3$	$4.47 \times 10^3$
N-100	78.6.8 14:02	19.5	28.74	$2.95 \times 10^3$	$2.60 \times 10^3$
N-100	78.3.30 13:47	11.6	32.35	$1.12 \times 10^3$	$1.11 \times 10^3$
S-100	78.3.29 11:00	10.4	31.47	$6.06 \times 10^2$	$6.23 \times 10^2$
S-100	78.6.8 9:50	18.5	31.54	$2.01 \times 10^2$	$1.89 \times 10^2$
S-100	78.3.29 13:25	11.6	32.80	$1.20 \times 10^2$	$1.43 \times 10^2$
S-100	78.3.29 10:30	10.6	31.98	$1.17 \times 10^2$	$1.23 \times 10^2$
S-100	78.3.29 10:00	9.9	32.42	$1.05 \times 10^2$	$1.20 \times 10^2$

注) P-1, P-2 : 第2排水口における排水

S-100 : 第2排水口から南へ100m地点で採取した試料

N-100 : " 北へ "

以下これに準ずる。

表 8-1 東海村沿岸海水中の<sup>3</sup>H濃度測定結果 S-100地点

試料 番号	採取日 時	採取時 水温 (°C)	塩 分 (‰ S)	外部線源比			<sup>3</sup> H 計 数 値		計数モード	濃 度 (pCi/l)	測定バイアル	備 考
				ゲイ ン×10, 0.6	ダイ スクリ 600-1000	ΔR	dpm	0.5				
								60-500				
B 1	77. 9.21 10:15	23.5	26.29	7.49	0.03	8.50, 6.85	10分5リピート 5サイクル	77 ± 62	ポリエチレン	・ vol 比 (1:1) ・ B G 試料は ポリエチレンバイアルに アクアゾルII 100ml ・ B G 計数の平均値 2.07 ± 0.56 cpm (10分5リピート 5サイクル計測の 平均値) ・ 79.7.28~8.01 測定  ・ vol 比 (1:1) ・ B G 試料は ポリエチレンバイアルに アクアゾルII 100ml ・ B G 計数の平均値 2.62 ± 0.46 cpm (20分5リピート 3サイクル計測の 平均値)		
2	10.04 13:50	22.0	31.79	7.54	0.02	8.04, 7.14	"	72 ± 64	"			
3	10.11 13:50	22.0	33.13	7.48	0.02	11.6, 7.59	10分5リピート 4サイクル	105 ± 68	"			
4	10.18 13:40	21.6	32.88	7.57	0.04	9.20, 7.49	"	83 ± 67	"			
5	10.25 13:55	20.5	32.80	7.82	0.02	11.0, 6.76	"	99 ± 61	"			
6	11.01 13:20	22.0	33.52	7.57	0.04	9.52, 7.01	"	86 ± 63	"			
7	11.08 13:30	20.8	32.00	7.54	0.02	9.10, 5.68	"	82 ± 51	"			
8	11.14 13:50	18.0	33.03	7.80	0.02	9.39, 7.36	"	85 ± 66	"			
9	11.22 13:35	18.0	33.52	7.86	0.02	8.56, 5.61	"	77 ± 51	"			
10	11.29 13:40	17.2	33.53	7.80	0.03	8.41, 5.82	"	76 ± 52	"			
11	12.06 13:40	18.8	33.27	7.87	0.02	9.19, 5.96	"	83 ± 54	"			
12	12.13 13:35	16.0	33.88	7.92	0.02	9.70, 6.84	"	87 ± 62	"			
13	12.23 13:30	16.2	33.88	7.68	0.04	19.9, 6.51	"	180 ± 59	"			
14	78. 1.10 13:40	13.8	34.26	5.90	0.02	9.84, 5.38	20分5リピート 2サイクル	89 ± 48	"			
15	1.17 10:40	14.8	34.40	5.99	0.02	6.83, 4.74	"	62 ± 43	"			
16	1.23 13:30	13.8	34.35	5.81	0.02	12.3, 5.74	"	111 ± 52	"			
17	1.30 13:27	13.2	34.67	6.12	0.02	5.82, 5.35	"	52 ± 48	"			
18	2.13 13:35	14.0	34.72	5.84	0.02	8.54, 5.21	"	77 ± 47	"			
19	2.21 10:25	13.0	34.64	6.03	0.02	11.0, 7.43	"	99 ± 67	"			
20	2.27 13:40	13.0	34.65	6.76	0.02	5.80, 4.19	"	52 ± 38	"			
21	3.06 13:40	13.7	34.12	5.90	0.02	2.84, 4.95	"	ND (27)	"			

表 8-1 東海村沿岸海水中の <sup>3</sup>H 濃度測定結果 S-100地点(続き)

試料 番号	採 取 日 時	採 取 時 水 温 (°C)	塩 分 (‰S)	外 部 線 源 比		<sup>3</sup> H 計 数 値		濃 度 (pCi/ℓ)	測 定 バ イ ア ル	備 考
				ゲ イ ン ×10.0.6	ΔR	0.5				
						ディスクリ 600-1000	dpm Δdpm			
B 22	78. 3.13 13:30	13.0	34.08	5.90	0.02	7.12 , 7.03	20分5リピート 2サイクル	64 ± 63	ポリエチレン	79.1.30~2.02 測定
23	3.20 13:30	13.8	34.21	5.97	0.02	13.3 , 6.88	"	120 ± 62	"	
24	3.27 13:40	12.0	32.77	6.11	0.02	5.43 , 5.33	"	49 ± 48	"	
25	4.04 14:10	8.2	32.11	5.99	0.02	5.86 , 5.55	"	53 ± 50	"	
26	4.10 13:45	9.5	33.22	6.17	0.02	9.93 , 7.99	"	89 ± 72	"	
27	4.17 9:40	9.0	32.37	6.01	0.02	7.70 , 5.20	"	69 ± 47	"	
28	4.24 13:25	11.5	32.82	5.85	0.02	12.5 , 4.74	20分5リピート 1サイクル	113 ± 43	テフロン	
29	5.01 13:20	13.0	33.39	6.11	0.02	12.3 , 4.72	"	111 ± 43	"	
30	5.08 13:25	15.2	31.77	6.20	0.02	9.66 , 5.62	"	87 ± 51	"	
31	5.15 13:30	16.5	32.76	6.05	0.02	9.98 , 4.58	"	90 ± 41	"	
32	5.22 13:15	16.8	26.51	6.05	0.02	11.2 , 5.84	"	101 ± 53	"	
33	5.29 13:35	17.5	31.63	6.08	0.02	30.2 , 8.85	"	272 ± 80	"	
34	6.05 13:42	16.7	32.62	5.97	0.02	24.1 , 8.39	"	217 ± 76	"	
35	6.12 13:24	14.2	31.21	6.10	0.02	13.6 , 5.94	"	123 ± 53	"	
36	6.19 13:10	14.1	33.04	6.11	0.02	10.6 , 5.81	"	96 ± 52	"	
37	6.26 13:13	13.3	32.70	6.22	0.02	11.8 , 5.61	"	107 ± 51	"	
38	7.03 13:20	16.2	29.48	6.31	0.02	11.5 , 5.61	"	104 ± 51	"	
39	7.11 13:50	20.4	30.65	6.32	0.02	16.3 , 5.50	"	146 ± 50	"	
40	7.17 13:25	20.2	32.19	5.59	0.02	11.2 , 7.52	"	101 ± 68	"	
41	7.24 13:38	24.5	28.63	5.64	0.02	15.9 , 6.51	"	143 ± 59	"	

表 8-2 東海村沿岸海水中<sup>3</sup>H濃度の測定結果 S-100地点

試料 番号	採取日時	採取時 水温 (°C)	塩分 (‰S)	外部線源比			H 計数值		濃度 (pCi/l)	測定バイアル	備 考
				ゲイン ×10, 0.6	R	ΔR	dpm	Δdpm			
B42	78. 7.31 13:47	18.2	32.93	5.21	0.02	14.5	4.82	139 ± 46	テ フ ロ ン	・ vol 比 (1:1) ・ B G 試料は テ フ ロ ン バ イ ア ル に ア ク ア ソ ル II 100 mℓ ・ B G 計数の平均値 3.14 ± 0.34 cpm (100分2リピート 3サイクル計測 平均値) 79.9.07~9.13測定  ・ vol 比 (1:1) ・ B G 試料は テ フ ロ ン バ イ ア ル に ア ク ア ソ ル II 100 mℓ ・ B G 計数の平均値 3.14 ± 0.44 cpm (20分5リピート 4サイクル計測の 平均値) 79.9.21~9.26測定	
43	8.07 13:50	18.5	33.10	5.92	0.02	13.9	4.42	133 ± 42	"		
44	8.15 13:20	20.5	33.52	5.94	0.02	11.8	4.48	113 ± 43	"		
45	8.21 13:35	19.7	32.92	5.20	0.02	15.4	4.24	148 ± 41	"		
46	8.28 13:39	23.0	32.86	5.78	0.02	15.8	3.80	155 ± 37	"		
47	9.04 13:35	20.5	32.56	5.71	0.02	10.4	3.57	99 ± 34	"		
48	9.11 14:15	21.0	32.94	5.73	0.02	10.4	3.42	99 ± 33	"		
49	9.18 13:35	22.7	28.60	5.84	0.02	16.0	3.41	157 ± 33	"		
50	9.25 13:20	21.7	33.43	5.87	0.02	12.1	3.98	115 ± 38	"		
51	10.03 13:35	20.9	31.73	5.93	0.02	11.9	3.55	113 ± 34	"		
52	10.11 13:35	17.0	32.68	5.87	0.01	13.2	4.53	125 ± 43	"		
53	10.16 14:10	17.5	33.53	5.23	0.01	16.4	5.07	147 ± 46	"		
54	10.23 13:18	16.8	32.77	5.53	0.02	12.8	3.81	121 ± 36	"		
55	10.29 13:40	15.9	28.15	5.51	0.02	12.3	5.04	117 ± 48	"		
56	11.06 13:50	15.5	33.42	5.88	0.02	8.83	7.04	84 ± 67	"		
57	11.14 14:05	13.6	33.22	6.05	0.02	9.62	5.54	91 ± 52	"		
58	11.20 13:35	13.9	33.33	6.08	0.02	9.21	5.55	87 ± 52	"		
59	11.27 13:45	13.0	33.07	6.05	0.02	9.08	5.82	86 ± 55	"		
60	12.04 13:50	13.7	33.80	6.05	0.02	9.69	5.97	91 ± 56	"		
61	12.13 13:35	12.8	34.07	6.07	0.02	20.4	6.61	192 ± 62	"		
62	12.18 13:45	14.2	34.35	6.00	0.02	10.2	5.48	96 ± 52	"		
63	12.22 14:05	12.9	34.49	5.97	0.02	10.5	6.48	99 ± 61	"		
64	12.27 13:50	14.8	34.48	6.01	0.02	10.2	6.60	96 ± 62	"		

表 8—3 東海村沿岸海水中<sup>3</sup>H濃度の測定結果 S—550 地点

試料 番号	採 取 日 時	採 取 時 水 温 (°C)	塩 分 (‰S)	外 部 線 源 比		<sup>3</sup> H 計 数 値		濃 度 (pCi/l)	測 定	備 考		
				ゲイ ン	×10, 0.6	R	ΔR				dpm	Δdpm
C 1	77. 9.21 15:50	24.0	31.47	7.07	0.03	10.5	7.97	95 ± 72	ポリエチレン	vol比 (1:1) BG 試料はポリエチレン バイアルにアクアゾルⅡ 100ml BG 計数の平均値 2.06±0.44cpm (10分5リピート 5サイクル計測) の平均値 78.8.08~8.11測定  vol比 (1:1) BG 試料はポリエチレン バイアルにアクアゾルⅡ 100ml BG 計数の平均値 1.94±0.41cpm (10分5リピート 5サイクルの平均) 78.8.11~8.14		
2	10.04 13:55	22.0	31.27	7.15	0.03	7.53	6.21	68 ± 56	"			
3	10.11 14:00	22.0	32.94	6.95	0.02	7.80	5.31	70 ± 48	"			
4	10.18 13:45	21.2	32.94	6.99	0.02	9.82	7.04	88 ± 63	"			
5	10.25 14:00	20.5	32.52	7.02	0.02	10.1	6.59	91 ± 59	"			
6	11.01 13:30	22.0	33.25	6.98	0.02	7.78	8.76	70 ± 79	"			
7	11.08 13:35	20.8	32.42	7.30	0.02	10.9	6.07	98 ± 55	"			
8	11.14 14:00	18.0	33.10	7.23	0.03	8.21	5.79	74 ± 52	"			
9	11.22 13:45	—	33.38	6.99	0.03	8.07	7.97	73 ± 72	"			
10	11.29 13:45	16.8	33.59	6.88	0.01	8.00	5.48	72 ± 49	"			
11	12.06 13:45	17.6	32.78	7.18	0.06	8.14	7.24	73 ± 65	"			
12	12.13 13:40	15.7	33.89	7.31	0.02	11.0	6.48	99 ± 58	"			
13	12.23 13:35	16.0	33.66	7.30	0.02	20.3	8.37	183 ± 75	"			
14	78. 1.10 13:45	13.7	34.12	7.61	0.02	9.65	6.40	87 ± 58	"			
15	1.17 10:45	14.0	34.31	7.64	0.02	10.3	5.86	92 ± 53	"			
16	1.23 13:55	13.0	34.40	7.57	0.01	9.04	6.63	81 ± 60	"			
17	1.30 13:35	13.1	34.30	7.75	0.02	8.23	7.10	74 ± 64	"			
18	2.13 13:40	14.0	34.47	7.00	0.02	10.4	6.16	94 ± 56	"			
19	2.21 10:30	13.0	34.52	7.71	0.03	8.11	5.46	73 ± 49	"			
20	2.27 13:45	13.0	34.55	7.59	0.02	7.19	6.87	65 ± 62	"			
21	3.06 13:45	14.2	34.29	7.68	0.03	9.09	5.71	82 ± 51	"			

表 8-3 続き

試料 番号	採取日 時	採取時 水温 (°C)	塩分 (‰)	外部線源比			3H 計数值		濃度 (pCi/l)	測定	備考	
				ゲイン ×10.06	ディスクリ 600-1000	R	ΔR	計数モード				
								60-500				dpm
C22	78. 3.13 13: 35	12.5	34.14	7.59	0.02	8.28	6.82	75 ± 61	ポリエチレン	vol比(1:1) BG試料はテフロン バイアルにテフロンII 100ml BG計数の平均値 2.34 ± 0.26 pcm 20分5リピート 3 サイクル計数 の平均値 79.2.06 ~ 2.09		
23	3.20 13: 40	13.8	34.17	7.65	0.02	11.1	6.54	100 ± 59	"			
24	3.27 13: 45	12.0	32.70	7.48	0.03	11.5	6.26	104 ± 56	"			
25	4.04 14: 20	8.2	31.47	7.69	0.03	9.13	6.64	82 ± 60	"			
26	4.10 13: 55	9.0	33.25	7.74	0.03	8.32	5.35	75 ± 48	"			
27	4.17 9: 50	-	32.43	7.38	0.01	8.34	5.97	75 ± 54	"			
28	4.24 13: 35	11.5	32.71	6.33	0.02	9.77	3.78	88 ± 34	テフロン			
29	5.01 13: 25	13.0	33.31	5.80	0.02	11.9	6.76	107 ± 61	"			
30	5.08 13: 33	15.0	32.03	6.32	0.02	9.22	4.60	83 ± 41	"			
31	5.15 13: 37	16.5	32.73	6.23	0.02	9.04	4.34	81 ± 39	"			
32	5.22 13: 22	16.6	27.22	6.23	0.02	12.0	5.54	108 ± 50	"			
33	5.29 13: 43	17.0	31.68	6.29	0.02	26.1	4.42	235 ± 40	"			
34	6.05 13: 50	16.7	32.38	6.36	0.02	21.4	5.65	192 ± 51	"			
35	6.12 13: 30	14.0	30.92	6.08	0.02	11.5	4.78	103 ± 43	"			
36	6.19 13: 15	13.4	33.06	6.16	0.01	12.2	5.41	110 ± 49	"			
37	6.26 13: 18	13.7	32.06	6.35	0.01	10.5	4.93	95 ± 44	"			
38	7.03 13: 25	16.6	29.26	6.62	0.02	12.0	4.22	108 ± 38	"			
39	7.11 13: 55	20.3	30.90	6.14	0.02	12.1	5.77	109 ± 52	"			
40	7.17 13: 30	20.4	32.00	6.51	0.02	11.7	5.34	105 ± 48	"			
41	7.24 13: 46	24.8	28.20	6.15	0.02	10.2	5.87	92 ± 53	"			

表8-4 東海村沿岸海水中<sup>3</sup>H濃度測定結果 S-550 地点

試料 番号	採取日時	採取時 水温 (°C)	塩分 (‰S)	外部線源比		<sup>3</sup> H計数值		濃度 (pCi/l)	測定	備考	
				ゲイン ×10.0.6	R	ΔR	dpm				Δdpm
C42	78. 7.31 13:53	18.2	33.05	5.53	0.02	13.5	2.94	129 ± 28	テフロン	・vol比(1:1) BG試料はテフロンパ イアルにアクアゾルⅡ 100ml ・BG計数の平均値 3.01 ± 0.14 cpm 100分2リピート 2 サイクル計測の 平均値 79.9.13 ~ 9.18測定 ・vol比(1:1) BG試料はテフロンパ イアルにアクアゾルⅡ 100ml ・BG計数の平均値 3.18 ± 0.43 cpcpm 20分5リピート 4 サイクル計測 の平均値 79.9.26 ~10.1測定	
43	8.07 13:55	17.2	33.07	5.95	0.01	11.1	2.18	106 ± 21	"		
44	8.15 13:30	20.4	33.44	6.01	0.02	10.6	2.00	102 ± 19	"		
45	8.21 13:42	19.2	32.78	5.89	0.02	14.3	3.01	137 ± 29	"		
46	8.28 13:46	22.1	32.94	5.95	0.02	12.0	4.27	114 ± 41	"		
47	9.04 13:40	20.3	32.77	5.56	0.02	13.5	2.35	132 ± 23	"		
48	9.11 14:20	21.0	33.06	5.73	0.02	11.4	2.88	109 ± 28	"		
49	9.18 13:40	22.2	31.96	5.84	0.02	11.9	2.39	113 ± 23	"		
50	9.25 13:27	21.1	33.46	5.71	0.02	10.7	1.47	104 ± 14	"		
51	10.03 13:43	20.6	31.92	5.97	0.02	10.8	2.71	103 ± 26	"		
52	10.11 13:40	17.0	32.77	5.88	0.02	8.70	1.44	83 ± 14	"		
53	10.16 14:16	17.5	33.52	5.93	0.02	9.46	3.33	90 ± 32	"		
54	10.23 13:25	16.9	33.34	5.93	0.01	11.9	1.85	113 ± 18	"		
55	10.29 13:47	15.6	27.06	5.77	0.02	12.5	2.00	118 ± 19	"		
56	11.06 13:57	14.0	33.32	5.98	0.02	10.8	6.23	102 ± 59	"		
57	11.14 14:10	13.8	33.08	6.00	0.02	9.16	5.90	87 ± 56	"		
58	11.20 13:45	13.7	33.60	5.99	0.02	8.66	6.10	82 ± 58	"		
59	11.27 13:50	13.0	32.92	6.02	0.02	8.74	6.65	83 ± 63	"		
60	12.04 13:55	13.5	33.72	6.06	0.02	9.58	5.98	90 ± 56	"		
61	12.13 13:40	12.2	33.99	6.05	0.02	17.5	5.98	165 ± 56	"		
62	12.18 13:53	14.0	34.34	5.95	0.01	12.9	6.45	122 ± 61	"		
63	12.22 14:10	11.9	34.33	6.05	0.02	11.0	5.93	103 ± 56	"		
64	12.27 13:55	14.0	34.45	6.05	0.02	9.84	5.64	93 ± 53	"		

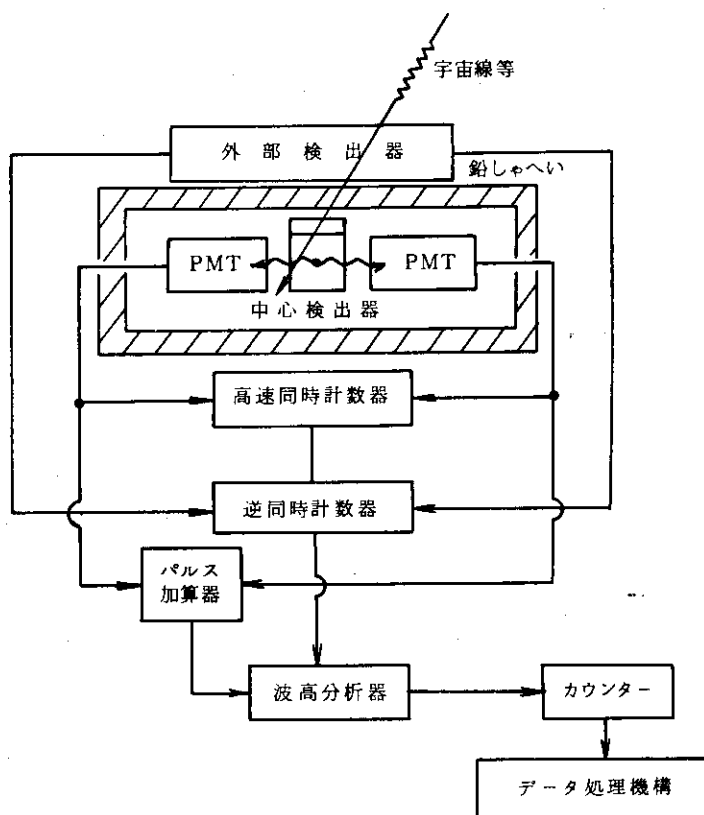


図1 低バックグラウンド液体シンチレーション計数システム・ブロック図

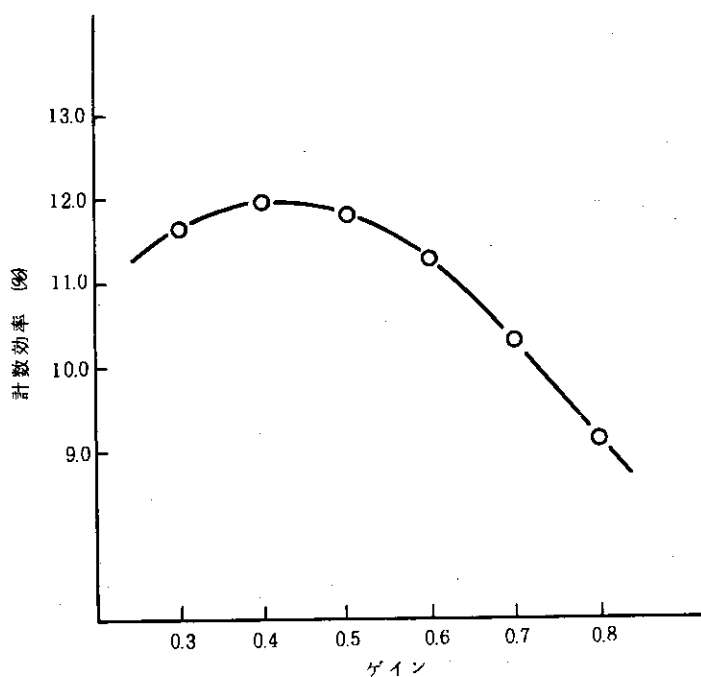


図2 増幅器のゲインと計数効率



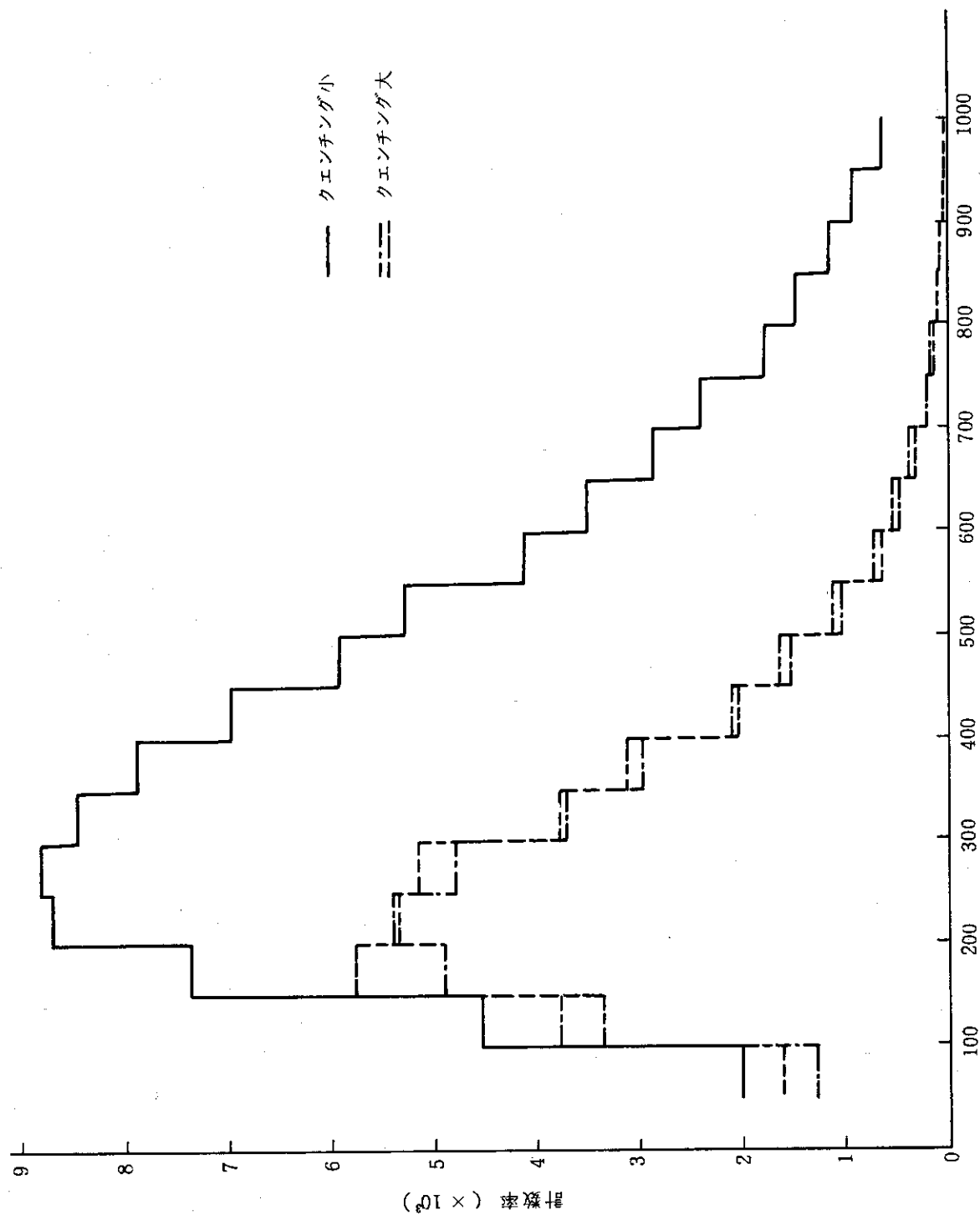


図3 <sup>3</sup>Hのβ線スペクトル

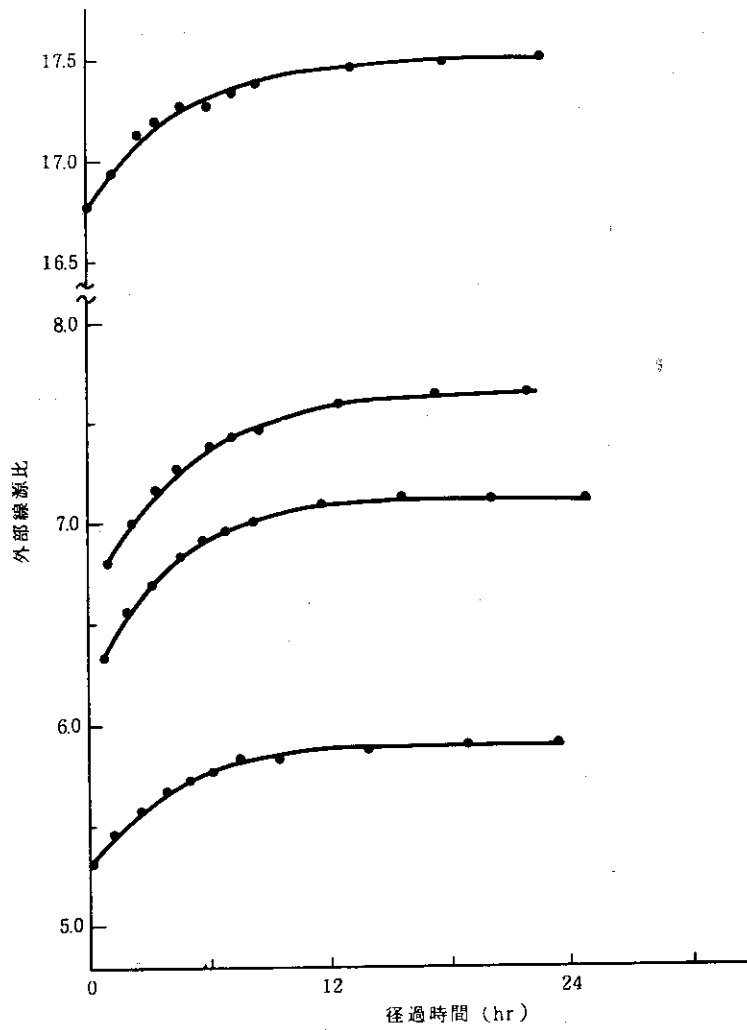


図4 外部線源比の径時変動

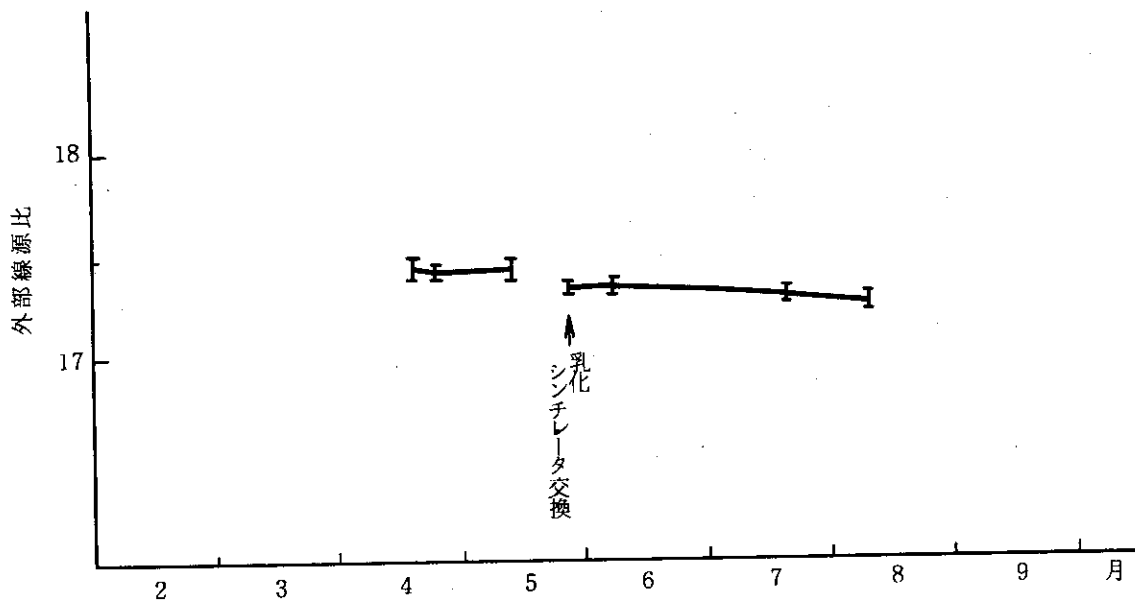


図5 外部線源比の長期変動

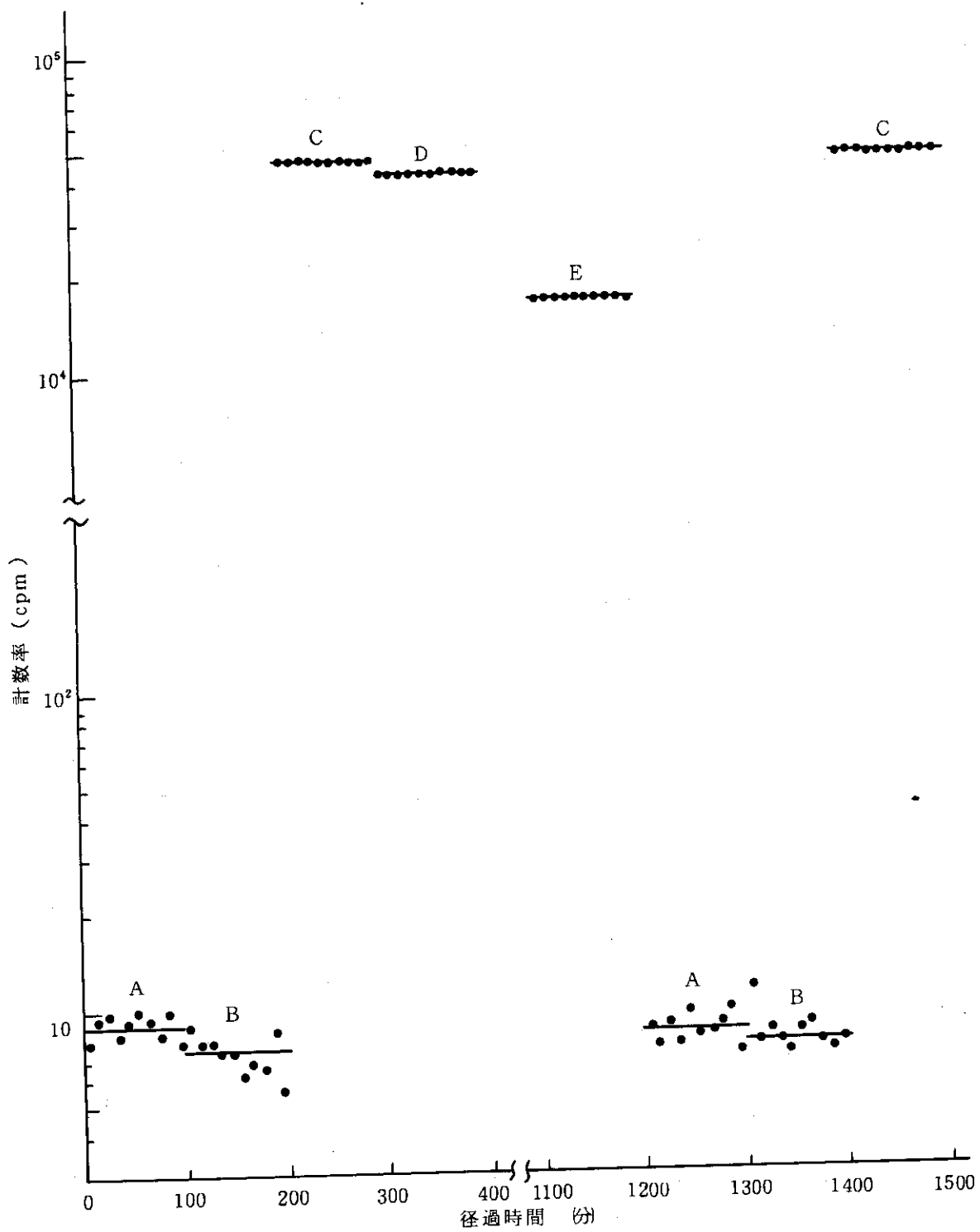


図6 計数率の安定性

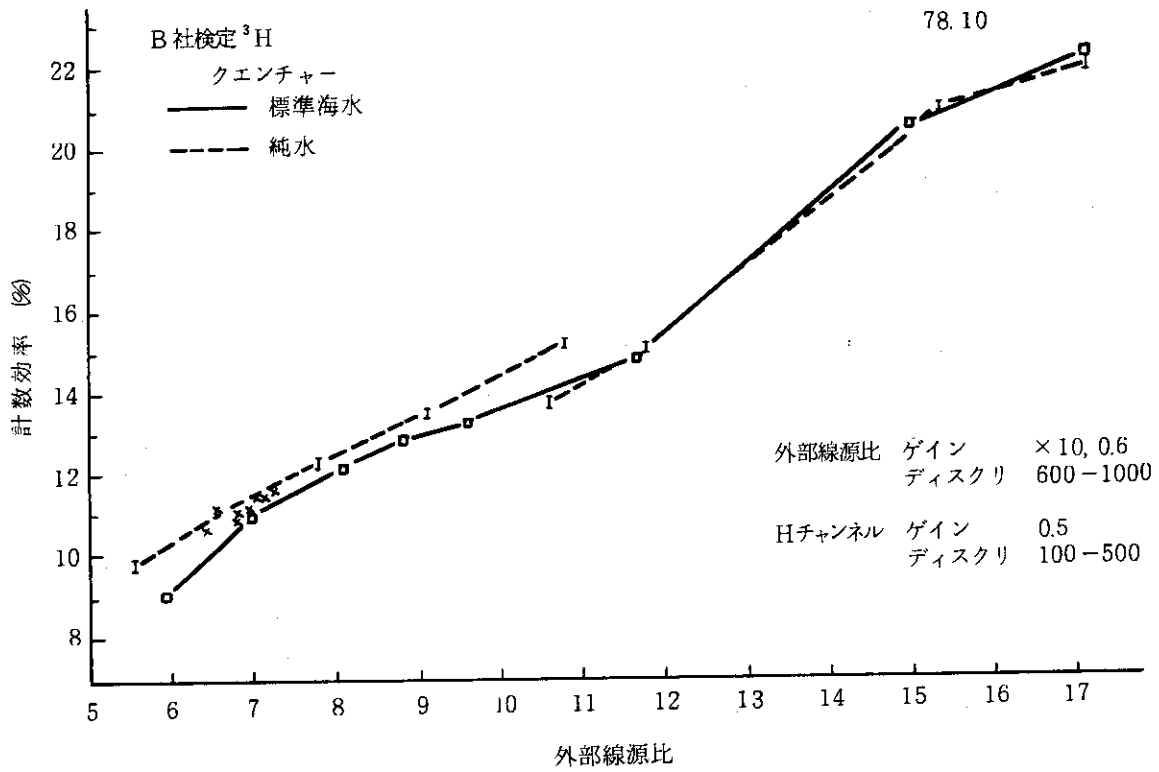


図7 外部線源比-効率曲線 (その1)

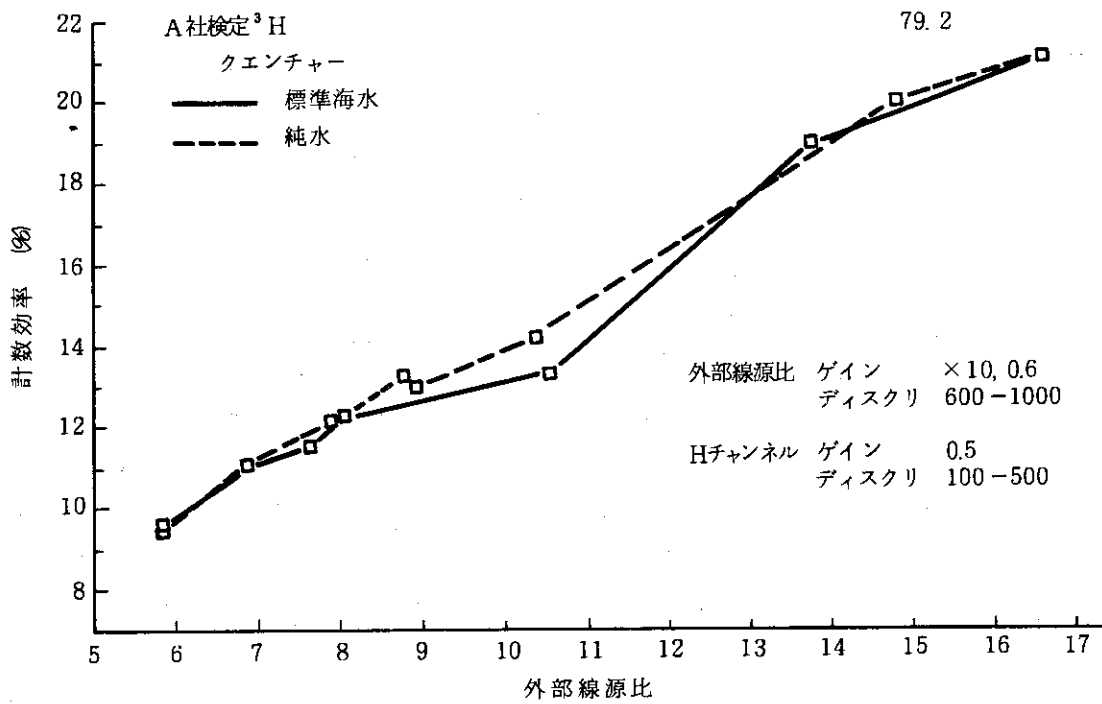


図8 外部線源比-効率曲線 (その2)

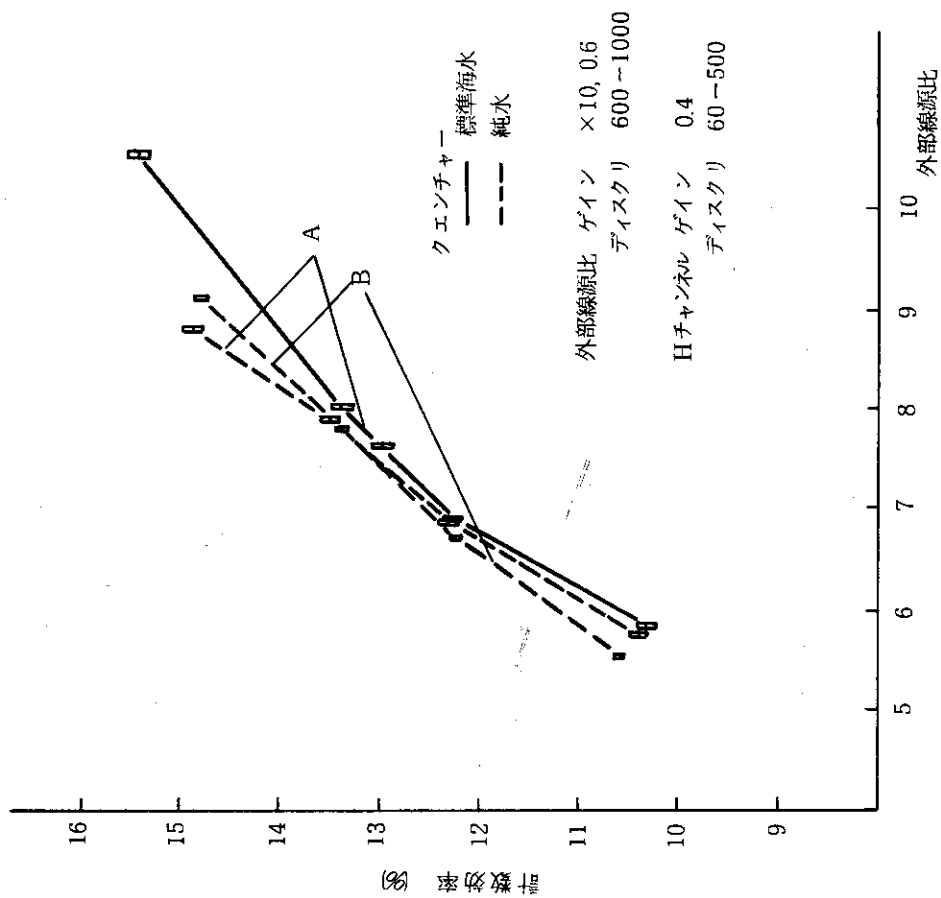


図9 外部線源比-効率曲線 (その3)

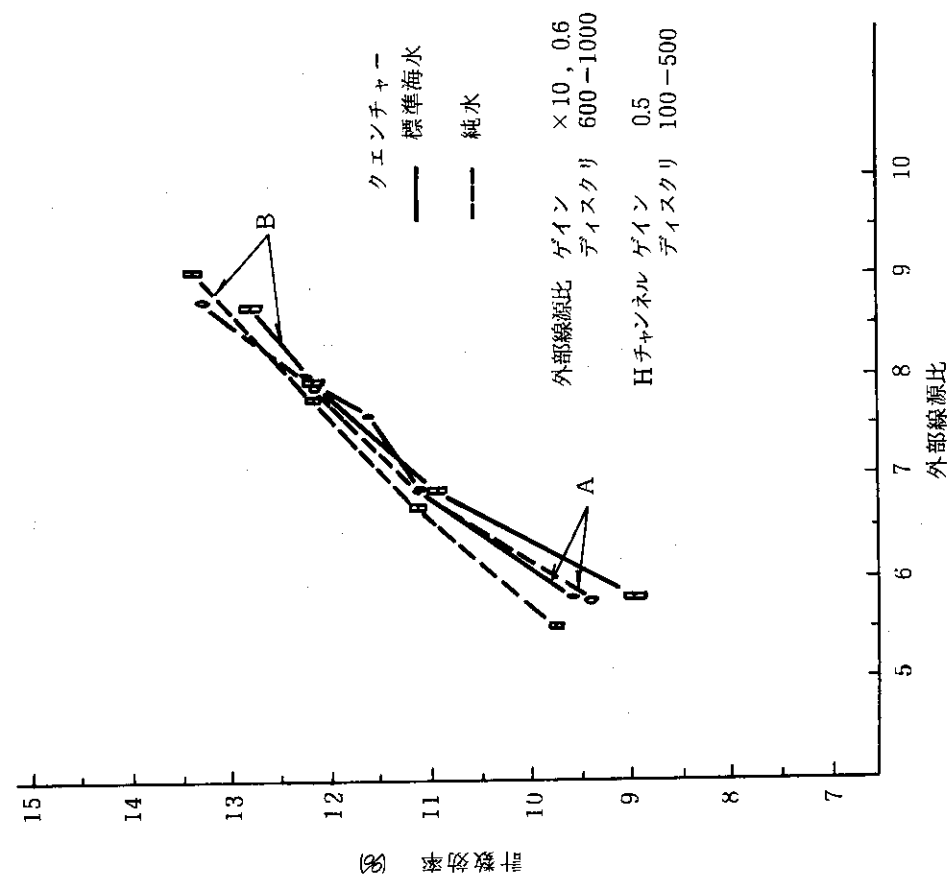


図10 外部線源比-効率曲線 (その4)

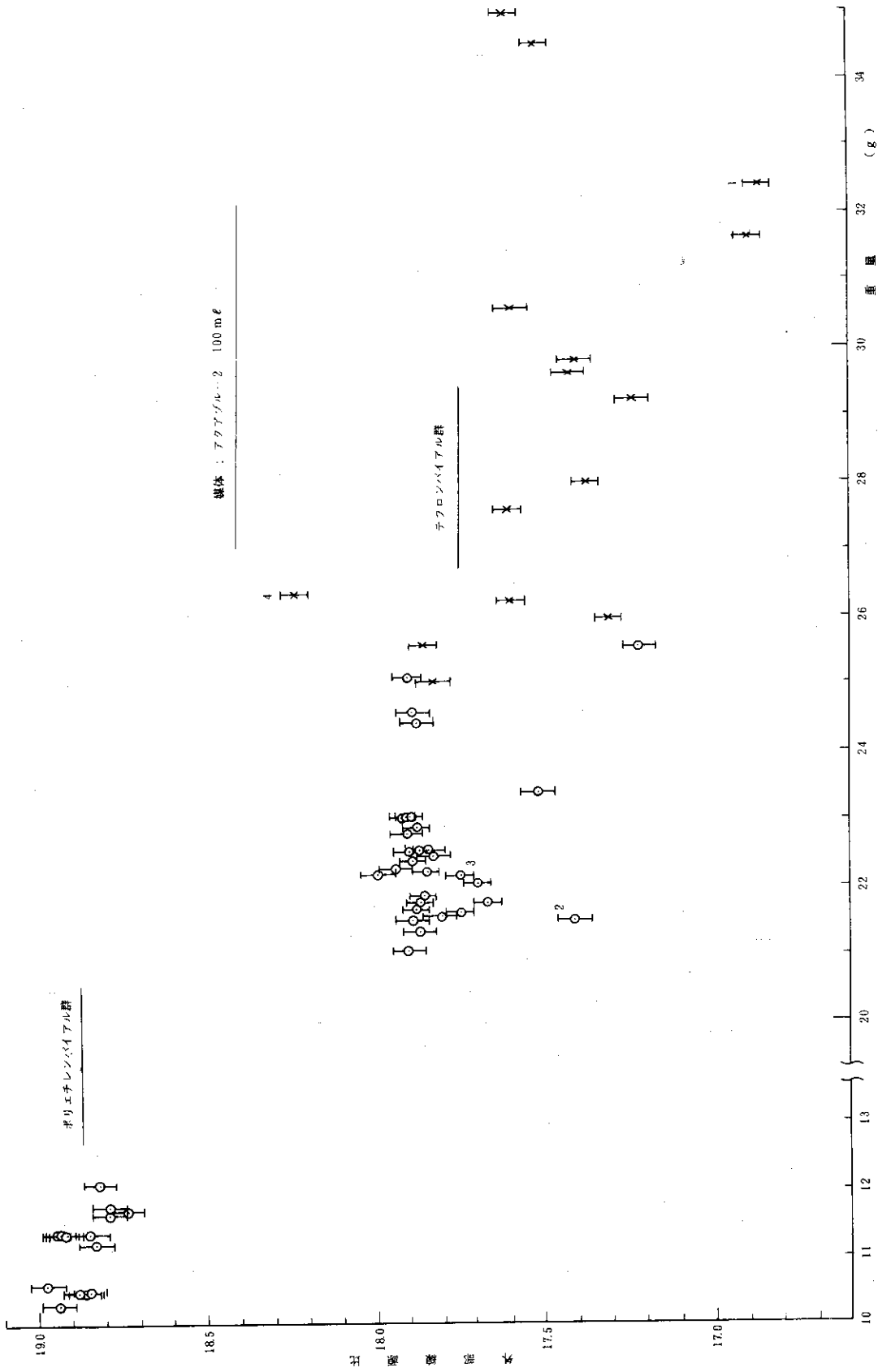


図 11 100 ml バイアル瓶重量と外部線源比との相関

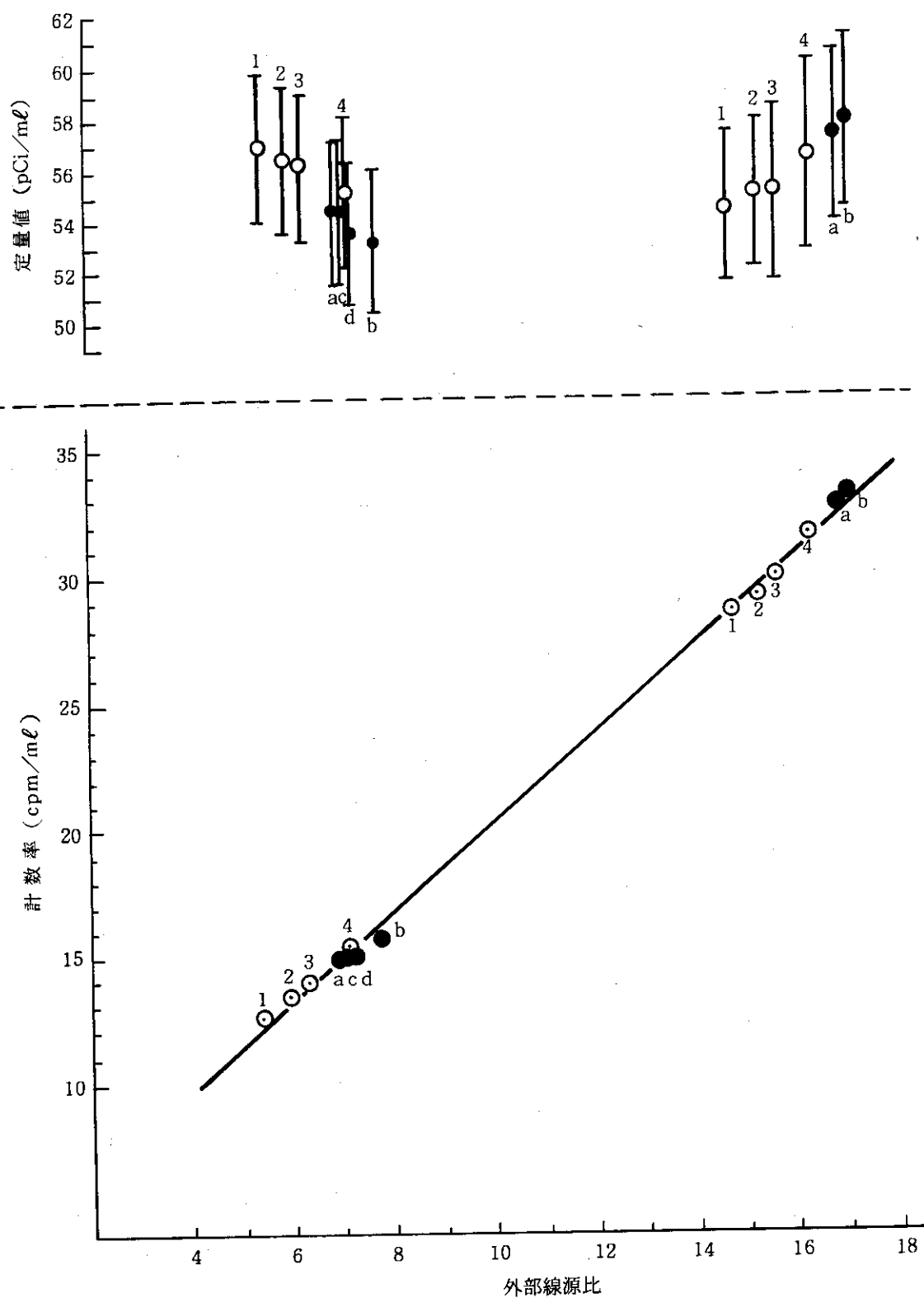


図12 測定容器毎のクエンチングと計数率

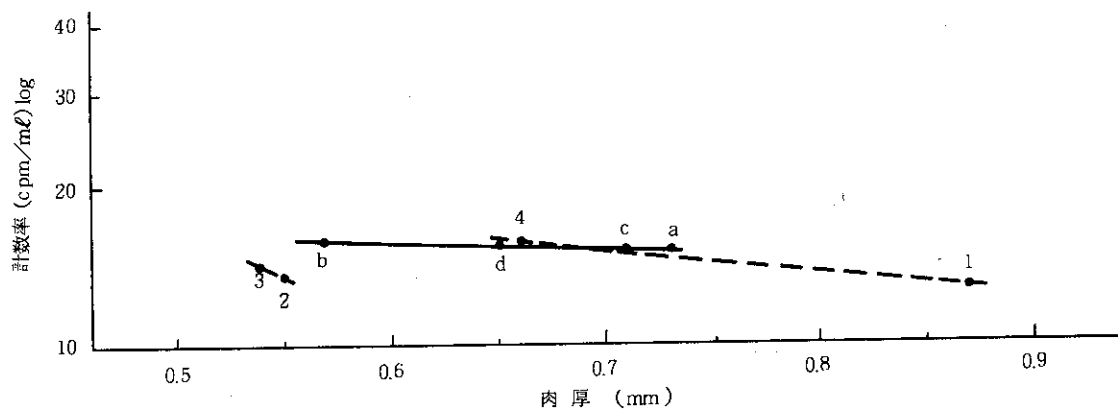


図13 測定バイアルの肉厚と計数率との相関

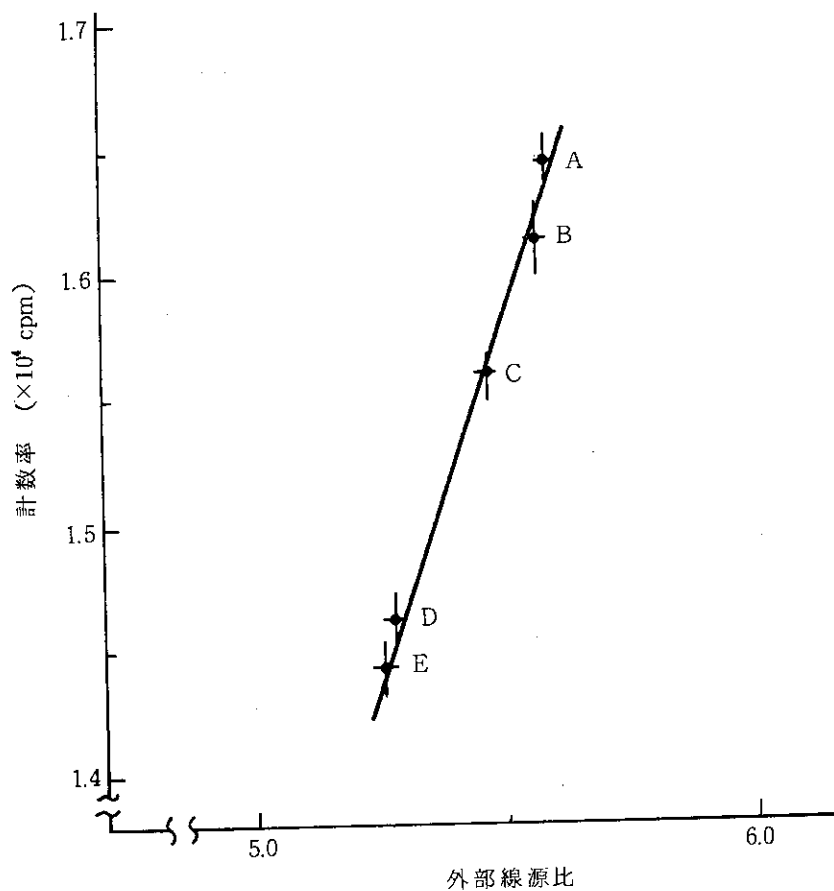


図14 バイアル外ぶたの違いによる外部線源比と計数率



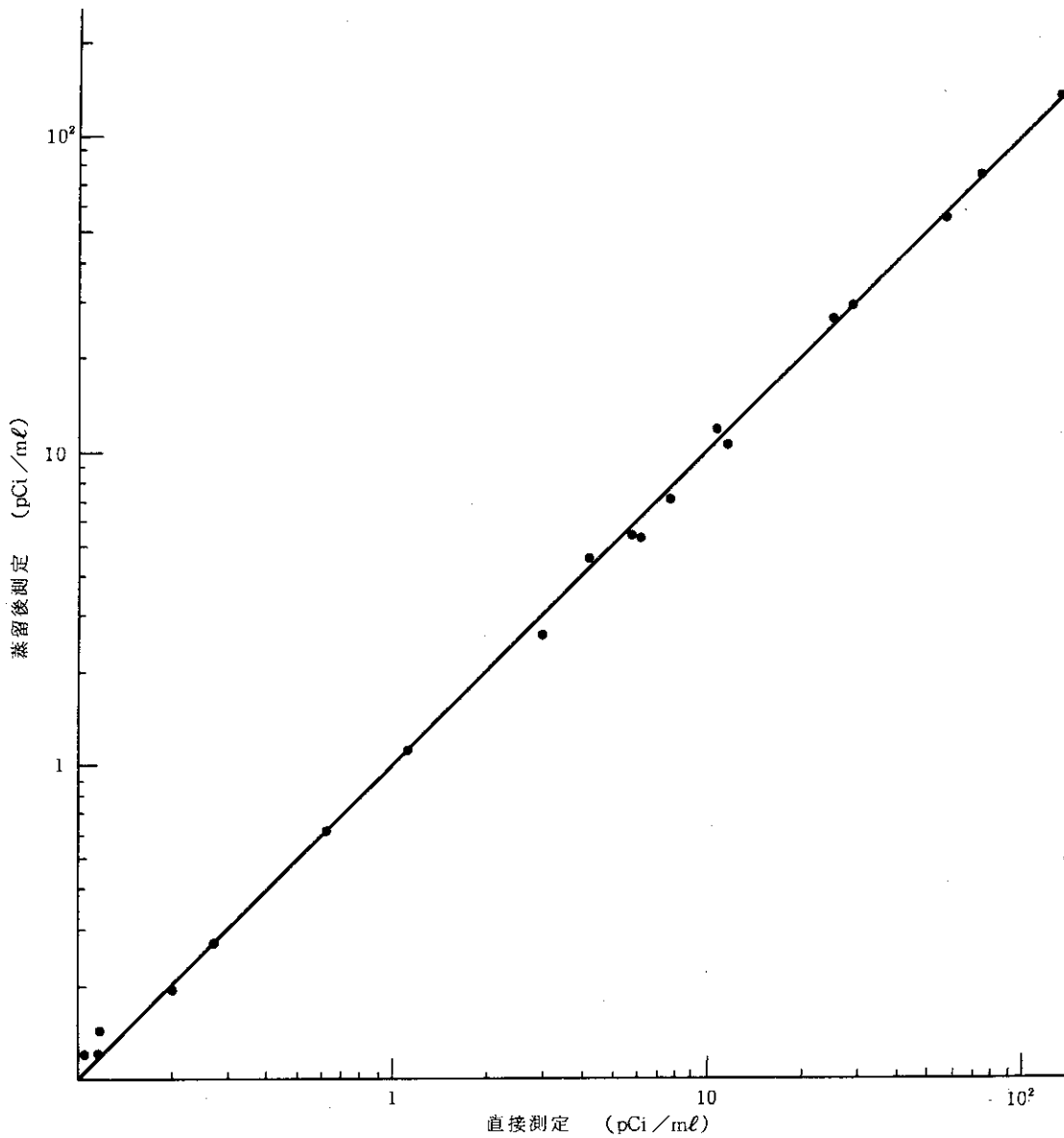


図 15 海水直接測定と海水蒸留後測定との $^3\text{H}$ 濃度測定値の比較相関

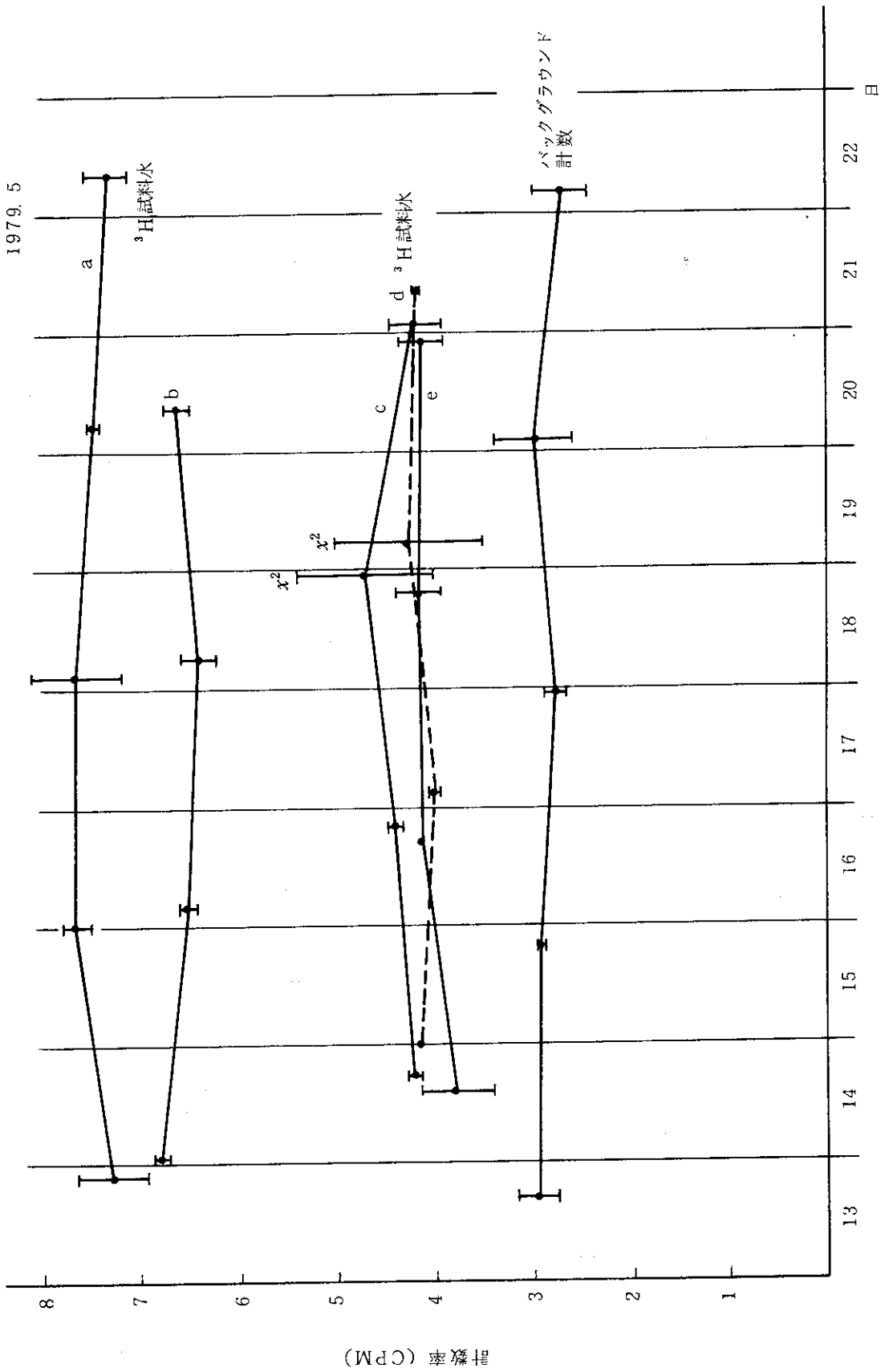


図 16 計数率の時間変動 (100分2リピート測定)

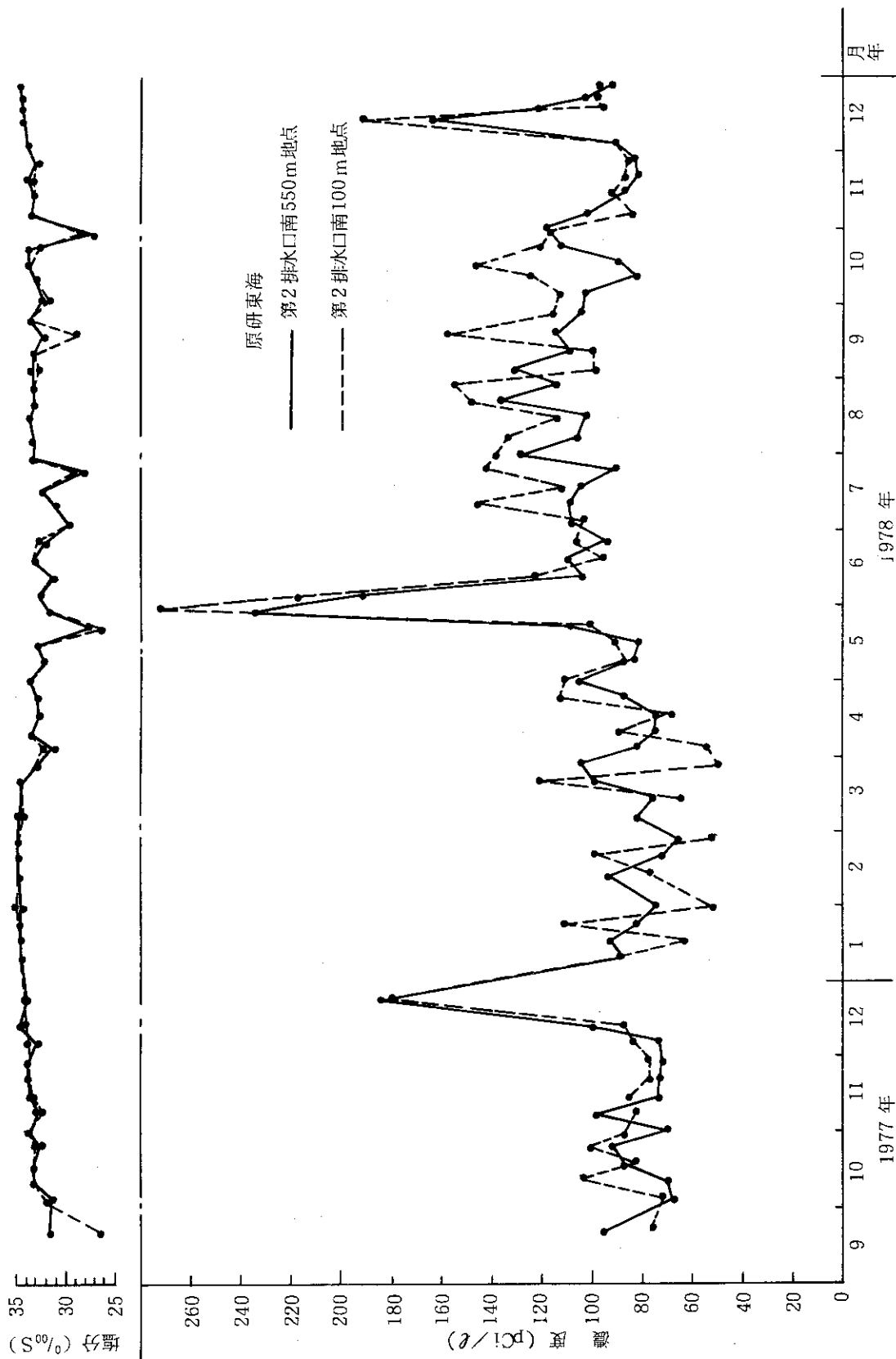


図17 東海村沿岸海水中の<sup>3</sup>Hレベルの変動