

液体シンチレーション法による大気中および 降水中のトリチウム濃度測定

橋本 哲夫^{*1}・樋口 靖^{*1}・佐藤 修^{*2}
青木 滋^{*2}・殿内 重政^{*3}・外林 武^{*1}

Measurements of tritium concentrations in the atmosphere and precipitations
using liquid scintillation counting technique

by

Tetsuo HASHIMOTO, Yasushi HIGUCHI, Osamu SATO, Sigeru AOKI,
Shigemasa TONOUCI and Takeshi SOTOBAYASHI
(Abstract)

For the collection of HTO and HT in the atmosphere, the air passing through a filter is introduced into a molecular sieve column to collect the HTO species and the resultant dried air was mixed with H₂ and O₂ carrier-gas generating from the electrolysis of extremely low tritium-bearing water. The mixed air was mutually reacted in the Pd-coated catalyst column to give water, followed to another molecular sieve column to adsorb the newly synthetic water for the evaluation of HT concentrations. The tritium concentration in each water fraction and in the collected precipitations was counted by the liquid scintillation method using Aquasol II scintillator.

The results, summarized in Fig. 3 and Table 2, obviously show that the HT concentration is maintaining almost constant value of 1 - 2 pCi/m³-air during all seasons. On the other hand, the HTO concentration is remarkably influenced by the collecting months; having lowest tritium concentration in winter while the highest concentration (corresponding to about 3.0 pCi/m³-air) appears in July and followed by the gradually decreasing tendency from the end of summer. In the case of precipitations, the average tritium concentration was evaluated to be 76 pCi/ℓ for all precipitations collected from July 1983 to June 1984 in Niigata area.

These fundamental data will serve for the hydrologic applications of tritium like the estimation of exchange period of groundwaters, as well as the assessment of background tritium level before the operation of nuclear electric power stations.

い ま え が き

近年地球科学, 宇宙科学の分野において, 同位体比を利用した研究が盛んである。

軽い安定同位体としてのH-D, ¹²C - ¹³C, ¹⁶O - ¹⁸O, ³²S - ³⁴Sなどの同位体比は, 同位体交換反応の平衡状態において同位体効果による温度依存性が現われるため, 地質学上の温度計として利用出来る(佐々木・酒井, 1977)。

*1 新潟大学理学部化学科 *2 新潟大学積雪地域災害研究センター *3 新潟県公害研究所

一方放射性同位体の場合、同位体効果の方は無視するため温度情報は得られないが、放射性同位体自身が時間の因子により減衰又は生長するので、年代測定のような時間的ダイナミクスに関連した情報を与える。

天然に存在する放射性同位体のうち、壊変系列を形成する原子番号81以上の重い元素は地球科学面の時間情報を探るために用いられており、橋本ら(1982a, 1982b)は、温泉水や降雪中に存在する極微量天然放射性同位体を α 線や γ 線測定により検出定量して、地球化学的検討を行って来ている。

自然界に存在する軽元素の代表的な放射性同位体として、トリチウム(三重水素であり以下の文中ではTと略す)があげられる。宇宙線と空気成分との相互作用により気圏上層部で定常的に生成しているTは、自然界では主としてHTOの形で水として循環しており、12.26年の半減期で β^- 壊変して安定同位体 ^3He となるため、地球全体では生成と壊変が平衡となっており一定量存在することになる。しかしながらTそのものは、天然起源のもの外、大気圏内での核爆発や原子力施設からも一部由来しており、核実験が盛んであった1960年代には降水中のT濃度は急激に上昇し、平常値の100倍にも相当する $4,000\text{pCi}/\ell^*$ までに達した。大気圏内での核実験の終束とともに、T濃度は減少し、現在は1950年代の平常値にまで戻っていることが知られている(Saro, 1982)。

測定法の進展にともない天然水のような低レベルT濃度の測定も可能となり、これを利用した地球科学的研究が行われている。すなわち浜田(1971)は、地下水の年代や涵養機構の解明をT濃度の測定により行い、南関東地下水盆の動態に関する情報を得ている。地下水自身は地すべり現象とも密接に関連しており、従来から測定して来た各種無機イオン濃度(佐藤ら, 1983)とT濃度を関連づけることにより、地すべり地帯での地下水の由来や動態をより詳しく把握出来ることが期待される。

そこで今後の地下水系への利用に先立ってまず天然レベルのT濃度を、近年発展の著しい低バックグラウンド液体シンチレーション計数法(石川, 1977)で測定するための基礎条件をここでは検討した。ついで地下水の水源ともなる大気中や降水中のT濃度の測定に適用し、1年間以上に亘って継続的に観測してきたのでそれらの結果を報告する。

これらの結果は、昭和60年度から新潟県柏崎市で運転開始される原子力発電所からの、環境中へのT放出の有無を判定するためのバックグラウンド測定としても有意義である。

II 実 験 方 法

1. 大気中からのHTOとHTの捕集

大気中に存在するTは、主に水蒸気として含まれるHTOと水素ガスとしてのHTであると考えられる。これらのT濃度の放射能測定を最終的には水と液体シンチレーターの混合状態で行うため、水として大気中から捕集した。HTOとHTの捕集装置の概念図を図-1に示す^{**}。粒子状浮遊物をフィルターで除去した空気を、2本のモレキュラーシーブカラム(1)(2)(和光純薬3A1/16をカラム1本当たり400g詰めたもの、以下MSカラムと略す。)に通し、空気中の水分を完全に吸着捕集する。ついでこの空気中に含まれるHTを捕集するため、低T含有の低バックグラウンド水(動燃からの提供により茨城県高

* T濃度表示として近年は pCi/ℓ が使用されてきているが、TU(トリチウム単位)や Bq/ℓ も文献に見られる。これらは次の関係にある。 $1\text{TU}=3.24\text{pCi}/\ell=0.12\text{Bq}/\ell$

** 当捕集装置は、動力炉・核燃料開発事業団(以下文中で動燃と記す)東海事業所が開発したものであり、そのまま使用できた。

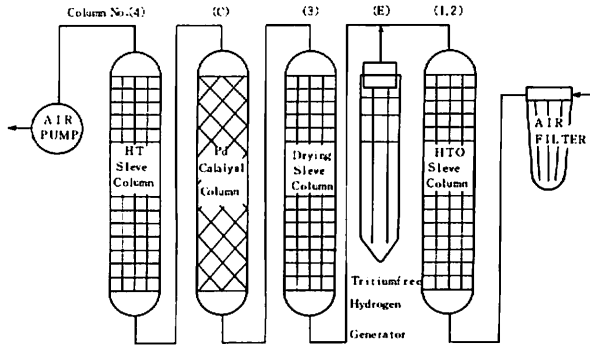


図-1 大気中のHTOおよびHT捕集装置の概念図

電解セル(E)の電解液は低バックグラウンド水150mlにつき Na_2O_2 0.1gを溶解させたものを使用

Fig.1 Atmospheric HTO and HT sampler
Electrolyte in column (E) consists of 150ml low tritiated underground water containing 0.1g of Na_2O_2 .

捕集時間および運転条件は、絶対湿度の季節変動により変化させ、MSカラム(1)の水分捕集能力80mlを越えないよう流量の調節を行った。その結果冬期間の乾燥期には、約15 m^3 （ほぼ流速1.5 $\text{l}/\text{分}$ で7日間運転）、夏期間の多湿期は約4 m^3 （流速0.5 $\text{l}/\text{分}$ で5日間）*の空気量を通した。またMSカラム(4)で捕集する H_2-O_2 ガス由来の生成水は、約60mlを目標とし、触媒酸化と回収率を100%と仮定した上、ファラデーの法則に従って計算し、1.5~1.1Aの定電流で通気中水の電気分解を継続した。捕集は全期間に亘って毎月1~3回行った。

3. 水素ガス回収率の評価

MSカラムによる水分の吸着は、2本の連結カラムによる予備実験から、ほぼ100%と見なして良いことがわかった。一方水素ガスの捕集は、触媒カラム(C)の酸化力が運転毎に異なるため、回収率(Y)を次式により求め、T測定値に対する補正に使用した。ここで大気中に存在していた水素ガスの体積は無視した。

$$Y = \frac{[\text{触媒カラム(C)の増加量}] + [\text{MSカラム(4)の増加量}]}{[\text{電解カラム(E)の減少量}] - [\text{MSカラム(3)の増加量}]}$$

冬期は触媒カラムの活性が低下し、回収率が70%前後まで落ちるので、カラム内が20℃に保たれるようヒータでカラムを保温したところ、常に90~100%の回収率が得られるようになった。

* 通気流速決定の例

5月に1週間運転をする場合、平年相対湿度(H=72%)、平均気温15.9℃(新潟気象台での値)を使い、16℃での飽和絶対湿度(Ds=13.626g/m³)値から、絶対湿度(D)は次式で与えられる。

$$D = D_s \times (H/100) = 9.81 \text{ g/m}^3$$

MSカラム(1)で80gの水分を捕集するに要する空気体積(A)を用い通気流速(R)が次式から見積られる。

$$R = A / (\text{捕集時間}) = (80/9.81) \times 10^3 / (7 \times 24 \times 60) = 0.81 \text{ l/分}$$

萩市上手網の地上より627mの地下水を蒸留したもので3pCi/l以下のT濃度である)を、カラム(E)中で電気分解して発生した H_2-O_2 混合ガスをキャリアーとして空気に混入したあと、MSカラム(3)により水分飛沫を除去し、触媒カラム(C)に通して水素ガスを酸化し水に転換した。触媒としては塩化パラジウムをアルミナペレットに含浸させたものを用いた。酸化生成した水成分は最終のMSカラム(4)に導入し吸着捕集した。一定量の空気を通させたあと、MSカラム(1)、(4)および触媒カラム(C)に吸着した水分をそれぞれ電気炉(東洋科学産業製ONT-S)中で加熱(MSカラム450℃、触媒カラム200℃)し、窒素ガスで追い出し脱着させたものを水冷冷却器を通して水として回収した。

2. 捕集装置の設置と運転

地上からの塵の混入によるフィルター劣化と、地表面からの蒸発水の直接的な混入を出来るだけ避けるために、捕集装置を地上約25mに位置する新潟大学理学部A棟6階建屋内に設置した。

4. 降水の捕集

降水の採取は、新潟大学理学部A棟屋上で行った。採取中の蒸発を出来るだけ防ぐためポリエチレン容器(20ℓ)に最大直径14.5cmを有するロートを取りつけ、降雨後ただちに密栓つき容器に水を移しかえ、1ヶ月間貯めたものを降水試料とした。また冬期の降雪については、降雪毎に一定面積を集め融解後試料水とした。両試料水とも濾過により塵埃を除去後、 Na_2O_2 と KMnO_4 を加え蒸留することによりT濃度測定用試料水を得た。

5. Tの測定

試料水中のTの放射能強度の測定は、低バックグラウンド仕様の液体シンチレーションカウンター(Aloka社 LSC-LB1)を用いて行った。測定データのうち1984年2月11日までのものは、動燃の同種測定器によるものであり、それ以後のものは、新潟県公害研究所放射線監視センターの測定器で測定した。前者ではクエンチング補正や測定値のデータ処理を動燃側のルーチンに従って行って頂いたが、後者については、1984年に新規購入のものであり後述するようにクエンチング補正法など基本的測定条件を検討して使用した。

試料水40mlと液体シンチレータ(Aquasol II-New England Nuclear社)*60mlをテフロン製100ml容器にとり、50℃に加温して混合し、粘性が低下した状態で振盪し均一混合したものを測定用試料とした。試料調製後化学ルミネッセンスが計数されるので、この減衰を待つため、ほぼ一昼夜冷暗所に放置したあと測定を開始した。測定はいずれも12℃の恒温状態で行った。

天然水試料のT測定では、50分間の測定を10回繰り返し、各々の測定値から、平均値より標準誤差の3倍以上はずれているものを異常値として取除き、残りのものを積算し、計数率および計数誤差の評価を行った。

Ⅲ 結果と考察

1. T測定の基本条件の検討

Tは低エネルギーの β 線(最大エネルギー18keV)のみを放出して壊変するため、検出効率の良好な液体シンチレーション(Liquid Scintillation CountingよりLSCと略す)法が効率の良い測定に適している。特に天然水レベルの低T濃度の測定には、重しゅへいと反同時計数を併用して、バックグラウンドを低下させた低バックグラウンドLSCが用いられる。

LSC法において、溶存する放射性物質の壊変で放出される放射線のエネルギーが液体シンチレータを励起させ、脱励起の際にその一部を蛍光として放出する現象を利用するが、シンチレータ中に溶存する物質により著しく蛍光収率(入射エネルギーに対する発光効率)が左右されるいわゆるクエンチング(消光)効果が問題となる。水試料自身クエンチング作用を及ぼすので、正確なT濃度の測定には、クエンチング補正が必要となる。

クエンチング作用をも含めた、Tの壊変当たりのLSC法での計数効率を求めて使用するのが簡便であり、この方法として内部標準法と外部標準法が考えられている。前者は操作が複雑であり測定に長時間を要する欠点があるので(データ自身の信頼性は良い)ここでは外部標準法を検討した。

*液体シンチレータ(蛍光剤)として市販のAquasol IIとScintisol(同仁化学)を使用し、バックグラウンド計数を行ったところ、Aquasol IIの1.92cpmに対してScintisolは8.04cpmと高かったので、以後Aquasol IIを使用した。

クエンチング作用が大きくなるにつれて、蛍光収率は減少し、光電子増倍管からの信号の波高は低くなる。Tの β 線の連続エネルギースペクトルは、 β 線の最大エネルギーそのものが大変低いため、回路の雑音成分と区別出来ないような低波高の信号も本来多い。更にクエンチング作用が加わると雑音レベル以下の成分が増加し、Tの検出効率がクエンチングに大きく左右されることになる。そこでクエンチング作用を何らかの方法で知る必要が生ずる。ここでは多用されている外部標準線源法を用い、シンチレータ溶液に外部より ^{137}Cs 線源からの γ 線(662keV)を照射し、シンチレータ溶液との相互作用で生成するコンプトン電子による蛍光からの波高変化を利用した。外部線源照射下で光電子増倍管から出力される信号の波高を弁別し計数し、Tチャンネル以上(T由来の波高より高い)の信号の計数値全てをBチャンネルとして、またBチャンネルの低波高側(^{14}C の領域)を計数するようにセッティングした計数値をCチャンネルとしてそれぞれ計数する。Cチャンネル計数値が 10^4 カウントになるまで計数し、以下の式により外部標準チャンネル比(ESCR: External Standard Channel Ratio)を求めた。

$$\text{ESCR} = (\text{計数値})_{\text{チャンネルB}} / (\text{計数値})_{\text{チャンネルC}}$$

波高弁別はBチャンネルの方が幅広い領域をカバーしているため、ESCR値の大きいもの程、クエンチング効果は少なくなるという結果が得られる。このESCRをクエンチングの指標として用い、計数効率との関係を求めれば、LSC法における重要なクエンチング補正が出来ることになる。

通常、標準試料が特定のクエンチ剤を添加した状態で装置に添付されており、これを利用してESCR-計数効率曲線を求めることも可能である。しかしながらクエンチ剤(LSC-LBI添付のものはニトロベンゼン使用)の種類によりESCR-計数効率曲線の変動も予想されるので、ここでは水自身をクエンチ剤として増減させることによりESCR-計数効率曲線を作製した。

表-1に作製した標準溶液の組成をまとめておいた。5本の標準溶液には、動燃で絶対測定が行われた既知量のT水溶液{(1.17 \pm 0.01) $\times 10^4$ dpm}が加えられており、シンチレータおよび低T含有水量を変化させ全量を100mlに調製した。これら標準試料を20分間20回測定し、異常値を除き、計数値と絶

表-1 検出効率評価のための標準クエンチング試料の組成

Table.1 Constituents of standard quenching samples for the determination of counting efficiency.

Sample No	Standard T-Water (ml)	Quencher [Water] (ml)	Scintillator Aquasol-II (ml)	Total Volume (ml)	Water Portion (%)
1	20	10	70	100	30
2	20	15	65	100	35
3	20	20	60	100	40
4	20	25	55	100	45
5	20	30	50	100	50

対塩変率の関係から計数効率が求まる。同一試料につき外部標準線源法により ESCR 値^{*}をも求めた。得られた結果を図-2 に示す。実験値は右側から左側へとクエンチャーとしての水量が35%から45%へと変化させてある標準試料からのものである。ここで得られた ESCR 値の範囲 (8.5~11.3) はほぼ自然水測定のための領域をカバーしており、計数効率との関係は二次近似回帰により次式で与えられる。

$$\text{計数効率} = -0.517A^2 + 3.94A - 10.3$$

(A : ESCR)

この関係式を用い、実際の天然水試料の ESCR 値から計数効率が求められる。新潟県放射線監視センターが装置添えつけの標準線源により求めた同様な ESCR-効率曲線とほぼ一致した結果を得たが (平均して0.5%程実験結果の方が低目の値を示していた)、ここで得た ESCR-検出効率の関係の方が、自然水測定の観点からは信頼性が高いと考えている。

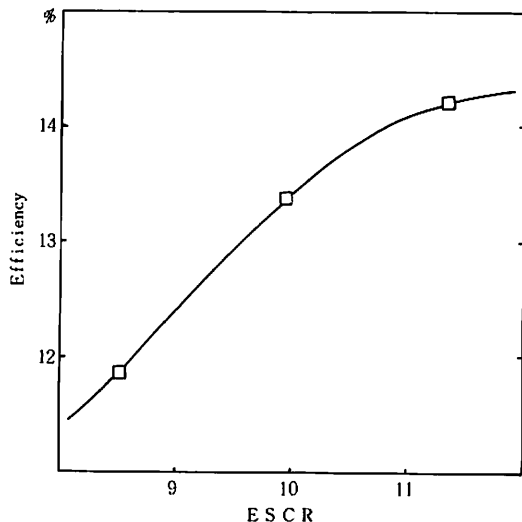


図-2 検出効率と外部標準チャンネル比 (ESCR) の関係

Fig.2 Relationship between detection efficiency (%) and external standard channel ratio (ESCR) for liquid scintillation counting.

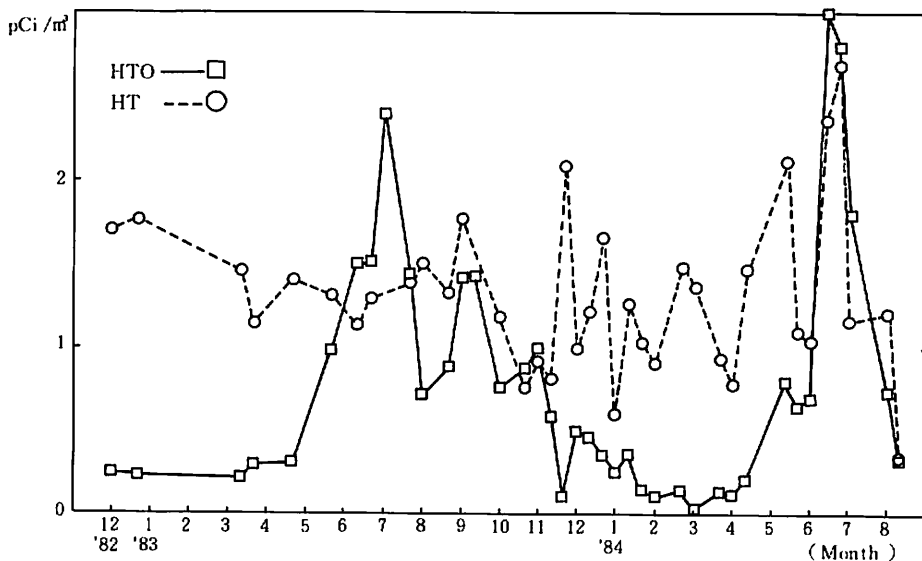


図-3 大気中のHTOとHT濃度の変化

試料の捕集は新潟市五十嵐2の町理学部敷地内地上約25mの位置で行った。

Fig.3 Monthly changes of HTO and HT concentrations in the atmosphere. The sample collection was carried out at approximately 25m height from ground level in Niigata-shi.

*ESCR値測定を繰り返し行ったところ、最初の30回まで減少傾向が見られたので、それ以後の一定値に達した ESCR 値を用いた。

2. 大気中のHTO, HT濃度

1982年12月より1984年7月までに得た結果をまとめて図-3に示す。この結果より単位 m^3 中に含まれるHTOとしてのT濃度は、実線で示すように、ほぼ規則的な季節変動を示しており、冬期には $0.3\text{pCi}/\text{m}^3$ 以下にまで濃度が低下し、春期から増加し始め初夏の頃最高濃度（最高値は1984年6月12～15日のもので $3.0\text{pCi}/\text{m}^3$ であった。）をとり、秋期にかけてなだらかな減少を示す傾向を持っている。このことは、春期に最大の落下強度を示すフォールアウト（放射性落下塵）パターンとも類似はしているものの、ほぼ1～2ヶ月位のピークのずれがHTOでは見られる。同様なHTO濃度の傾向は同時期に九州大学や動燃で測定された結果（原安協, 1984）とも一致しており、普遍的なものとも考えられる。このことを説明するために、成層圏と対流圏との混合が春から夏にかけて激しくなり、成層圏に比較的高濃度に存在するTが、対流圏に入り込むためと考えられてきた。しかしながらこの説明だけでは、フォールアウトとの1～2ヶ月の遅れたピークパターンは解釈できない。我々は、成層圏では比較的高濃度のTが、HTの型で存在しており、大気中の O_2 との反応でHTOを生成するに際して、太陽光が関係しているとの仮説を持っている。すなわち、春から夏期にかけて太陽熱が強くなり、6月に最高値となりその結果として $\text{HT} + \frac{1}{2}\text{O}_2 \rightarrow \text{HTO}$ の反応が促進され、対流圏の混合も関係して6月にHTOのT濃度が最高値を示すと考えている。

一方、大気中にHTとして存在するT濃度は、測定期間を通して、ほぼ $1 \sim 2 \text{pCi}/\text{m}^3$ と一定値を示している。この値は最大値付近を除いた大気中HTOとしてのT濃度よりもほぼ1桁以上高い値となっており、水素ガス中のT濃度が水蒸気HTO中のT濃度よりも極度に高いことを意味しており、HTからHTOが由来するとの考えと矛盾しない。このHT濃度の年間パターンも他の地域での測定値（原安協, 1984）と一致している。このことはHTガスの方がHTOよりも軽いため拡散係数が極度に大きいことを反映していると考えられる。

夏期に大気中にHTOとして含まれるT濃度が増加しているのは、単位 m^3 中の水蒸気成分が増加することに原因しているとも考え、各捕集水につき単位水量に対するHTO濃度（ pCi/ℓ ）を調べて見た。その結果を図-4に示す。この結果より冬期には、水蒸気中のHTO濃度そのものも減少しており、一方、夏期には増加しており、秋から冬に向かって再び減少して行く傾向が見られる。このことから夏期においては著しい量のHTOが成層圏から対流圏へ供給されており、水蒸気中のHTO濃度増大をもたらしている原因として先の仮説は一つの納得行く説明と思われる。

このような定常的な大気中HTO, HT濃度の観測は、大気の挙動に関する情報を得るためのみならず、原子力施設や核融合研究施設での異常事態発生とか、地下核爆発実験での水蒸気成分の環境への漏洩を検知し、対策をたてるためにも必要である。HTOとしての人体への摂取は、人間の未来のためにも出来るだけ低くする必要がある。

3. 降水中のT濃度

河川水、湖沼水、海水などの表面はもとより、地下水中のTも降水によって供給されている。従って降水中のT濃度を知ることにより、天然水中のT濃度の基本的データを得ることにもなる。

表-2に、1983年7月より1984年6月まで一年間の毎月の降水中T濃度測定結果を、降水量とともにまとめて示した。降水の場合、大気中水分中のHTO濃度（図-4）とほぼ同様に、冬期に低く、夏期に高い傾向は見られるものの顕著な差異はない。これは降水の源としての海岸からの水蒸気の供給の多寡とも関係しているためであろう。また大気中HTOの濃度測定のための試料水捕集は3～7日である

のに対して、降水の場合は1ヶ月間を平均化した結果であるという捕集期間の差異も考える必要がある。全体的な降水中T濃度は、1984年6月の異常値を除いては、ほぼ1950年代の降水中T濃度の範囲内(30~130pCi/l, Brown and Grummitt, 1956)に納まっている。従って近年は過去の大気圏内の核実験の影響が全くなり、天然水中に含まれるTのほとんどは、宇宙線由来のものと考えて良いと思われる。

降水成分のうちどの程度が地下水や表面水となるかは明らかではないが、各月毎の降水中のT濃度(TC)_iと降水量(RW)_iの関係から、測定期間1年間に亘る平均的なT濃度(AT)を次式により求めることができる。

表-2 月間降水中のトリチウム濃度
Table.2 Tritium concentrations in monthly precipitation

Collection month	Volume of * precipitation (mm)	Tritium ** concentration (pCi/l)
'83 7	271.0	90.0±13.4
8	89.5	30.1±12.7
9	172.5	87.7±13.2
10	136.0	66.1±13.1
11	205.5	116.0±14.0
12	120.5	46.1±7.9
'84 1	231.5	51.8±8.0
2	101.5	38.3±7.8
3	116.5	47.3±7.9
4	70.5	49.1±7.9
5	74.0	46.6±7.9
6	89.5	214.8±10.6

* 新潟気象台での測定値

** 新潟大学理学部屋上で捕集

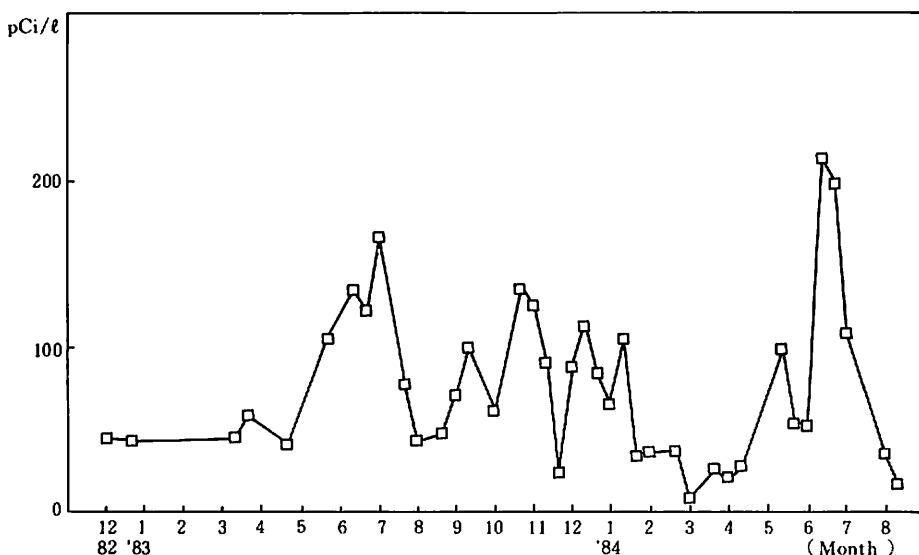


図-4 大気中より捕集した水分中のT濃度

Fig.4 Tritium concentrations in the water collected from atmosphere.

$$AT = \frac{\sum_i (TC)_i (RW)_i}{\sum_i (RW)_i}$$

測定値を用いて計算されたAT値として76pCi/lが得られた。

地下水の場合、長年月滞留した（50年以上）ものでは、検出限界以下のT濃度を示すはずであり、ごく新しい地下水は、降水の平均T濃度AT値に近い値として検出されよう。従って両者が容易に区別出来るのみならず、中間値の場合には、混合水の割合を見積ることが可能となろう。

IV お わ り に

人間生活と水の関係は密接であり、近年の人間活動の飛躍的活動により増々多量の水が必要となって来ている。水の供給源には限りがあり、地下水系を含めた水の挙動を出来るだけ正確に把握することが急務となっている。

このような状況において、低バックグラウンドLSC法の開発によって天然レベルの低濃度のT測定が可能となって来たことは*、水理学方面の研究者にとって大きな福音だと思われる。

謝 辞

大気中HTO、HTの捕集装置の貸与やT測定に関し終始お世話になった、動力炉・核燃料開発事業団の野村 保氏および大和愛司氏ならびにT測定用LSC装置の使用に関し便宜を計って頂いた新潟県公害研究所放射線監視センターの方々に厚くお礼申し上げる次第である。また、実験の一部を手伝って頂いた大学院生高橋 斉氏および岡田建紀技官にも感謝致したい。

なお本研究の研究費の大部分は、文部省科学研究費、エネルギー特別研究（核融合）(1) “時間的・局地的にみたトリチウムの動態と化学形の研究（分担者として58・59年度参加）”（研究代表者・阪上正信）に依りました。関係者の方々に深く感謝致します。

文 献

- 石川寛昭（1977）：液体シンチレーション測定法，南山堂，東京。
- 原安協（1984）：大気、環境水中長半減期核種の挙動・分布に関する調査研究，PNC-SJ114 84-02，原子力安全協会，東京。
- 佐々木昭・酒井 均（1977）：現代鉱床学の基礎，77-118，東京大学出版会，東京。
- 佐藤 修・青木 滋・鈴木幸治（1983）：虫亀地すべり地の地下水のアニオンの起源，新潟大災害研年報，5，33-42。
- Saro, S（1982）：The End of the Tritium Dating？，Radiochem. Radioanal. Lett., 53，89-94。
- 橋本哲夫・増村修司・高橋邦明・外林 武（1982a）：玉川温泉没殿物中の天然放射性核種の検出定量，Radioisotopes, 31，331-337。

* 30pCi/l程度までが現在検出可能である。従ってこの濃度以下の天然水は、電解濃縮法でHTOを濃縮後Tの測定を行う必要がある。

- 橋本哲夫・増村修司・小松繁美・外林 武 (1982b) : α 線スペクトロメトリーによる降雪中の ^{210}Pb と ^{210}Po の定量, *Radioisotopes*, 31, 453-458.
- 浜田達二 (1971) : 南関東地域広域地盤沈下調査報告書, 69-101, 南関東地方地盤沈下調査会
- Brown, R.M. ・ Grummitt, W. E. (1956) : The Determination of Tritium in Natural Waters, *Can. J. Chem.*, 34, 220-26.