



2022年10月25日

第1回 ALPS処理水モニタリングシンポジウム

# 魚のトリチウムの迅速測定法 について

—魚のスクリーニング法の開発—

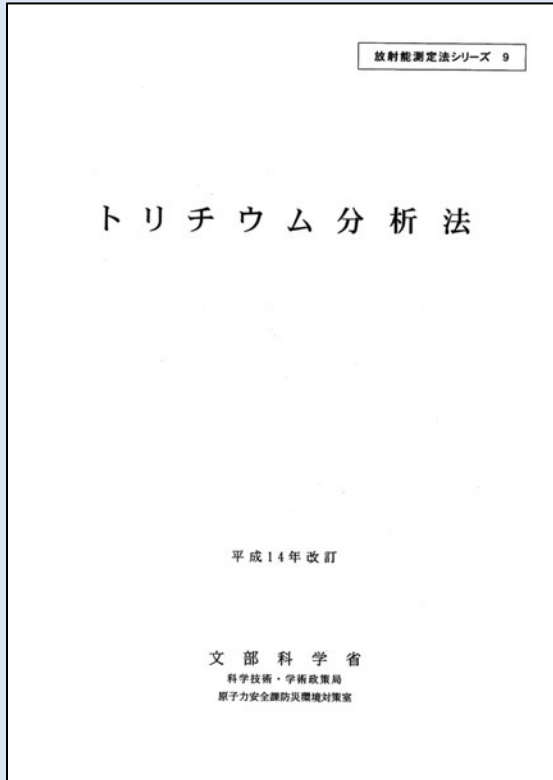
茨城大学 大学院 理工学研究科

鳥養 祐二

(公財)環境科学技術研究所、(株)化研

# トリチウムの測定法

(公財)日本分析センターのHPからダウンロードできます。



文科省 放射能測定法シリーズ9  
トリチウム分析法

Foreign Language > サイトマップ > お問い合わせ > 文字サイズ 小 中 大 > Google 検索

各種サービス 分析技術について 研修情報 よくある質問 日本分析センターとは

現在地 ホーム > 刊行物等 > 放射能測定法シリーズ

### 放射能測定法シリーズ

環境中に存在する放射性核種を効率よく、そして正確に分離・定量するための方法として、環境試料等の放射能分析・測定法の基本となる「放射能測定法シリーズ」が国（文部科学省及び原子力規制庁）により制定されています。現在、下表に示すマニュアルが整備されています。また、環境放射線モニタリング技術に関する情報を記載した「技術参考資料」が作成されています。

下表の書名をクリックすると内容の解説が表示され、必要により電子版（PDFファイル）をダウンロードすることができます（無料）。冊子版については日本分析センターから販売いたします（有料）。なお、在庫が無くなり次第、販売は終了となります。冊子版の申し込みはこちら。

※) 下記シリーズは予告なく改訂される場合がありますので、あらかじめご了承ください。なお、「放射能測定法シリーズ」等に関するお問合せは、下記までお願いいたします。

技術開発部 教育研修グループ  
お問い合わせはこちらへ

No.	書名	制定（改訂）	価格（税込）
1	全ベータ放射能測定法	昭和51年9月（2訂）	（電子版）
2	放射性ストロンチウム分析法	平成15年7月（4訂）	2,950円
3	放射性セシウム分析法	昭和51年9月（1訂）	930円
4	放射性ヨウ素分析法	平成8年3月（2訂）	（電子版）
5	放射性コバルト分析法	平成2年2月（1訂）	1,010円
6	NaI(Tl)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法	昭和49年1月	1,980円
7	ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメリー	令和2年9月（4訂）	（電子版）
8	放射性ジルコニウム分析法	昭和51年9月	310円
9	トリウム分析法	平成14年7月（2訂）	2,640円
10	放射性ルテチウム分析法	平成8年3月（1訂）	460円
11	放射性バリウム分析法	昭和52年10月	310円
12	プルトニウム分析法	平成2年11月（1訂）	1,630円
13	ゲルマニウム半導体検出器等を用いた環境分析のための試料前処理法	昭和57年7月	260円
14	ウラン分析法	平成14年7月（2訂）	2,200円
15	緊急時における放射性ヨウ素測定法	平成14年7月（1訂）	1,240円
16	環境放射線測定法	昭和58年12月	（電子版）
17	連続モニタによる環境γ線測定法（参考資料はこちら）	平成29年12月（2訂）	（電子版）
18	熱ルミネセンス線量計を用いた環境γ線量測定法	平成2年2月（1訂）	（電子版）
19	αβ分析法	平成2年2月	1,930円
20	常置γ線スペクトル測定法	平成2年2月	2,950円
21	メロリンゲル分析法	平成2年11月	1,630円
22	プルトニウム・アメリカニウム逐次分析法	平成2年11月	2,030円
23	液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法	平成8年3月（1訂）	（電子版）
24	緊急時におけるγ線スペクトロメリーのための試料前処理法	平成31年3月（1訂）	（電子版）
25	放射性炭素分析法	平成5年9月	（電子版）
26	ヨウ素129分析法	平成8年3月	2,950円
27	蛍光ガラス線量計を用いた環境γ線量測定法	平成14年7月	1,200円
28	環境放射線プルトニウム迅速分析法	平成14年7月	1,960円
29	緊急時におけるゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトル分析法	平成30年3月（1訂）	（電子版）
30	環境放射線モニタリングのモニタリングに関する技術参考資料	平成16年2月	（電子版）
31	環境放射線モニタリングの放射線測定法	平成16年2月	（電子版）
32	環境放射線ヨウ素129分析法	平成16年2月	（電子版）
33	ゲルマニウム半導体検出器を用いたin situ測定法	平成29年3月（1訂）	（電子版）
34	環境放射線モニタリングのモニタリングに関する技術参考資料	平成20年3月	（電子版）
35	緊急時における環境放射線測定法	令和3年6月	（電子版）

技術参考資料

No.	書名	制定（改訂）	価格（税込）
1	大気中放射性物質のモニタリングに関する技術参考資料	平成15年7月	1,200円

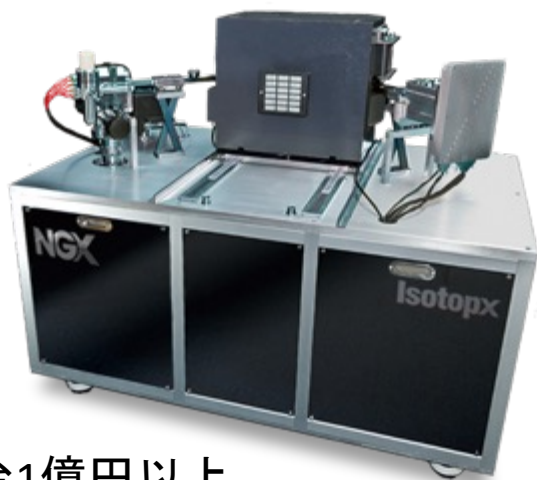
# トリチウムを測定する装置



ほとんどはこちらの方法

## ${}^3\text{He}$ を測定する装置

希ガス質量分析装置



1台1億円以上  
システム全体を考えると1.2億円以上

## $\beta^-$ 線を測定する装置

液体シンチレーションカウンター(LSC)



ノーマル仕様: 400万円 以上  
低バックグラウンド仕様: 2,000万円以上

# 環境レベルのトリチウム測定

- 環境レベルのトリチウム濃度の測定は、非常に時間が掛かります。

試料採取



pH,電気伝導度(EC)測定



ろ過・蒸留



電解濃縮 (7倍程度の濃縮)



蒸留



シンチレーターと混合

(Ultima Gold LLT, PerkinElmer)



LSCで測定(LBシリーズ, Hitachi)  
(測定下限0.1Bq/L)



常圧蒸留装置

固体高分子膜電解濃縮装置  
(トリピュア, デノラ・ペルメレック)



低バックグラウンド  
液体シンチレーションカウンター  
(写真はLB-5, Hitachi)



写真提供: 核融合科学研究所

# 環境レベルのトリチウム測定は、値のばらつきが大きい

$$\text{測定値} = \text{真の値}(\pm \text{季節変動} \pm \text{地域特性}) \pm \text{測定誤差}$$

## 誤差の要因

### ➤ プラスの要因

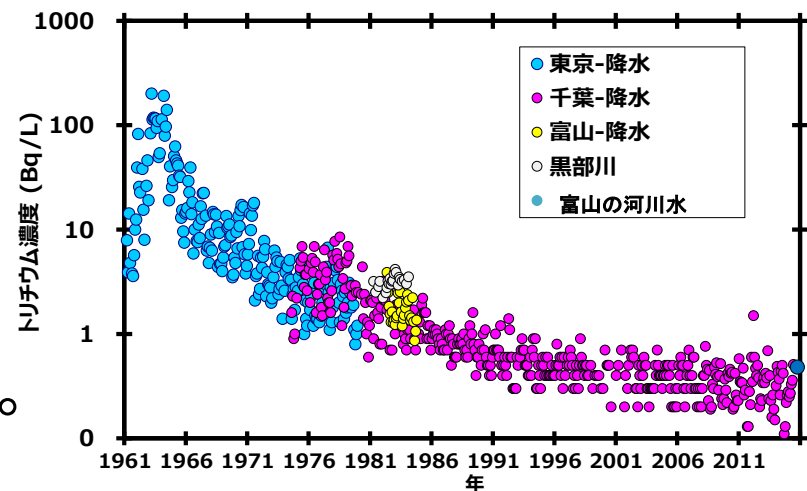
- ✓ 環境レベルの濃度測定では、液体シンチレータが光を吸収することによる偽発光で測定値が高くなります。そのため、液シンの中で十分に安定化させる必要があります(精密な環境測定では2週間ぐらい液シンの中で保管します)。
- ✓ 環境からの汚染・・・海水測定の場合、周りの環境(水道水や大気水蒸気)の方がトリチウム濃度が高いため、簡単に汚染が起きる可能性がある。
- ✓ 緯度によって大気上層部でのトリチウムの生成量が異なるので、沖縄よりも北海道の方が降水中のトリチウム濃度が高くなります。etc.

### ➤ マイナスの要因

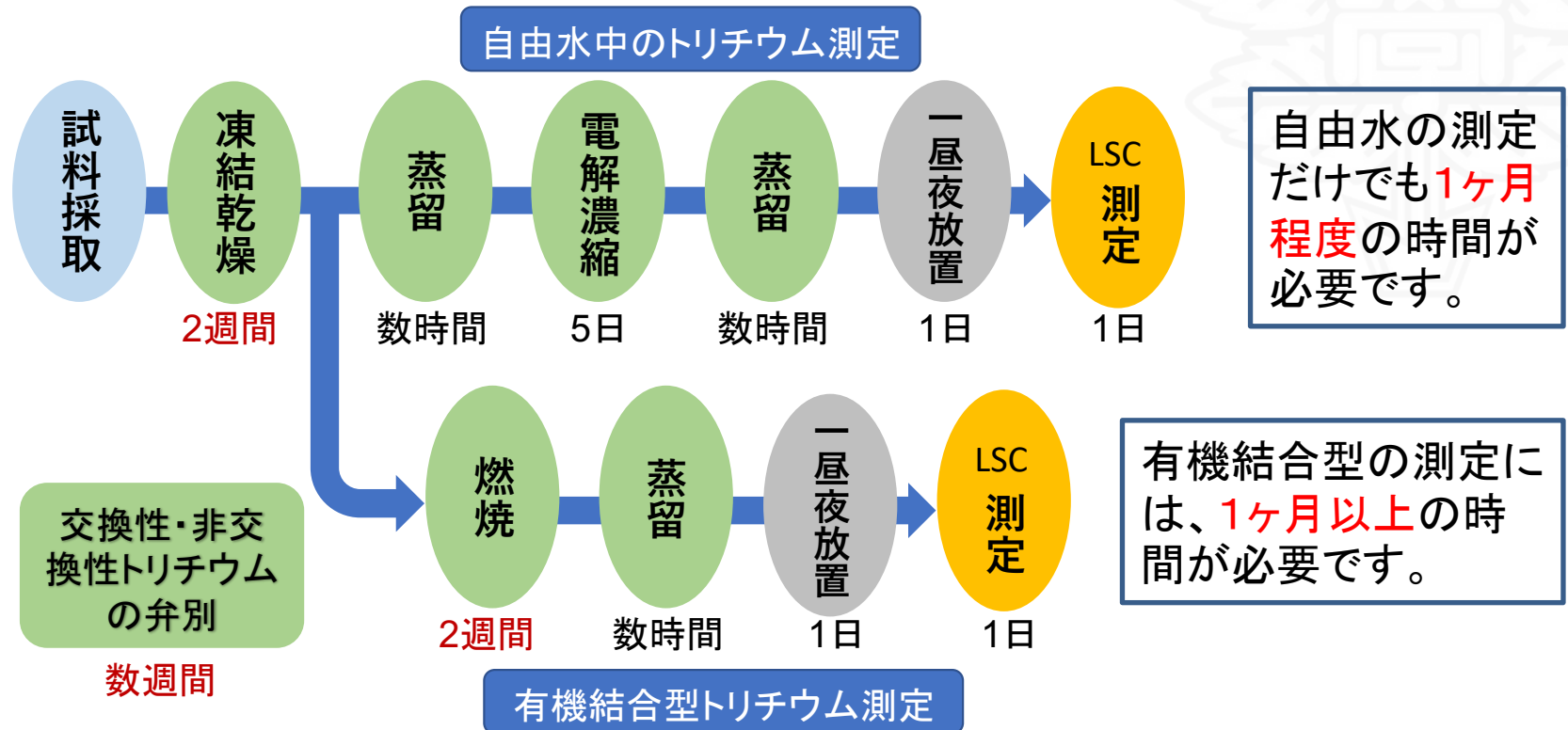
- ✓ 蒸留操作では、同位体効果により留分のトリチウム濃度が低くなります。etc.

◆ 分析操作を熟知しないと、高い値が出やすい。

→風評被害の原因になります。



# 既往の魚のトリチウム濃度の測定法



## 問題点

- ✓ 魚中トリチウム濃度の測定では、1ヶ月以上の時間が必要です。
- ✓ 測定に使用する機器がトリチウムにより汚染され、以後の測定に影響を及ぼします。

この方法では、魚の迅速な安全確認は不可能である。

# 魚のトリチウム濃度の測定法開発の考え方

## 1. スクリーニング法として測定する

- 魚の自由水中のトリチウム濃度を測定する
  - 迅速な自由水回収法を検討する
  - 測定下限を最適化する
- スクリーニングで異常がある試料と抜き出した試料については、有機結合型トリチウムを含めて既往の方法で測定する。

## 2. 測定機器の汚染を対策する

- 汚染の可能性のある凍結乾燥を改良する
- 過去に電子レンジを用いた自由水の回収が行われていたので、この方法で迅速な水分の回収ができないか検討した。



凍結乾燥装置

# 電子レンジを用いた自由水の回収例1

JCO事故の際に、茨城大学の一政教授が、植物の葉からの自由水の回収に電子レンジを使用した。

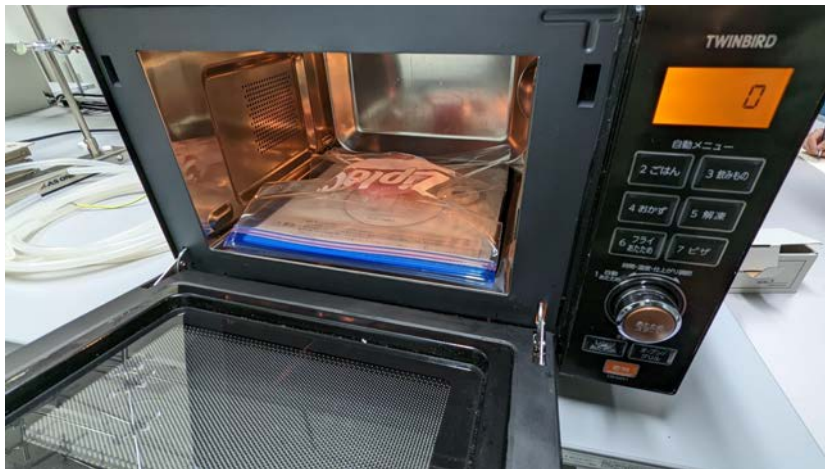


表 JCOの敷地内とその周辺から得られた植物の葉のトリチウムおよび重水素濃度

Tritium and deuterium concentrations in plant leaves obtained from the JCO campus and beyond

No./ Sample/ Sampling point	Tritium	Deuterium		Distance from UCB <sup>b</sup>
	TFWT(Bq/l)	TFWD (ppm)	OBD (ppm)	
1. Tall goldenrod/JCO	1.77 ± 0.93	15.4 ± 4.5	- 4.6 ± 8.9	NW 60 m
2. Cherry tree/JCO	1.08 ± 0.89	9.4 ± 2.9	- 3.5 ± 6.2	NW 61.5 m
3. Broadleaf tree <sup>a</sup> /JCO	2.30 ± 1.32	5.3 ± 3.0	- 4.1 ± 6.2	WNW 75 m
4. Tall goldenrod/JCO	2.90 ± 2.00	8.9 ± 2.0	- 9.0 ± 1.2	SSE 39 m
5. Broadleaf tree <sup>a</sup> /JCO	1.53 ± 1.32	8.3 ± 5.9	- 2.2 ± 2.2	S 24 m
6. Tall goldenrod/JCO	3.07 ± 1.43	13.3 ± 5.5	- 9.9 ± 3.1	E 81 m
7. Tall goldenrod/outside JCO	2.48 ± 1.38	13.8 ± 1.1		W 93 m
8. Tall goldenrod/ outside JCO	1.75 ± 0.92	10.6 ± 2.0		NNE 177 m
9. Japanese chestnut tree/outside JCO	3.82 ± 1.95	4.0 ± 7.1	- 4.6 ± 8.9	W 93 m
10. Tall goldenrod/outside JCO	2.58 ± 1.18	12.4 ± 1.5	- 8.6 ± 3.3	NNE 177 m
11. Tall goldenrod/ Kasama-shi	3.18 ± 1.07	10.8 ± 1.3	- 5.2 ± 1.1	WSW 29.5 km
12. Tall goldenrod/ Kasama-shi	4.40 ± 1.61	9.4 ± 1.3		WSW 30 km
13. Tall goldenrod/ Koganei-shi	4.87 ± 1.61	14.9 ± 4.5	- 4.1 ± 3.2	SW 127 km

<sup>a</sup>The species of tree was not identified.

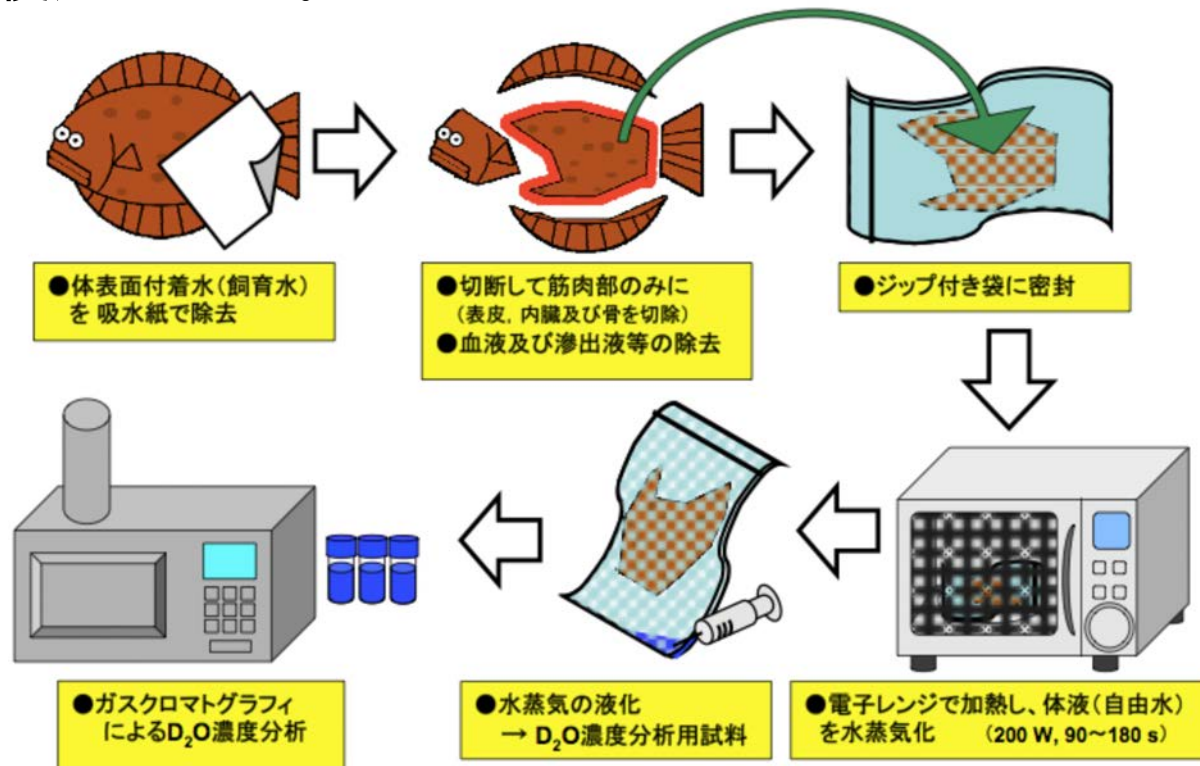
<sup>b</sup>UCB; the Uranium Conversion Building of JCO.

出典：M. Ichimasa, E. Sasajima, K. Sato and Y. Ichimasa, "Tritium, deuterium, and gamma-emitting nuclides in plant leaves in the JCO campus, J. Env. Rad., 50, 1-2, 2000.



# 電子レンジを用いた自由水の回収例2

(公財)環境科学技術研究所において、重水環境で育てた魚の分析に、電子レンジを使用していた。



電子レンジを用いた水分回収法の改良

マイクロ波加熱法

# マイクロ波加熱法

マイクロ波加熱法による魚の自由水の回収は、

- ① 試料を、蓋部分に穴が空いたレンジ対応容器に入れる
- ② 容器をチャック付きポリ袋に入れて密封
- ③ 電子レンジで加熱し、水を回収

→手順が非常に簡単である。

回収した水に、魚の血液や懸濁した液が混入しにくい。

→不純物の少ない水を回収できる。



容器、チャック付きポリ袋は  
使い捨て可能



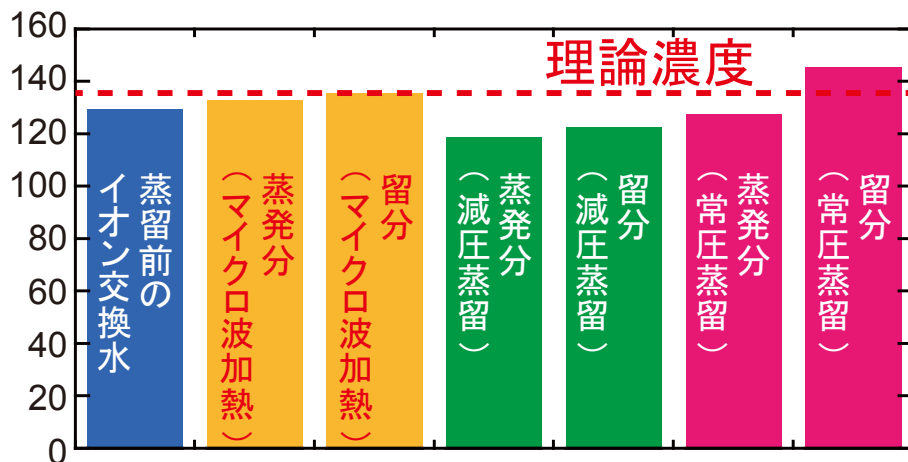
自由水の回収時間は15  
分程度

→回収時間が速く、機器のトリチウム汚染  
を心配する必要はありません。

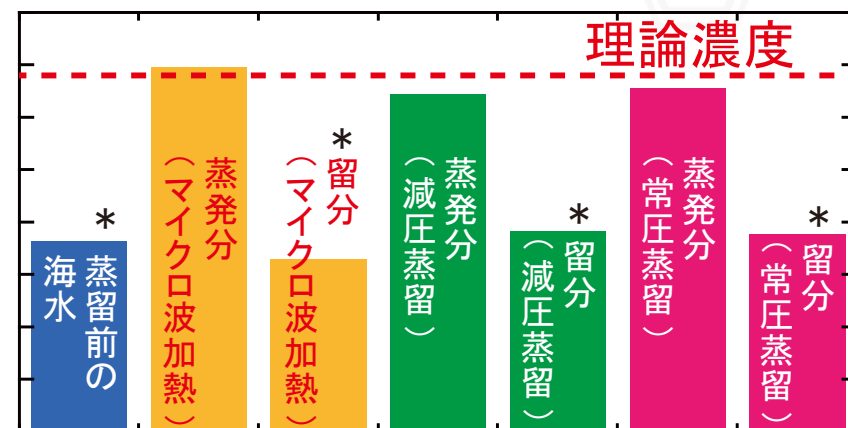
# マイクロ波加熱法の測定精度の確認

- 重水起因のトリチウムを加えたイオン交換水と海水のトリチウム濃度を**マイクロ波加熱法**、**減圧蒸留法**、**常圧蒸留法**を用いて測定した。
- 同位体効果を確認できるように、蒸留進行度は約50%で統一した。

イオン交換水



海水



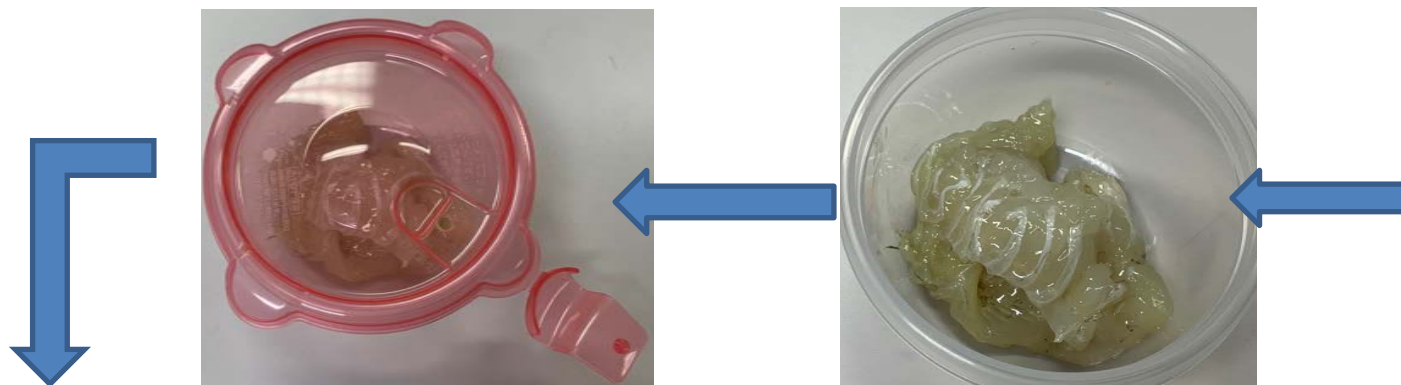
\*塩濃度が高すぎて測定しきれない

- ✓ マイクロ波加熱法の同位体効果は他の方法に比べて小さい。
- ✓ 海水では、全ての回収法で蒸発分の塩分濃度は0.00%であった。

→ マイクロ波加熱法は、他の回収法と比較して測定精度が高い。

# マイクロ波加熱法による魚の自由水の回収

- 福島県産のヒラメを水に触れさせないでさばき、切り分けた魚肉をレンジ対応容器に入れた。



- 蓋をしチャック付きポリ袋に入れ空気を抜き、電子レンジの加熱により自由水を回収した。

# マイクロ波加熱法による魚の自由水の回収

- 電子レンジ出力**200 W**で**15分**加熱したところ、25～40 gの試料から15 ml程度の自由水が回収できた。
- 現在は100W出力ができる電子レンジを導入して、**100Wで処理している**。
- タラのような脂の多い魚では回収した自由水が白濁するが、シリンジフィルターでろ過すればきれいな自由水になる（吸光光度計で確認）。



処理前のヒラメ



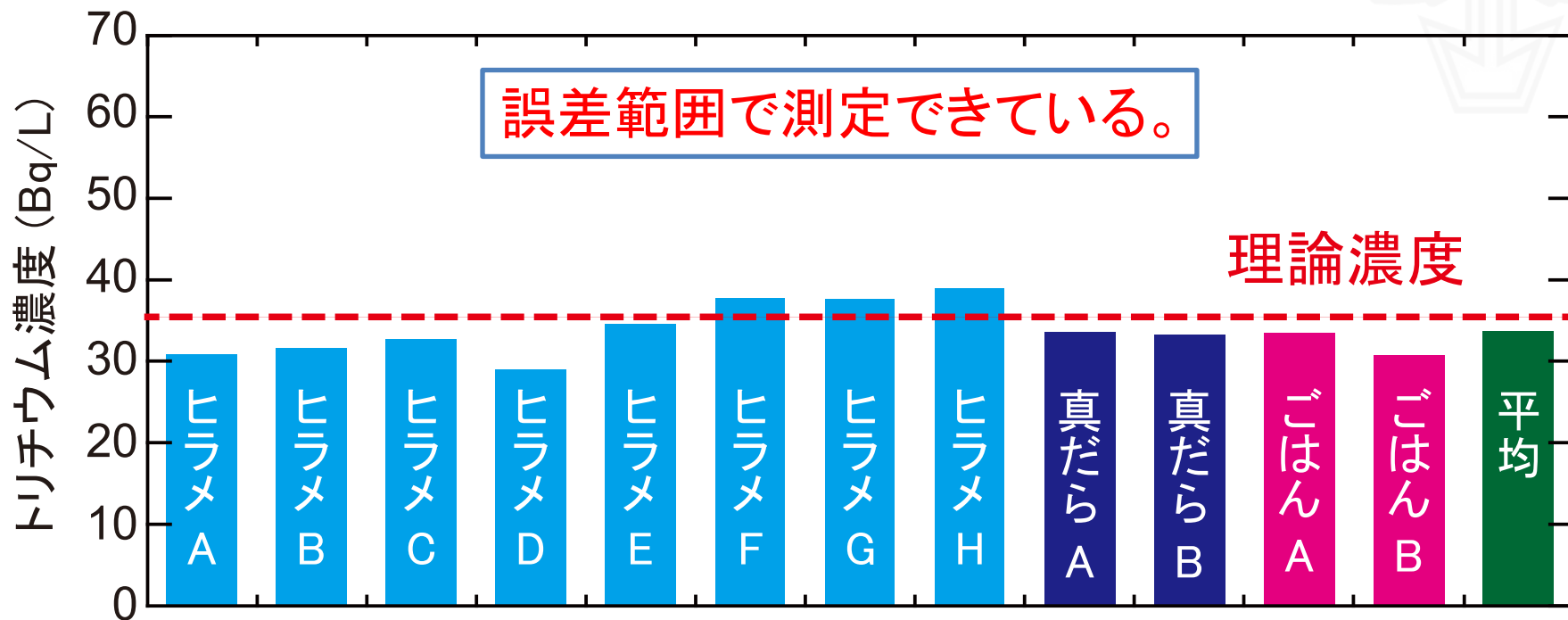
回収したヒラメの自由水



処理後のヒラメ

# マイクロ波加熱法の適応性の確認

マイクロ波加熱により回収した自由水に対して、重水を用いて **35 Bq/L** になるようにトリチウムを添加した時の測定結果。



アワビやあおさの自由水も同じ様に回収・測定できた。

## トリチウム海水下での魚の飼育

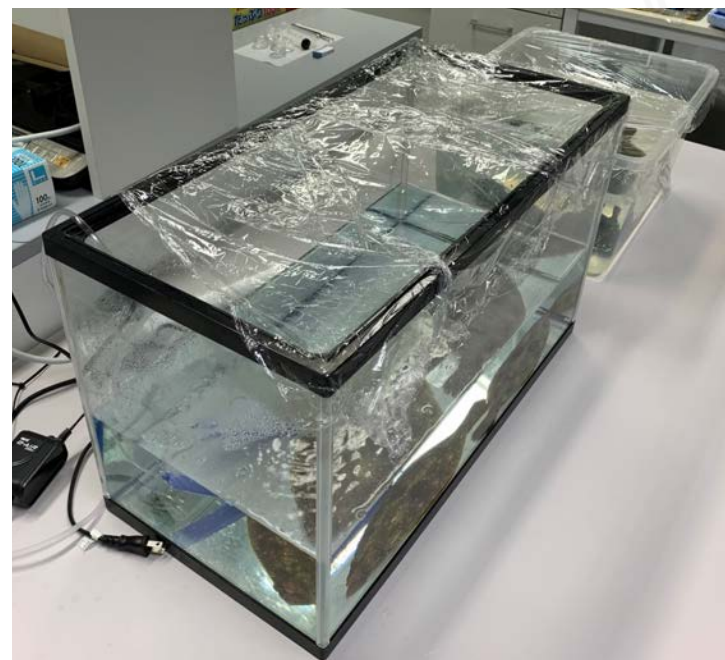
- 福島産のヒラメを飼育
- 福島で採取した海水20 Lに重水を添加して、トリチウム濃度を60 Bq/Lとした。

ヒラメの適水温  
20 °C  
に水温を調整

48時間飼育



重水を添加する様子



手前：重水を添加した海水  
奥：通常の海水

# 魚の自由水中のトリチウム濃度の測定結果

トリチウム海海水下で飼育したヒラメ中のトリチウム測定結果

海水のトリチウム濃度	60 Bq/L
飼育時間	48時間
回収された自由水量	18 ml
自由水中のトリチウム濃度	41 Bq/L

凍結乾燥の結果はまだ出ていません。

魚の自由水中のトリチウム濃度が、飼育により海水と平衡になっているかは不明である。

→ 今後、飼育時間を延長し、トリチウム濃度を飽和させてからの測定を行う予定である。

飼育終了後に魚をさばき、自由水の回収が終わるまでに、1時間程度で行うことができた。

→ 凍結乾燥法の2週間と比べて、格段にスピードアップすることができた。



# 測定下限をどのように考えるか？

	トリチウム濃度 (Bq / L)	この水を1年間摂取し続けた時の年間被曝線量* (mSv / 年)
マウスを用いた実験で、発がん頻度が自然発生と同程度であったトリチウム濃度。これ以上の濃度での実験では、発がん頻度が上昇。	139,000,000	2,055
オーストラリアの飲料水中のトリチウムの濃度限度	76,103	1.17
ICRPがこの濃度未満であれば人体に問題ないとする濃度	60,000	0.89
管理区域・原子力施設からの排水基準	60,000	0.89
WHOの飲料水のガイドライン	10,000	0.15
カナダの飲料水中のトリチウムの濃度限度	7,000	0.10
東京電力が海洋放出を検討している濃度	1,500	0.02
飲料水の連邦基準(USA)	740	0.011
核実験当時の降水中のトリチウム濃度	110	0.0016
ヨーロッパ(EU)の飲料水中のトリチウムの濃度限度	100	0.0015
現在の降水中のトリチウム濃度	0.5	0.0000074
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000015

\* 年間被曝線量は、1日に2.25Lの水(水として1.65L、その他の食品から0.6L)を摂取するとして計算

# 測定下限をどのように考えるか？

	トリチウム濃度 (Bq / L)	この水を1年間摂取し続けた時の年間被曝線量* (mSv / 年)
マウスを用いた実験で、発がん頻度が自然発生と同程度であったトリチウムが上昇。		2,055
オーストラリア		1.17
ICRPがこの管理区域		0.89
WHOの飲料		0.89
カナダの飲料		0.15
東京電力		0.10
飲料水の核実験当		0.02
ヨーロッパ		0.011
		0.0016
		0.0015
現在の降水中のトリチウム濃度	0.5	0.0000074
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000015

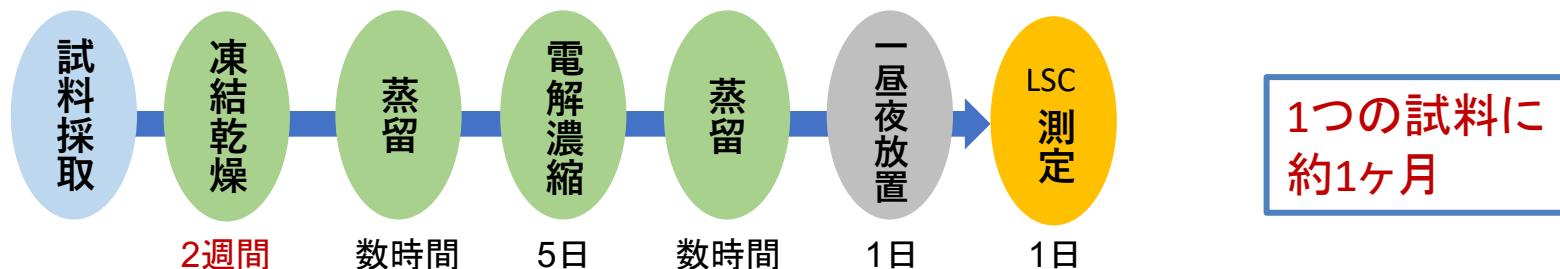
EU圏内の飲料水中のトリチウムの濃度限度が100 Bq/Lと定められていることを考え、社会的に受け入れ可能なトリチウムの測定下限として100 Bq/Lに設定すると、LSC測定の時間を10分程度にすることができる。

\* 年間被曝線量は、1日に2.25Lの水(水として1.65L、その他の食品から0.6L)を摂取するとして計算

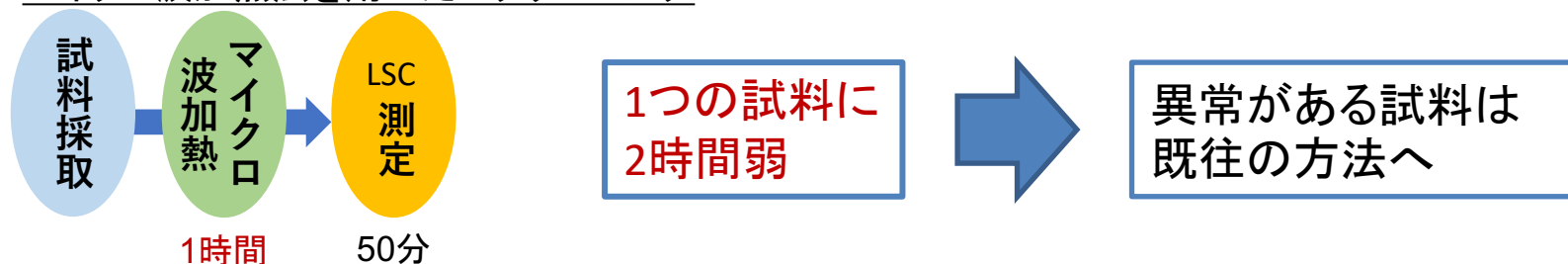
# まとめ

- マイクロ波加熱法により、魚の自由水のトリチウム濃度の測定が、前処理に1時間、LSC測定に50分の、2時間弱で行うことができた。
- マイクロ波加熱法は、魚のトリチウム濃度のスクリーニング法として利用できる。
- スクリーニングの判断基準を100 Bq/L程度に設定すれば、LSC測定を短くすることができ、トータルで1時間以内で結果を出すことができる。

## 既往の方法

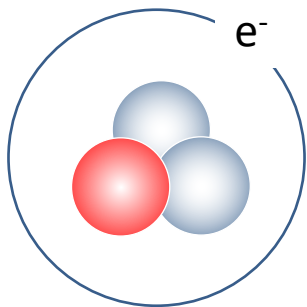


## マイクロ波加熱法を用いたスクリーニング



# ご清聴ありがとうございました。

- ✓ 簡単に書いていますが、それなりにノウハウはあります。
- ✓ トリチウム測定に関心・疑問があれば、茨城大学まで連絡ください。
- ✓ 安全・安心な海洋放出を行うため、トリチウム測定への継続的な支援を行います。



# トリチウム濃度と年間被曝線量(食品+水)

	トリチウム濃度 (Bq / L)	この水を1年間摂取し続けた時の年間被ばく線量* (mSv / 年)
マウスを用いた実験で、発がん頻度が自然発生と同程度であったトリチウム濃度。これ以上の濃度での実験では、発がん頻度が上昇。	139,000,000	2,055
オーストラリアの飲料水中のトリチウムの濃度限度	76,103	1.17
ICRPがこの濃度未満であれば人体に問題ないとする濃度	60,000	0.89
管理区域・原子力施設からの排水基準	60,000	0.89
WHOの飲料水のガイドライン	10,000	0.15
カナダの飲料水中のトリチウムの濃度限度	7,000	0.10
東京電力が海洋放出を検討している濃度	1,500	0.02
飲料水の連邦基準(USA)	740	0.011
核実験当時の降水中のトリチウム濃度	110	0.0016
ヨーロッパ(EU)の飲料水中のトリチウムの濃度限度	100	0.0015
現在の降水中のトリチウム濃度	0.5	0.0000074
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000015

\* 年間被曝線量は、1日に2.25Lの水(水として1.65L、その他の食品から0.6L)を摂取するとして計算

# 有機結合型トリチウム(OBT)濃度について

	トリチウム濃度 (Bq / kg)	この食品を1年間摂取し続けた時の年間被曝線量* (mSv / 年)
WHOの飲料水のガイドライン	10,000	0.15
放射性セシウムの基準値 一般食品 (厚生労働省)	100	0.07
国際連合食料農業機関(FAO)及び世界保健機関(WHO)による、「食品及び飼料中の汚染物質及び毒素に関するコーデックス一般規格(CODEX STAN 193-1995)」 乳児用食品以外の食品(有機結合したトリチウム)	10,000	0.02
放射性セシウムの基準値 乳幼児 (厚生労働省)	50	0.02
東京電力が海洋放出を検討している濃度	1,500	0.02
国際連合食料農業機関(FAO)及び世界保健機関(WHO)による、「食品及び飼料中の汚染物質及び毒素に関するコーデックス一般規格(CODEX STAN 193-1995)」 乳児用食品(有機結合したトリチウム)	1,000	0.002
ヨーロッパ(EU)の飲料水中のトリチウムの濃度限度	100	0.0015
現在の降水中のトリチウム濃度	0.5	0.0000074
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000015