

—研究ノート—
Scientific Note

低バックグラウンド液体シンチレーション法による 極域雪氷試料中の HTO 濃度測定

神山孝吉¹・島田 亙¹・北岡 豪²・和泉 薫³・江角周一⁴

Determination of HTO Content in Polar Ice/Snow Samples by Low Background Liquid Scintillation Technique

Kokichi KAMIYAMA¹, Wataru SHIMADA¹, Kohichi KITAOKA²,
Kaoru IZUMI³ and Syuichi EZUMI⁴

Abstract: Tritium (T) is a radio isotope of hydrogen element, which is produced, on the earth, by atomic reactions in artificial atomic reactors as well as in the upper atmosphere. T occurs in natural water mainly as HTO and the concentration in precipitation shows local and seasonal fluctuations depending upon the production and migration processes in the hydrosphere as well as in the atmosphere. The ratio in water vapor (HTO/H₂O) in the atmosphere is not uniform; it is higher in the stratosphere than in the troposphere and also in the northern hemisphere than in the southern hemisphere. A temporal increase was observed in the atmosphere in the 1960's and recorded on the earth in snow layers, stagnant water basins and ground water.

The liquid scintillation method has been useful for the determination of tritium content in the liquid phase. The paper discusses the method for the determination of HTO content with the liquid scintillation system LSC-LB3 and significance of the values obtained. The discussion is useful for making the sampling plans in the field and also for detailed interpretation based on the values obtained. HTO content in various water samples in polar regions was introduced; this information is available to investigate snow sedimentary environments in polar regions as well as the water circulation process on the earth.

要旨: トリチウム (T) は水素 (H) の放射性同位元素であり、地球上では原子炉や大気上層部での原子反応で作り出されている。T は天然水中では主に HTO として存在しており、降水中の HTO 濃度は水圏おもに大気中における生成と水蒸気の輸送過程に依存し地域的にも時間的にも変動を生じている。また大気中の HTO/H₂O の割合は決して一様ではなく成層圏や北半球に偏在している。大気中では地球的規模で 1960 年代に一時的に増加しており、当時の積雪中の濃度に反映され極域雪氷中に保存されてい

¹ 国立極地研究所, National Institute of Polar Research, 9-10, Kaga 1-chome, Itabashi-ku, Tokyo 173.

² 京都大学理学部地球物理学研究施設, Beppu Geophysical Research Laboratory, Kyoto University, Noguchibaru, Beppu 874.

³ 新潟大学積雪地域災害研究センター, Research Institute for Hazards in Snowy Area, Niigata University, 8050, Ikarashi 2-nocho, Niigata 950-21.

⁴ 島根県衛生公害研究所, The Shimane Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science, Nishihamasada-cho 582-1, Matsue 690-1.

る。

液体シンチレーション法は溶液試料中の HTO 濃度の測定に有効である。ここでは主に液体シンチレーションシステム LSC-LB3 を利用した HTO の測定技術と得られた値の評価方法について議論する。この議論は野外での試料採取計画作成に有効であり、同時に測定結果に基づいた解析に対してその有効性と限界を提示するものである。また測定結果の一部として極域雪氷試料中の HTO 濃度について紹介し、極域での雪氷堆積環境、さらにはグローバルな水循環の研究について HTO 測定結果の利用の有効性について検討した。

1. はじめに

トリチウム (T) は半減期 12.4 年を有する水素の放射性同位体であり、天然トリチウムは宇宙線が大気に当たって生成される。大気中で生成されるトリチウムは水分子の一部 (HTO) を構成し降水に混入する。現在大気中でほぼ一定速度で生成され、その結果国内の降水中には約 10 TU (トリチウムユニット; 付録) 含まれている。しかしながら核実験や原子炉での核反応によっても作られるため、核実験が始まった 1952 年からしばしば増加している。特に 1960 年代には一時的に急増し、その後ほぼ以前の値まで減少し現在に至っている。

気圏におけるトリチウムのインベントリーは MASON and OSTLUND (1976, 1979) に詳しく記されているが、海洋からの水蒸気供給による希釈効果などのため地球上の HTO は偏在している。HTO が水分子として挙動し固有の半減期を有し降水中に増加していた年代を特定できることから、従来より水試料の HTO 濃度は水文現象の解明に利用されてきた (山本, 1972)。実際地下水などでは地表面から浸透した水の HTO は全く水分子として挙動し地下水中の HTO 濃度は滞留時間と半減期で決定される。そのため、地下水盆の特性の検討に有効である (KITAOKA, 1988)。

雪氷層中の HTO の分布は過去の降水中の濃度を反映し、氷河の堆積環境・水循環の研究に利用される (FUSHIMI *et al.*, 1985; KAMIYAMA *et al.*, 1986)。特に極域の雪氷層中には核実験の影響を受けた年代の積雪が他の地域に比べて比較的高濃度の HTO を示す層として検出されるので、近年の堆積速度を推定する有効な手段を提供する (JOUZEL *et al.*, 1979)。さらに HTO が成層圏に多いことから、大気循環場の季節変動に対応して降雪中の濃度に季節変動が生じている。このため降雪が堆積し保存されている積雪層にも季節変動が残されている (BEER *et al.*, 1991)。このように積雪層中の HTO 濃度分布は季節ごとの水蒸気の輸送過程を反映し年々の堆積層を形成するため堆積環境の指標として有効である。このような季節変動に加えて、グリーンランドのように大きな氷床では HTO 濃度は地理的な変動を示し、海岸からの距離や標高とともに高濃度となる (MERLIVAT *et al.*, 1973)。すなわち氷床への水蒸気の輸送・流入経路を推定する有効な一助である。特に南極内陸部には極めて高濃度の HTO が検出され、南極内陸部への水蒸気輸送の特異性を示唆している (神山・渡辺, 1994)。

水試料中のトリチウム測定には液体シンチレーション測定法が有効である。環境水試料中の

低濃度 HTO 測定では同位体濃縮が必要とされる場合も多いが、同位体濃縮には多大の労力と時間を必要とする。そのためバックグラウンド測定などに格別の注意を払い同位体濃縮せず測定することが簡便である (井上・岩倉, 1984)。本論文では低バックグラウンド液体シンチレーションシステムを使用した HTO 測定法について述べる。そして実際に極域雪氷試料の HTO 濃度を測定し、得られた値についての検出限界、測定誤差などに論及する。

従来より環境放射能を利用した氷河・氷床の堆積年代の推定が幅広く行われてきた (PICCIOTTO *et al.*, 1971)。一方一部のデータは十分に誤差を吟味することなく考察を加えられる場合もあるので、測定結果を取り扱う場合の有効性などについて議論した。今後の堆積環境研究適用に有効な情報である。

2. 測定試料の調製と測定方法

HTO はベータ線を発生させて半減期 12.4 年で崩壊している。崩壊時にはシンチレーターに蛍光現象が生じる。この蛍光現象を光電子増倍管で検出することにより、HTO の崩壊量が推定できる。液体シンチレーターに測定試料である極域の雪氷試料を融解させ、液体シンチレーションカウンターで測定する。ここでは液体シンチレーションカウンターとして低バックグラウンド液体シンチレーションシステム LSC-LB3 (アロカ株式会社) を使用し、シンチレーターとして配合済乳化シンチレーター (アクアゾル-2, パッカーードインストルメント) を用いた

表 1 使用機器・試薬など
Table 1. Instruments and reagents.

機器・試薬など	機器・試薬名称, 規格, 必要量
使用機器	低バックグラウンド液体シンチレーションシステム アロカ株式会社; LSC-LB3
シンチレーター	アクアゾル-2, パッカーードインストルメント
試料容器	100 ml テフロン瓶
測定試料重量	50 g
シンチレーター容量	50 ml

(表 1)。本システムで 100 時間計数後に得られた蛍光のエネルギースペクトルを参考資料として図示した (図 1)。上部に低濃度の試料, 下部に高濃度試料の例を示した。横軸がエネルギーレベルに対応するチャンネル, 縦軸が各チャンネル別計数値である。上部の図では縦軸が下部の図の 1/100 倍になっているため実際のノイズを見ることができる。トリチウムから発生するベータ線の最大エネルギーは 18.6 keV である。したがって本スペクトル中の 1-18 keV のエネルギー部分がトリチウムの崩壊に起因する。

2.1. 測定試料の調製

測定試料中に不純物が存在すると発生したベータ線からクエンチャーへのエネルギーの伝

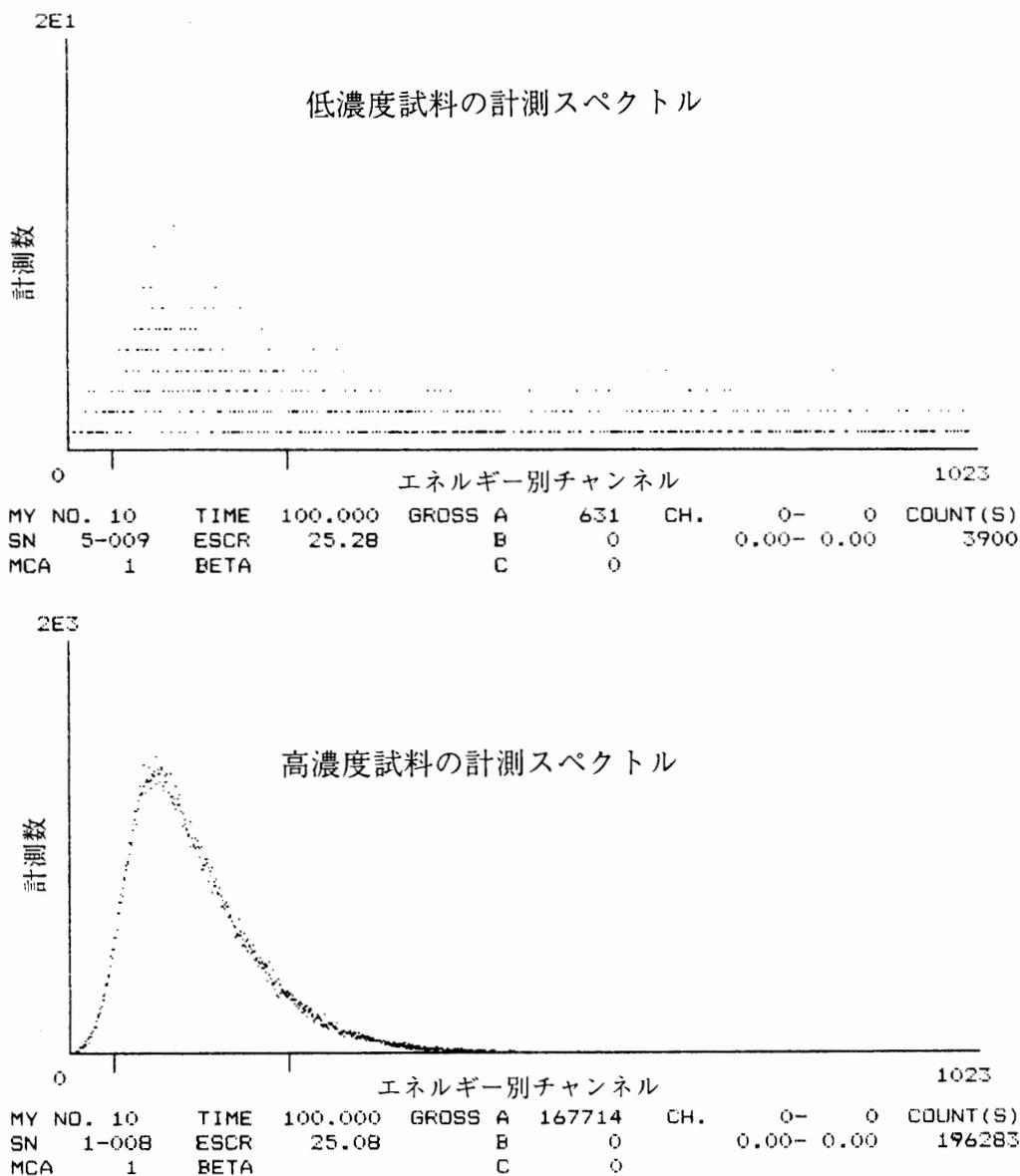


図1 HTO 低濃度試料及び高濃度試料の蛍光エネルギースペクトル

Fig. 1. Fluorescence energy spectrum for both snow/ice samples containing low and high concentrations of HTO.

達が妨害される可能性がある。また不純物によっては溶液が着色し、蛍光の一部が吸収されることも生じる。このような効果がクエンチング（消光）であり、シンチレーターと試料の不純物をできるだけ取り除き低減させることが望ましい。逆に試料中ではケルミネッセンスによって蛍光が発生する場合も考えられる。本機器はケルミネッセンスの効果については同時計測法によって除去するべく設定しているが影響のないことが望ましい。したがって試料は原則として蒸留することによって不純物を取り除いた。極域の試料はわずかに酸性で一般的には不純物をほとんど含んでいないが、参考のために試料を蒸留した場合と蒸留しない場合について計数値を比較した（表2）。試料が少ない場合には蒸留操作による回収欠損が生じるので、不

表2 雪氷試料の100分計数を12回繰り返したときの計数値の平均値
Table 2. Average counts during 100 min in 12 times for snow/ice samples.

試料種別	処理方法	平均値 (cpm)	平均値の 標準偏差	備考
南極表面積雪 a	無処理	3.497	0.206	S18 表面積雪
南極表面積雪 a	蒸留	3.520	0.285	S18 表面積雪
南極表面積雪 b	無処理	3.562	0.201	みずほ基地表面積雪
南極表面積雪 b	蒸留	3.562	0.183	みずほ基地表面積雪
南極中層コア	蒸留	3.010	0.187	みずほ基地 380 m 深雪氷コア
南極中層コア	無処理	2.962	0.228	みずほ基地 380 m 深雪氷コア
南極中層コア	無処理	3.013	0.242	みずほ基地 380 m 深雪氷コア

表3 バックグラウンド試料の計数値
Table 3. Average counts for background samples.

試料種別	試料容量 (ml)	混合比 (ratio)	計数時間 (min)	計数回数 (times)	平均時間計数 (cpm)	標準誤差 (σ)
試料1	50	1:1	100	1440	2.958	0.082
試料2	50	1:1	100	1440	2.920	0.108

表4 一定量の HTO 量を有するクエンチャー標準試料
Table 4. Quenched standards containing a fixed activity of HTO.

試料 番号	封入放射能 97/01/29 (k Bq (k dpm))	トリチウム 水 (ml)	クエンチャー (ml 蒸留水)	シンチレーター (アクアゾル II: ml)	含水率 (V/V%)
H-1	44.3 (2660)	1	0	99	1
H-2	44.3 (2660)	1	4	95	5
H-3	44.3 (2660)	1	9	90	10
H-4	44.3 (2660)	1	19	80	20
H-5	44.3 (2660)	1	24	75	25
H-6	44.3 (2660)	1	29	70	30
H-7	44.3 (2660)	1	34	65	35
H-8	44.3 (2660)	1	39	60	40
H-9	44.3 (2660)	1	44	55	45
H-10	44.3 (2660)	1	49	50	50

純物の少ない極域雪氷試料 (溶液の電気伝導度がほぼ $3 \mu\text{S}/\text{cm}$ 以下である) などについてはここで検討を加えたように蒸留を行わなくても問題はない。しかしながら常に検証が必要である。

バックグラウンド試料調製: 南極氷床中層掘削試料をトリチウムの含まれない試料と考え、みずほ基地で掘削した雪氷コア試料の約 400 m 深度 (推定年代 8 千年前) の部分を利用した。同試料を蒸留しシンチレーターと 1:1 で混合したクエンチャーをバックグラウンド試料として調整した。ここでバックグラウンド試料の計数値を示す (表 3)。試料は 100 分間計数を繰り返してその測定値の平均と標準偏差を記載した。宇宙線空気シャワー成分、検出器周辺の物質・検出器自身とその付属装置を構成する材料物質に含まれる天然及び人工の放射線物質、測定回

路で発生する電氣的雑音などが、バックグラウンド計数の原因として考えられる (日本化学会, 1975)。またシンチレータやバックグラウンド試料にもトリチウムが含まれている可能性も否定できない。

標準試料の調整: 標準試料として液体シンチレーション用標準試料 (内部標準スタンダード Tritiated water, パッカードインストルメント) を利用した。本試料は水として約 3.0×10^6 dpm/g 若 (作成日基準) が 10 ml アンプル封印されている。同試料を用いて水とシンチレーターの混合割合を適宜変化させた一定量の HTO 量を有する一連のクエンチャー標準試料を作成した (表 4)。水とシンチレーターの混合割合に応じてクエンチング強度が異なり、また水と溶媒の混合割合によっては分離してしまう場合も見られるので注意する。

2.2. 測定方法

計測効率の測定: シンチレーターの発光量は種々の原因で減少する。理論的には検出器の全計数は変化しないものの、出力波高分布が低エネルギー側にシフトする。そのため実際には雑音パルスと区別できない低エネルギーの発光となり、一定エネルギー以上のパルス波高の計数値は減少する。したがってクエンチングの程度に応じて検出器からのパルス波高は一定の割合で減少していく。クエンチャー標準試料に外部から γ 線源 (^{137}Cs) を照射し得られた蛍光のパルス波高分布を測定しその分布の低エネルギーレベルへのシフトからクエンチングの程度を推定する。その後 HTO から発生する蛍光を計数し、外部線源を利用したシフト程度と計数効率との関係を調べた (図 2)。図中横軸は外部線源での全エネルギーレベルの計数値に対する目的エネルギーレベルの計数値の割合、縦軸は想定される HTO 計数値に対する本機器での計数値の割合 (計数効率) である。

試料の測定: 本機器には 20 試料のオートサンプルチェンジャーが付属している。測定試料は蒸留した後基本的には 1:1 でシンチレーターと混合し 100 ml とし専用容器に封入する。測定試料量が少ない場合にはクエンチャー標準試料と同様にシンチレーターとの混合割合を増加させることが出来るが、容器に封入する放射エネルギーが減少し精度が落ちる。一連の測定試料群の最初にブランク試料、次に一連の測定試料とシンチレーターとの混合割合に近い標準試料を配置し液体シンチレーションカウンターにセットする。バックグラウンドの計数値は確認するに留め、計算上は長期に確認した値 (表 3) を利用した。また標準試料を用いて機器の測定精度の確認を行った。シンチレーターに起因する誤差に留意し、ロットが異なる場合には常にバックグラウンド試料を作成し確認に努めた。

外部線源法で各試料のクエンチングの程度を推定し図 2 に示した計数効率に内挿して HTO 量を推定する。計数時には試料の計数効率がクエンチャー標準試料を用いて得られた値から逸脱しないことに留意した。実際の雪氷試料に含まれている物質は微量であり加えて蒸留しているため、シンチレーターとの混合割合に大きな変動がなければ、試料のクエンチング程度の変

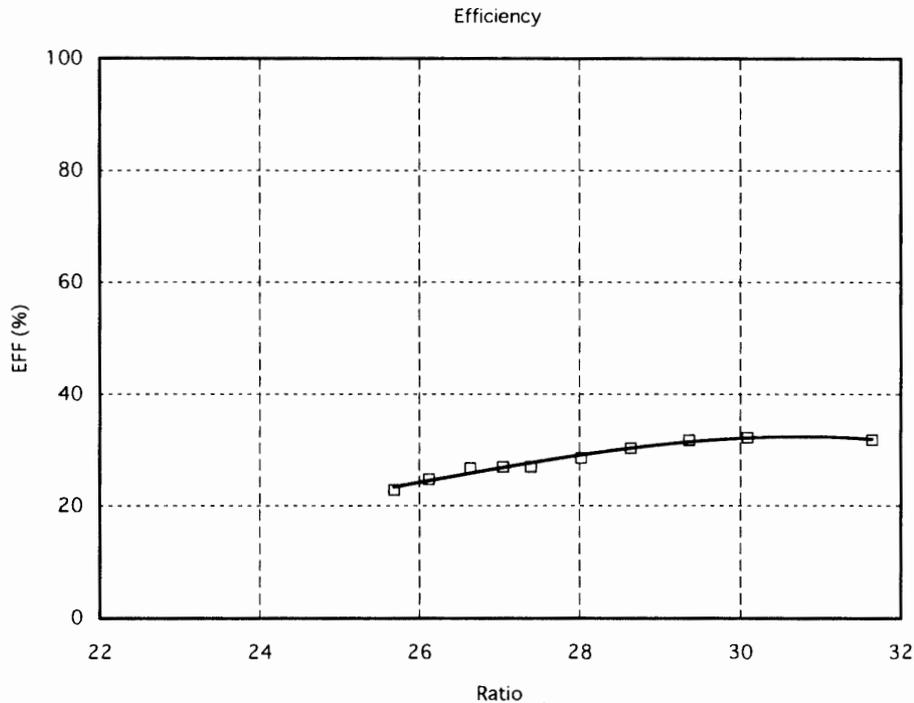


図2 クエンチング程度による有効計数数の変動率と計数効率との関係

Fig. 2. Relationship between effective count ratio and efficiency with fluctuation for quenching process.

動はほとんどない。

3. 測定結果

3.1. 検出限界と計測誤差

測定結果を議論する場合には誤差の見積もりが重要である。放射線計数において計数誤差は総崩壊計数値に依存する。すなわち計数値 N が得られた場合、計数誤差 σ は $\pm\sqrt{N}$ で相対誤差は $\pm 1/\sqrt{N}$ ($=\pm\sqrt{N}/N$) である。したがって測定時間が短いあるいは低濃度試料で計数数が少ない場合には相対誤差が大きくなる。ここでは参考資料として表5に想定検出限界と計数誤差を示した。クエンチャー試料における HTO 濃度への換算に直接影響するものは測定試料量の割合と計数効率である。ここでは測定試料 50 g 計数効率 21% (測定試料 50 g, シンチレーター 50 ml 混合に相当) を想定した。図2に示したように計数効率の変動が 21~33% 程度であるので、試料量が異なった場合には HTO 濃度への換算に注意すればよい。すなわち試料を 100 分間計数したとし、表3で想定したバックグラウンド値から約 0.5 cpm 以上の有意差があれば検出可能である。これは測定試料が 50 g の場合の 7 TU の試料に相当し $\pm 5\%$ 程度の誤差を有する。この場合試料が 5 g なら 70 TU の試料に相当する。1% 程度の誤差に抑える場合には 1000 分間計数で 50 g, 100 TU の試料を必要とする。計数時間を増やすことによって若干検出限界は向上するものの、誤差を拾う場合も増大する。また外部要因から時として検出値が高く

表5 想定検出限界と計数誤差
Table 5. Detection limit and counting errors.

想定試料	計測時間 min.	計数 Counts	誤差 SQ (Counts)	計数率 (速度) cpm	計数 効率 %	崩壊率 (速度) dpm	HTO 換算 TU	試料 濃度 TU	HTO 濃度 TU	相対 誤差 %	誤差 倍率	想定最大 HTO換算 TU	想定最小 HTO換算 TU
Background	100	300	17.32	3	21	14.29	40.3	0.0	5.8	1		42.6	38.0
Bacuground	100	300	17.32	3	21	14.29	40.3	0.0	5.8	2		45.0	35.7
Background	100	300	17.32	3	21	14.29	40.3	0.0	5.8	3		47.3	33.3
Background	100	300	17.32	3	21	14.29	40.3	0.0	5.8	4		49.6	31.0
検出限界	100	350	18.71	3.5	21	16.67	47.0	6.7	5.3	1		49.5	44.5
検出限界	100	350	18.71	3.5	21	16.67	47.0	6.7	5.3	2		52.1	42.0
検出限界	100	350	18.71	3.5	21	16.67	47.0	6.7	5.3	3		54.6	39.5
検出限界	100	350	18.71	3.5	21	16.67	47.0	6.7	5.3	4		57.1	37.0
Background	1000	3000	54.77	3	21	14.29	40.3	0.0	1.8	4		43.3	37.4
検出限界	1000	3500	59.16	3.5	21	16.67	47.0	6.7	1.7	4		50.2	43.9
測定例	100	1000	31.62	10	21	47.62	134.4	94.1	3.2	2		142.9	125.9
測定例	100	1030	32.09	10.3	21	49.05	138.4	98.1	3.1	2		147.0	129.8
測定例	1000	10300	101.49	10.3	21	49.05	138.4	98.1	1.0	2		141.1	135.7

なることが考えられる。

実際の測定では100分計数を10回繰り返し、得られた平均値から 2σ 以内の試料について全計数数から放射線量を測定した。

3.2. 測定結果と考察

ここでは南極内陸部における測定例を紹介し測定誤差について論じる。日本南極地域観測隊では昭和基地から南極内陸部にかけて調査・観測を実施してきた。1985年10月～12月、1992年9月～11月の2期間の調査旅行時に採取された氷床表面の積雪試料の一部についてHTO濃度を測定した。採取地域は昭和基地から内陸ドーム域の観測ルート上で各地点での採取時期は若干異なっている (AGETA *et al.*, 1987, KAMIYAMA *et al.*, 1994)。採取地点の高度に対するHTO濃度変動と採取時期に対する変動をそれぞれ図の上下に示した (図3)。両採取期間の積雪試料とも標高が高い地点で高濃度であることが解かる (図3上)。1985年の分布から南極氷床内陸部における大気中の水蒸気の輸送過程について論究した (KAMIYAMA *et al.*, 1989)。1985年当時の測定結果と1992年の測定結果は自然現象の再現性を良く反映している。すなわち春期に内陸部に高濃度のHTO積雪が観測されることは一時的な現象ではなく、普遍的な大気現象を反映していると思われる。しかしながら1985年の試料は1992年の試料に比べて採取開始時期が11月初旬と遅く3200mと比較的標高が高い地点から採取を開始している。最初低濃度であったが11月下旬に標高3700m以上で高濃度になり時間の経過と標高が低くなるに伴い再び低濃度になった。一方1992年には9月下旬の標高1200mと比較的低標高地点の試料から計測し低濃度であったが10月下旬にやはり標高3700m付近で急激に高濃度になる (図3下)。このように詳しくは試料採取時の環境が異なっているため、今後さらに各季節の観測と解

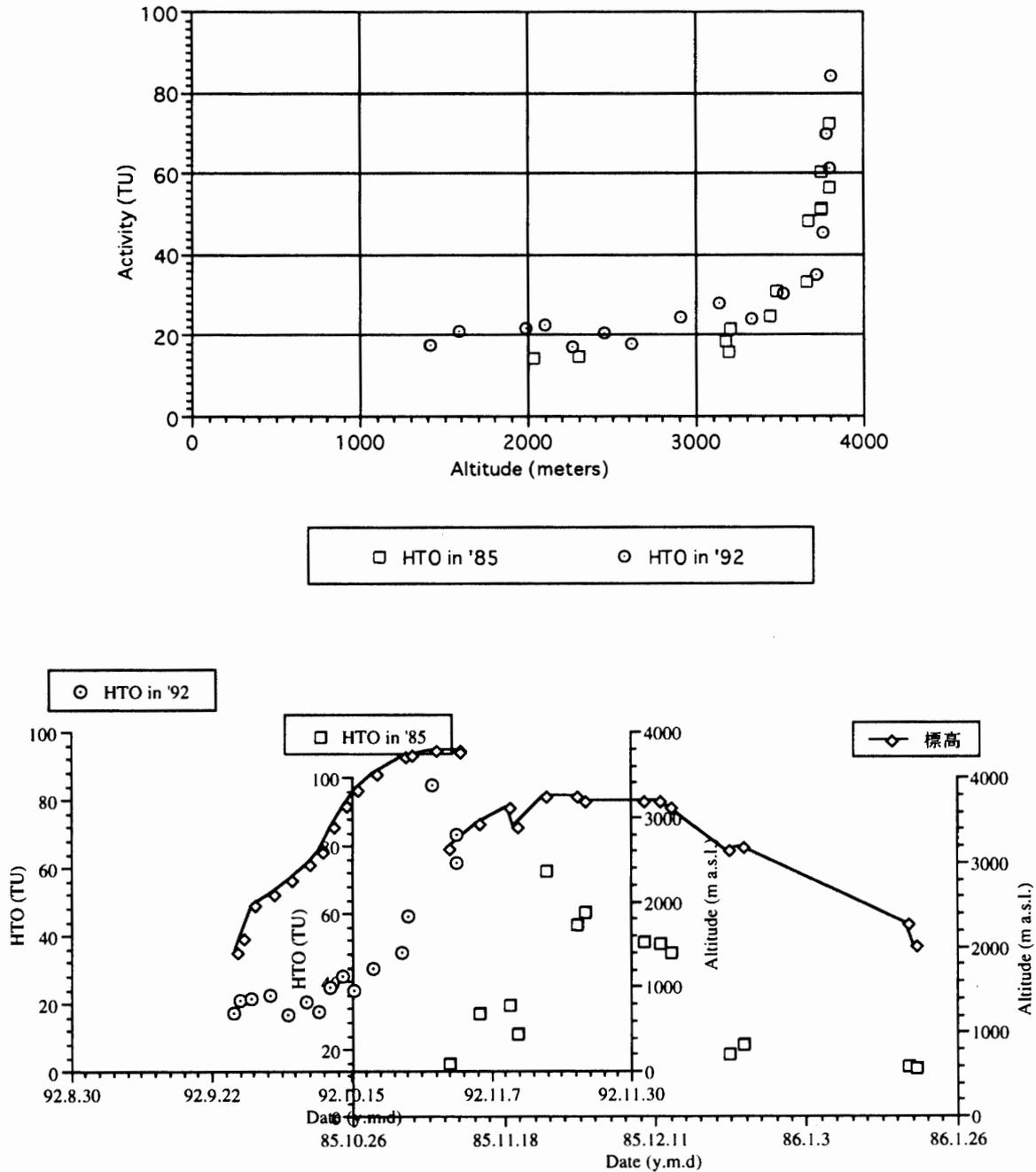


図3 南極氷床上雪氷試料採取地点の高度に対する HTO 濃度変動と採取時期に対する変動
 Fig. 3. Distribution of HTO in surface snow against altitude of sampling sites and also against sampling period on an ice plateau in Antarctica.

析を充実させていく過程で十分な考察を加える必要がある。

次に有為な計測結果を与える試料量について論じる。一般に南極の積雪は 20-80 TU の範囲である。実際測定に必要な試料量は含まれる放射線量に依存しているので 10 TU 程度の試料では 50 g 程度の試料が必要であるが、80 TU 程度なら 5 g 程度で測定可能である。また南極内陸部の積雪表層部の HTO 鉛直分布についてはその測定精度・検出限界を含めて既に報告され

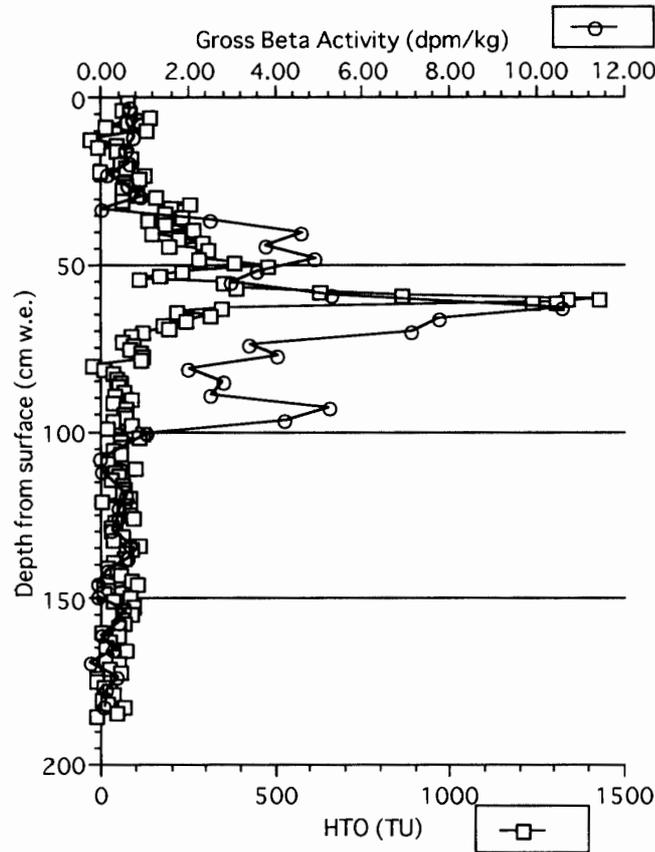


図4 南極内陸部の積雪表層部のグロスベータと HTO の鉛直分布

Fig. 4. Vertical distribution of gross beta activities and HTO in snow pit in inland region, Antarctica.

ている (KAMIYAMA *et al.*, 1989)が、同時に測定されたグロスベータ強度を含めて試料採取量の観点から論じたい (図4)。ここでは HTO の値は測定時の 1987 年当時の値で示されている。従って現在さらに減少している。ピーク値のみの議論ならば上記のように 5 g 程度で十分であるが、表面での季節変動まで議論する場合には 50 g の試料が望ましい。また半減期を目安に 10 数年以上以前に堆積した層での季節変動を本機器を用いて検出する場合には 1 kg 程度の試料を濃縮する必要がある。グロスベータ測定に供した試料は $200 \text{ g} \pm 10\%$ である。図では dpm/kg で標準化された測定値で示しているため 3 dpm/kg 以上の強度プロファイルを議論するには有効であるが、それ以下の値についてはプロファイルの変動の議論は誤差が大きくなり難しい (神山ら, 1994)。グロスベータは様々な核種に起源を有するので半減期で議論することは注意がある (PICCIOTTO *et al.*, 1971) が、ピーク値の議論では 200 g 以上の試料、季節変動では数 kg 以上の試料が必要である。

今後試料採取の際の指針になれば幸いである。

4. おわりに

従来より HTO 測定を行ってきた。現在利用した機器の性能が向上したため著者達の所属機関で測定結果の相互比較を行うとともに、測定方法の再検討を行った。HTO 測定は従来地表面の水循環・滞留時間、大気中の気団に含まれる水蒸気の起源の推定などに活用されてきた。本報告では主に極域の試料を用いて測定手法の検討を行った。従来からも報告しているように極域の雪氷試料の HTO 濃度は高濃度で有り、大気環境・雪氷堆積環境を大きく反映している。今後他の情報と合わせることによって極域環境の理解に大きく貢献するものと考えられる。

文 献

- AGETA, Y., KIKUCHI, T., KAMIYAMA, K. and OKUHIRA, F. (1987): Glaciological research program in East Queen Maud Land, East Antarctica, Part 5, 1985. JARE Data Rep., **125** (Glaciology 14), 74 p.
- BEER, J., FINKEL, R.C., BONONANI, G., GAGGELER, H., GORLACH, U. *et al.* (1991): Seasonal variations in the concentration of ^{10}Be , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , H_2O_2 , ^{210}Pb , ^3H , mineral dust, and $\delta^{18}\text{O}$ in Greenland snow. Atmos. Environ., **25**, 899-904.
- FUSHIMI, H., KAMIYAMA, K., KITAOKA, K. and IKEGAMI, K. (1985): Fluctuations of sedimentary environments of the Gyajo Glacier, Khumbu Region, East Nepal. Ann. Glaciol., **6**, 258-260.
- 井上義和・岩倉哲男 (1984): 大容量液体シンチレーション検出器のトリチウムチャンネルのバックグラウンド計数率に及ぼす化学クエンチングの影響。Radioisotopes, **33**, 431-436.
- JOUZEL, J., MERLIVAT, L., POURCHET, M. and LORIUS, C. (1979): A continuous record of artificial tritium fallout at the south pole (1954-1978). Earth Planet. Sci. Lett., **45**, 188-200.
- 神山孝吉・渡辺興垂 (1994): 南極内陸氷床へ降下・堆積する物質について。南極資料, **38**, 232-242.
- KAMIYAMA, K., KITAOKA, K. and WATANABE, O. (1986): Characteristics of Yala Glacier on the viewpoint of tritium content. J. Geophys. Res., **91**, 11841-11844.
- KAMIYAMA, K., AGETA, Y. and FUJII, Y. (1989): Atmospheric and depositional environments traced from unique chemical compositions of the snow over an inland high plateau, Antarctica. J. Geophys. Res., **94**, 18515-18519.
- 神山孝吉・紀本岳志・江角周一・中山英一郎・渡辺興垂 (1994): 現場運用を主体とした極域積雪試料の化学的解析手法について。南極資料, **38**, 30-40.
- KAMIYAMA, K., FURUKAWA, T., MAENO, H., KISHI, T. and KANAOKA, M. (1994): Glaciological data collected by the 33rd Japanese Antarctic Research Expedition in 1992. JARE Data Rep., **194** (Glaciology 21), 67 p.
- KITAOKA, K. (1988): A model of quality distribution in groundwater with reference to natural tritium concentration. 地下水学会誌, **30**, 77-93.
- MASON, A.S. and OSTLUND, H.G. (1976): Atmospheric HT and HTO, 3. Vertical transport of water in the stratosphere. J. Geophys. Res., **81**, 5349-5352.
- MASON, A.S. and OSTLUND, H.G. (1979): Atmospheric HT and HTO, 5. Distribution and large-scale circulation. Behavior of Tritium in the Environment, Vienna, IAEA, 3-16.
- MERLIVAT, L., RAVOIRE, J. and VERGNAUD, J.P. (1973): Tritium and deuterium content of the snow in Greenland. Earth Planet. Sci. Lett., **19**, 235-240.
- 日本化学会 (1975): 新実験化学講座 7, 基礎技術 6 核・放射線「1」。東京, 丸善, 344 p.
- PICCIOTTO, E., CROZAZ, G. and DEBREUCK, W. (1971): Accumulation on the South Pole-queen Maud Land traverse, 1964-1968. Antarctic Snow and Ice Studies, **2**, ed. by A.P. CRARY. Washington, D.C., Am. Geophys. Union, 257-315 (Antarct. Res. Ser., Vol. 16).
- 山本荘毅 (1972): 水文学総論, 東京, 共立出版, 226 p.

附録 試料計数値の表示方法

天然水中の HTO 濃度は便宜的にトリチウムユニット (TU) で表記されることが多く、水の中の T/H=1×10⁻¹⁸ のとき 1 TU としている。この表記では大都市の雨水の値が約 10 TU となり天然水中の HTO 濃度を記載する場合には非常に便利であり、多くの研究が本記載方法のもとに行われている。しかしながら放射線崩壊は国際単位系ではベクレル (Bq)、歴史的にはキュリー (Ci) で表記される。また実際の放射線計数では崩壊の実際の計数 (cpm) さらには崩壊速度 (dpm) が測定対象である。ここでは計数値の表示方法について記載する。

トリチウム原子 (Nt) の崩壊速度 (dpm) は以下のとおりである。

$$\begin{aligned} d Nt/dt &= \lambda Nt = 1/Tl \times Nt = \ln 2/Th \times Nt \quad (Th = 12.43 \text{ year} = 12.43 \times 365 \times 60 \text{ min}) \\ &= 1/9431681 \quad (= Th/\ln 2) \times Nt. \end{aligned}$$

ここで、1 TU の水試料 1 g に含まれるトリチウム原子の数は

$$1/((2 \times 1.00794 + 15.9994)/(2 \times 6.022137 \times 10^{23})/0.99985) \times 10^{-18}.$$

ただし水試料の D/H は 0.015% であると想定。

したがって 1 TU の水試料 1 グラムが 1 分間に発生させる放射線量 (dpm/g) は

$$(2 \times 6.022137 \times 10^{23}) / (18.01528 \times 0.99985 \times 10^{18} \times 9431681) = 1/141.1.$$

よって

$$\text{dpm/g} = 141.1 \text{ TU}.$$

$$1 \text{ Bq/l} = 1 \text{ dps/1000 g} = 60/1000 \text{ dpm/g} = 60/1000 \times 141.1 \text{ TU} = 8.47 \text{ TU}.$$

$$1 \text{ TU} = (1/8.47) \text{ Bq/l} = 0.1181 \text{ Bq/l}.$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ dps}.$$

$$1 \text{ pCi/l} = 3.7 \times 10^{10} \times 10^{-12} / 1000 \text{ dps/g} = 0.00222 \text{ dpm/g} = 0.3132 \text{ TU}.$$

$$1 \text{ TU} = 3.192 \text{ pCi/l}.$$