

福島県環境創造センターでは、電解濃縮装置を使用した低濃度トリチウム分析の検討を進めてきた。令和4年12月に福島県沿岸で採取した海水のトリチウム濃度を電解濃縮法により分析したところ、過去報告した条件では4試料中2試料が不検出であったが、供試料量増加、測定時間延長により、全ての試料でトリチウムを検出することができた。検討結果を踏まえ、検出限界値のばらつきが小さい条件で令和5年12月に福島県沿岸で採取した海水の分析を行った。極低濃度トリチウム分析は非常に長い分析時間を必要とするため、目的に応じて適切な分析条件を選択することが重要である。

はじめに

福島県環境創造センターでは、電解濃縮装置を使用した低濃度トリチウム分析の検討を実施し、検出限界値を0.03～0.06 Bq/L程度まで低下させることができた^[1]が、不検出となる環境試料もある。本研究では、トリチウムの環境動態解明に資するため、極低濃度トリチウムの分析条件の検討を目的とした。

[1] 令和4年度環境創造センター成果報告会 口頭発表 放射線計測部門
電解濃縮装置を使用した海水のトリチウム分析 井上 広海
<https://www.fukushima-kankyosozo.jp/2022seikahoukoku/>



図1 トリチウム電解濃縮装置（IAEA型）の外観

表1 低濃度トリチウム分析に関するデータ^[1]

項目	過去報告した条件等
供試料量	約1,000 mL
濃縮後試料量	10–15 mL
トリチウム濃縮率	50–60
トリチウム残留率	約0.67
濃縮時間	約17日間
測定時間	500 分/試料 (50 分×17 回測定を行い、内10回分を使用)
検出限界値	約0.03–0.06 Bq/L

I 分析条件の検討

表2 海水試料の検討条件

項目	供試料量1,000 mL	供試料量2,000 mL
供試料量	1,000 mL	2,000 mL
濃縮後試料量	14–15 mL	13–21 mL
トリチウム濃縮率	①cell① 44.26 cell⑩ 48.20 ②cell① 45.77 cell⑩ 49.66	cell① 74.52 cell⑩ 107.88
トリチウム残留率	1回目 0.63 2回目 0.62	0.60
濃縮時間	約17日間	約34日間
測定時間	500分 or 2,000分/試料 (50分 or 200分×17 回測定を行い、内10回分を使用)	

※供試料量1,000 mLの条件では、海水試料を2ロットに分けて電解濃縮を行ったため、各回のデータを示す。

表3 海水試料のトリチウム濃度分析結果

パターン①：供試料量1,000 mL 測定時間500分			パターン②：供試料量1,000 mL 測定時間2,000分		
試料名	トリチウム濃度	検出限界値	試料名	トリチウム濃度	検出限界値
地点A	0.063±0.013 Bq/L	0.039 Bq/L	地点A	0.061±0.006 Bq/L	0.019 Bq/L
地点B	0.065±0.013 Bq/L	0.040 Bq/L	地点B	0.060±0.007 Bq/L	0.020 Bq/L
地点C	N. D.	0.040 Bq/L	地点C	0.053±0.007 Bq/L	0.020 Bq/L
地点D	N. D.	0.039 Bq/L	地点D	0.039±0.007 Bq/L	0.020 Bq/L
パターン③：供試料量2,000 mL 測定時間500分			パターン④：供試料量2,000 mL 測定時間2,000分		
試料名	トリチウム濃度	検出限界値	試料名	トリチウム濃度	検出限界値
地点A	0.067±0.010 Bq/L	0.029 Bq/L	地点A	0.057±0.005 Bq/L	0.014 Bq/L
地点B	0.050±0.007 Bq/L	0.022 Bq/L	地点B	0.048±0.004 Bq/L	0.011 Bq/L
地点C	0.039±0.011 Bq/L	0.034 Bq/L	地点C	0.038±0.006 Bq/L	0.017 Bq/L
地点D	0.039±0.007 Bq/L	0.021 Bq/L	地点D	0.051±0.004 Bq/L	0.011 Bq/L

※検出限界値は、各測定ロットのBG計数率(cpm)、各試料の計数率(cpm)、検出効率、体積濃縮率及び各電解濃縮ロットのトリチウム残留率を用いて計算した(k=3)。

令和4年12月に福島県沿岸域4地点で採取した海水試料について、表2に示す4パターンの条件で分析を行うとともに、検出限界値について評価した。

結果を表3に示す。過去報告した条件(パターン①)では4試料中2試料で不検出となったが、他の3パターンの条件では全ての海水試料でトリチウムの検出に成功した。なお、供試料量増加条件(パターン③、④)では検出限界値のばらつきが大きかった。

図2に各パターンにおける作業時間を示した。作業時間の想定に当たり、減圧蒸留はロータリーエバポ

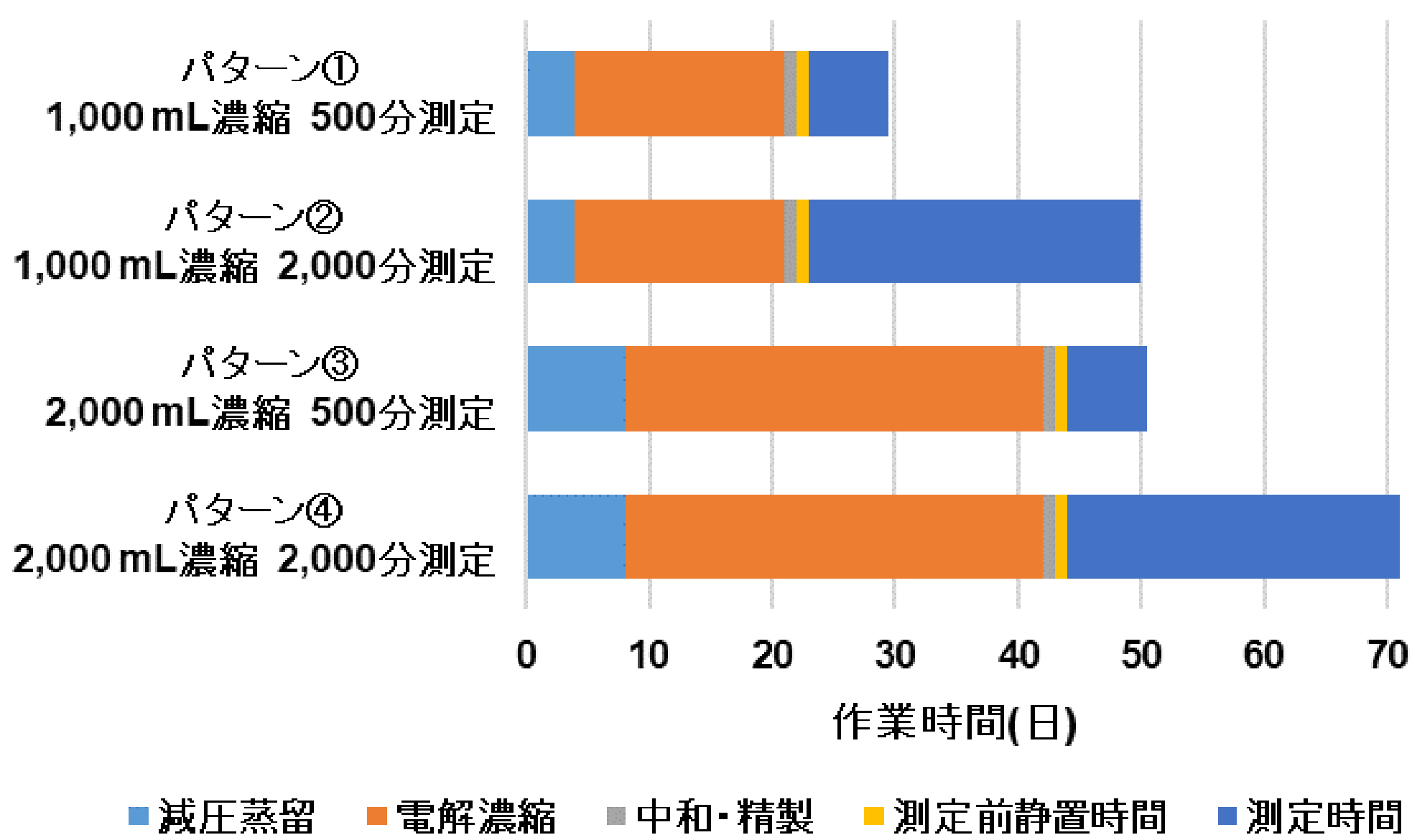


図2 各測定条件パターンと作業時間(日)の関係

レータ2台で1回当たり1,000 mL蒸留、測定は11サンプル(BG 1サンプル + 試料10サンプル)とした。電解濃縮及び測定の時間が、全体への寄与が大きかった。

II Iの検討を踏まえた分析

Iの結果を踏まえ、検出限界値のばらつきが小さいパターン①及びパターン②の条件で令和5年12月に同4地点で採取した海水試料の分析を行った。

結果を表4に示す。パターン①では4試料中2試料で不検出となったが、パターン②では全ての海水試料で検出に成功した。

まとめ

電解濃縮法において、供試料量と測定時間はトリチウム分析の検出限界値に影響するパラメータであり、適切に設定することで環境試料中のトリチウムを検出できるようになる。一方で、検出限界値を低く設定するほど分析に要する時間は長くなるため、調査等の目的に応じて、適切な分析条件を選択することが重要である。

表4 海水試料のトリチウム濃度分析結果

パターン①：供試料量1,000 mL 測定時間500分			パターン②：供試料量1,000 mL 測定時間2,000分		
試料名	トリチウム濃度	検出限界値	試料名	トリチウム濃度	検出限界値
地点A	N. D.	0.046 Bq/L	地点A	0.066±0.008 Bq/L	0.023 Bq/L
地点B	0.063±0.015 Bq/L	0.046 Bq/L	地点B	0.070±0.008 Bq/L	0.023 Bq/L
地点C	0.063±0.015 Bq/L	0.044 Bq/L	地点C	0.058±0.007 Bq/L	0.021 Bq/L
地点D	N. D.	0.042 Bq/L	地点D	0.054±0.007 Bq/L	0.021 Bq/L

※検出限界値は、各測定ロットのBG計数率(cpm)、各試料の計数率(cpm)、検出効率、体積濃縮率及び各電解濃縮ロットのトリチウム残留率を用いて計算した(k=3)。