

放射能測定法シリーズ 「トリチウム分析法」の 改訂について

令和4年12月

原子力規制庁監視情報課

制改訂の経緯

- 昭和52年制定

原子力発電所、核燃料再処理工場等の原子力施設周辺における環境モニタリングのためのトリチウム分析法として制定

- 平成14年(第2版)

大気及び生物試料の詳細な分析方法並びに技術の進歩に伴う記載を追加し、改訂

本改訂の趣旨

トリチウムに対する関心が高まっている状況下において、トリチウム分析及びその分析結果には、高い信頼性、客観性、透明性が求められる。

併せて、福島第一原発事故後に制定された原子力災害対策指針及びその補足参考資料に記載されている原子力施設周辺の環境試料中のトリチウム濃度の測定が実現できるように改訂

検討の経緯

令和4年7月：第1回放射能測定法シリーズ改訂検討委員会

- 改訂の方向性を審議し、トリチウム分析法(改訂案)の作成に着手した。

令和4年10月：第2回放射能測定法シリーズ改訂検討委員会

- トリチウム分析法(改訂案)を提示し記載内容について検討した。

令和4年11月：第3回放射能測定法シリーズ改訂検討委員会

- トリチウム分析法(改訂案)修正版を提示し、記載内容について検討した。

目次案 (1/5)

現行の測定法

序論

第1章 水試料

1.1 試料採取

1.1.1 採取地点及び採取頻度

1.1.2 試料採取時の注意点

1.2 試料採取法 ← 2.1試料採取に統合

1.3 試料水の精製

1.3.1 常圧蒸留法

1.3.2 減圧蒸留法

改訂案

第1章 序論

第2章 水試料

2.1 試料採取

2.1.1 採取地点及び採取頻度

2.1.2 試料採取時の注意点

2.2 試料水の精製

2.2.1 常圧蒸留法

2.2.2 減圧蒸留法

2.3 トリチウムの電解濃縮

2.3.1 金属電極による電解濃縮

2.3.2 固体高分子電解質(SPE)による電解濃縮

・トリチウムの電解濃縮は参考から
本文に移動

目次案 (2/5)

現行の測定法

第2章 大気試料

- 2.1 試料採取
 - 2.1.1 採取地点及び採取頻度
 - 2.1.2 試料採取時の注意点
- 2.2 試料採取法
 - 2.2.1 モレキュラーシーブを用いる方法
 - 2.2.2 シリカゲルを用いる方法
 - 2.2.3 除湿器を用いる方法
- 2.3 試料水の精製
 - 2.3.1 常圧蒸留法
 - 2.3.2 減圧蒸留法

第3章 生物試料

- 3.1 試料採取
 - 3.1.1 採取地点及び採取頻度
 - 3.1.2 試料採取時の注意点
- 3.2 凍結乾燥法による自由水の回収
- 3.3 燃焼生成水の回収
 - 3.3.1 燃焼法
 - 3.3.2 迅速燃焼法
- 3.4 試料水の精製
 - 3.4.1 湿式分解(還流)
 - 3.4.2 還流済み試料の蒸留

改訂案

第3章 大気試料

- 3.1 試料採取
 - 3.1.1 採取地点及び採取頻度
 - 3.1.2 試料採取時の注意点
- 3.2 試料採取法
 - 3.2.1 モレキュラーシーブを用いる方法
 - 3.2.2 シリカゲルを用いる方法
 - 3.2.3 除湿器を用いる方法
 - 3.2.4 パッシブ法
- 3.3 試料水の精製
 - 3.3.1 常圧蒸留法
 - 3.3.2 減圧蒸留法
- 3.4 絶対湿度の算出

新規追加

第4章 生物試料

- 4.1 試料採取
 - 4.1.1 採取地点及び採取頻度
 - 4.1.2 試料採取時の注意点
- 4.2 真空凍結乾燥法による自由水の回収
- 4.3 燃焼生成水の回収
 - 4.3.1 燃焼法
 - 4.3.2 迅速燃焼法
- 4.4 試料水の精製
 - 4.4.1 湿式分解(還流)
 - 4.4.2 還流済み試料の蒸留

目次案 (3/5)

現行の測定法

第4章 測定

- 4.1 測定試料の調製
- 4.2 バックグラウンド試料の調製
- 4.3 クエンチング補正曲線作成用標準試料の調製
 - 4.3.1 調製方法
- 4.4 液体シンチレーションカウンタの測定条件の設定と測定
 - 4.4.1 測定条件の設定
 - 4.4.1.1 性能指数(FOM)に基づく測定条件の設定
 - 4.4.1.2 外部標準チャンネル比測定条件の設定
 - 4.4.1.3 クエンチング補正曲線の作成
 - 4.4.2 測定
 - 4.4.2.1 試料の測定
 - 4.4.2.2 測定上の注意点
 - 4.4.2.3 データの棄却検定
 - 4.4.3 放射能濃度の計算
 - 4.4.3.1 トリチウム濃度の計算
 - 4.4.3.2 検出下限値

・新たに章立て

改訂案

第5章 測定条件の設定及び校正

- 5.1 クエンチング補正曲線作成用標準試料の調製
 - 5.1.1 調製方法
- 5.2 測定条件の設定
 - 5.2.1 性能指数(FOM)に基づく測定条件の設定
 - 5.2.2 外部標準線源を用いたクエンチングの指標値測定条件の設定
- 5.3 校正-クエンチング補正曲線の作成

第6章 測定

- 6.1 測定試料の調製
- 6.2 バックグラウンド試料の調製
- 6.3 測定
 - 6.3.1 試料の測定
 - 6.3.2 測定上の注意点
 - 6.3.3 データの棄却検定
 - 6.3.4 放射能濃度の計算
 - 6.3.5 検出下限値
 - 6.3.6 不確かさ

ISO11929による算出方法を追加 →
新規追加 →

目次案 (4/5)

現行の測定法

記載なし

改訂案

第7章 品質保証

7.1 内部精度管理

7.1.1 トレーサビリティの確保

7.1.2 日常点検

7.2 外部精度管理

7.2.1 試験所間比較

7.2.2 技能試験

新規追加

目次案 (5/5)

現行の測定法

【参考】

- 参考1 金属電極を用いた電解濃縮法
- 参考2 固体高分子電解質を用いた電解濃縮法

【解説】

- 解説1 大気中トリチウム分析法に関する検討結果
- 解説2 生物試料中組織自由水の精製方法に関する検討結果
- 解説3 有機結合型トリチウム分析法に関する検討結果
- 解説4 金属電極を用いた電解濃縮法に関する検討結果
- 解説5 金属電極を用いた電解濃縮法における電解液調整の際に生じる誤差
- 解説6 固体高分子電解質を用いた電解濃縮法に関する検討結果
- 解説7 市販乳化シンチレーター及び測定バイアルに関する調査結果及び検討結果
- 解説8 環境中のトリチウム濃度レベルに関する調査結果

【付録】

- 付録1 分析法の流れ図
- 付録2 クロスチェックの結果

【参考文献】

改訂案

【解説】

- 解説A トリチウムの電解濃縮
- 解説B 生物試料の真空凍結乾燥処理に関する検討
- 解説C 市販乳化シンチレーター及び測定容器に関する調査結果及び検討結果
- 解説D 放射能濃度の計算例
- 解説E データの棄却検定方法
- 解説F トリチウム分析における不確かさの評価
- 解説G 検出下限値の計算例

【参考】

- 参考A イオン交換樹脂による水試料の精製法の検討
- 参考B 非交換型OBTの分析手順
- 参考C ^3He 質量分析によるトリチウムの定量
- 参考D バブリング法を用いた大気中トリチウム採取方法

【付録】

- 付録A トリチウムの核データ
- 付録B 用語の解説
- 付録C 分析フロー

【参考文献】

各章の記載内容(1/8)

第1章 序論 改訂案p.5-8

- トリチウムの概略(半減期、 β 線の最大エネルギー、起源、生成量、化学形態等)
- 改訂の趣旨
- 各分析・測定方法の組み合わせで得られる検出可能レベルの表

第2章 水試料

○試料採取 改訂案p.9-10

放射能測定法シリーズNo.16「環境試料採取法」を参照としたうえで、基本的な事項は記載

○トリチウムの電解濃縮 改訂案p.17-29

現行の参考から本文に移動

必須ではなく、調査の目的や目標となる検出下限値を考慮して、電解濃縮するかどうかを選択するよう記載

各章の記載内容(2/8)

第3章 大気試料

- 試料採取法に**パッシブサンプラーを用いる方法(パッシブ法)**を追加 改訂案p.36-37
 - ・気体を透過する多孔性透過膜で仕切った容器内に捕集剤を入れ、自由拡散を利用して大気中の水蒸気を捕集する方法
- 絶対湿度(大気中水分量)の算出法**を追加 改訂案p.37-39
 - ・気象データ(相対湿度[%]、気温[°C])から絶対湿度 [g/m³]を算出
 - ・サンプリング条件(流量、捕集期間、捕集剤の量)の設定、除湿器やパッシブサンプラーを用いる方法の濃度計算([Bq/g]⇒[Bq/m³]換算)で使用

第4章 生物試料

- 裁断の方法を詳細に記載** 改訂案p.50
「4.1.2 試料採取時の注意点」に、生物試料の裁断方法を詳細に記載
- 保存容器の材質を記載** 改訂案p. 50-51
「4.1.2 試料採取時の注意点」及び「4.2 真空凍結乾燥法による自由水の回収」に、保管容器のガス・水蒸気の透過度(ガスバリア性)や耐久性を考慮して、保管容器の材質やシール方法を定めるよう追加

各章の記載内容(3/8)

第5章 測定条件の設定及び校正 改訂案p. 63-73

○現行マニュアルの「測定」の章から**測定条件の設定(機器調整や校正)部分を独立**

○**特定メーカーの用語は排除**

・「第6章 測定」も同様

第6章 測定

○**ISO11929による検出下限値の算出方法を追加** 改訂案p.83

→ 海外では一般的な方法

- ・本文では、検出下限値の概念の説明と、複数の評価方法を紹介
- ・具体的な計算例は、解説Gに記載

○**不確かさに関する記載を追加** 改訂案p.84

→ 相互比較分析等の技能試験で求められる

国際的に³Hデータを発信するうえで、従来の「放射能濃度±計数誤差」でなく、“放射能濃度±不確かさ”で報告することが必須になりつつある

- ・本文では、不確かさの概念を説明
- ・具体的な評価方法は、解説Fに記載

各章の記載内容(4/8)

第7章 品質保証（新規追加）

○内部精度管理 改訂案p.85-87

【トレーサビリティの確保】

標準溶液線源と電子天秤のトレーサビリティの確保について記載

【日常点検】

液体シンチレーションカウンタの点検方法(計数効率、冷却性能、設置環境のチェック)、電子天秤の点検方法(使用前点検、定期点検)を記載

○外部精度管理 改訂案p.87

【試験所間比較】

同一の試料を用いて他の試験所(ISO/IEC17025認定試験所が望ましい)との間で相互比較分析を実施し、両者の分析結果に有意な差が見られないことを確認することで、測定、解析のプロセスの妥当性を確認することができる。

【技能試験】

外部機関(ISO/IEC17043認定を取得している機関が望ましい)が提供する技能試験に参加し、試験品の分析結果を添加値(付与値)と比較することにより、試験所としての技能を客観的に示すことができる。

各章の記載内容(5/8)

解説(その1)

解説A トリチウムの電解濃縮 **改訂案p.88-93**

- ・現行測定法の解説4「金属電極を用いた電解濃縮法に関する検討結果」、解説6「固体高分子電解質を用いた電解濃縮法に関する検討結果」を、まとめて記載
- ・IAEA(国際原子力機関)のIsotope Hydrology Sectionで開発されたトリチウムの電解濃縮装置を紹介

解説B 生物試料の真空凍結乾燥処理に関する検討 **改訂案p.94-95**

- ・JAEAの先行研究を参考に、真空凍結乾燥処理工程の迅速化の検討実験を実施し、その結果を記載
 - 凍結乾燥に必要な日数(恒量となる日数)は、凍結した塊の試料では9日、5分割した試料では5日であり、表面積を増やすことで効率的な凍結乾燥処理ができることを確認

解説C 市販乳化シンチレータ及び測定容器に関する調査結果及び検討結果 **改訂案p.96-100**

- ・現行測定法の解説7を、解説Cとし情報をアップデート
(シンチレータの物性や毒性の情報、測定容器の違いによる性能指数の比較も追加)

各章の記載内容(6/8)

解説(その2)

解説D 放射能濃度の計算例 **改訂案p.101-105**

- ・放射能濃度の計算例を記載

解説E データの棄却検定方法 **改訂案p.106-112**

- ・棄却検定の方法を記載

解説F トリチウム分析における不確かさの評価 **改訂案p.113-126**

- ・不確かさの評価例を記載
- ・バジェットシートや不確かさの要因図についても記載

解説G 検出下限値の計算例 **改訂案p.127-141**

- ・現行マニュアル記載の「Kaiser法における検出下限値」の他に「ISO 11929による検出下限値」の計算例を記載

各章の記載内容(7/8)

参考

参考A イオン交換樹脂による水試料の精製法の検討 改訂案p.142-145

- ・緊急時において、大量の試料数を前処理しなくてはならない状況や結果報告の迅速性が求められる状況の代替方法として追加

参考B 非交換型OBTの分析手順 改訂案p.146-153

- ・非交換型OBTはTFWTや交換型OBTと比較して、生物組織から排泄されるのに時間を要し、組織内に長く貯蔵されることから、線量評価上重要なため追加

参考C ^3He 質量分析によるトリチウムの定量 改訂案p.154-155

- ・質量分析によるトリチウムの定量に関する知見を参考として追加

参考D バブリング法を用いた大気中トリチウム採取方法 改訂案p.156-157

- ・モレキュラーシーブを用いる方法、シリカゲルを用いる方法、除湿機を用いる方法、パッシブ法以外の大気中トリチウムの採取法として国外の分析機関で使用実績があるため追加

各章の記載内容(8/8)

付録

付録A トリチウムの核データ **改訂案p.158**

- ・放射能計算に使用する核データは信頼ある核データ集から核データを抽出し、分析結果とともに使用した核データを付記することが望ましいため追加

付録B 用語の解説 **改訂案p.159**

- ・用語の定義、概略を記載

付録C 分析フロー **改訂案p.160-162**

- ・現行測定法の「付録1 分析法の流れ図」をベースに更新

参考文献 **改訂案p.163**