

放射線科学

トリチウムの環境動態

飯田 孝夫

トリチウム ($^3\text{H}/\text{T}$) は半減期 12.3 年の β 線放出核種である。その β 線の最大エネルギーは 18keV、平均エネルギーは 5.7keV と低い。天然には上層大気中で宇宙線により、 $^{14}\text{N}(\text{n}, \text{T})^{12}\text{C}$ 、 $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{T})^{14}\text{N}$ 、 $\text{D}(\text{n}, \gamma)\text{T}$ 等の核反応で生成される。宇宙線の地球への入射量は極に近いほど大きいので、トリチウムの生成量には緯度効果がある。1950 年代から 1960 年代にかけて大規模に行われた大気圏内核実験により、環境中のトリチウムの存在量は飛躍的に増加した。しかし、部分的核実験停止条約の締結以来、トリチウム濃度は減衰と海洋・水圏による希釈により、現在では大気圏内核実験前のレベルにまで減少している。現在のトリチウムの人工放出源としては、原子力関連施設が挙げられる。日本の原子力施設からのトリチウム放出量は、原子力発電所から $4 \times 10^{14} \text{ Bq y}^{-1}$ (1998-2009 年の実績)、再処理施設から $2 \times 10^{16} \text{ Bq y}^{-1}$ (管理目標値) である。原子力施設周辺では、気体中と液体中のトリチウム濃度のモニタリングが行われている。環境中ではトリチウムは様々な化学形で存在している。ただし、環境中には 99%以上が水蒸気状トリチウム (HTO) の化学形で存在している。このため、トリチウムは環境中の水の動きのトレーサとして利用されている。以下に、1984 年から研究室で行ってきたトリチウムの環境動態の研究を示す。

降水中トリチウムは、1960 年代には大気圏内核実験により核実験前の 200 倍にも増加した。他の研究機関で 1980 年以前に行われた測定では、日本の降水中のトリチウム濃度には春の極大が認められていた。しかし、当研究室で 1984 年以降に行った測定では春の極大も消失し、冬に高く夏に低い季節変動を示しながら次第に減少していった。1984 年頃に最大 3 Bq L^{-1} あった降水中トリチウム濃度は現在では 0.5 Bq L^{-1} 程度である。日本における降水中のトリチウム濃度の測定は多くの研究機関で実施されてきた。降水中のトリチウムの見かけの半減期は 5~8 年で、顕著な地域差は認められなかった。中国内では、1980 年以前の降水中トリチウム濃度は同じ時期の日本の濃度の 5 倍程度あった。これは緯度効果や内陸効果と核実験の影響である。1990 年代になってから行った中国との共同研究の結果、緯度効果や内陸効果は同じように検証された。この年代

の中国のトリチウム濃度レベルは、低緯度地方での 0.5 Bq L^{-1} から高緯度地方での 9 Bq L^{-1} であった。

日本では、大気水蒸気中のトリチウム濃度の測定は原子力発電所周辺で定期的に行われている。しかし、その濃度の時間変動についての定量的な解析はあまり行われてこなかった。当研究室で1984年から行ってきた測定によると、水蒸気中トリチウム濃度は降水中の濃度レベルより少し高く、降水と同じ経年変化を示していた。1984年頃には最大 5 Bq L^{-1} あった濃度は、現在では 0.5 Bq L^{-1} 程度である。水蒸気中トリチウム濃度と遠方起源のラドン(^{222}Rn)濃度および大気中ベリリウム(^7Be)濃度との相関関係から、冬季のトリチウムの起源は大部分が中国大陸にあることが推測された。1990年代になってから行った中国との共同研究の結果、水蒸気中トリチウム濃度の調査も降水トリチウム濃度と同じような傾向を示し、緯度効果や内陸効果が見られた。しかし、中国の東北部4都市および拉薩では降水トリチウム濃度が高いのに対し、乾燥帯である烏魯木齊、蘭州を含む華中では逆に降水トリチウム濃度が水蒸気中トリチウム濃度に較べて低い結果となった。

前に述べたように、1980年代になるとトリチウム濃度の春の極大は消失し、冬に高く夏に低い季節変動が観測されるようになった。これは成層圏のトリチウム溜まりが消失し、地表面からの蒸発が主たる起源となったと推測される。すなわち、中国内陸から冬季に季節風によって高濃度のトリチウムを含んだ水蒸気が日本に運ばれるのに対して、夏季には小笠原高気圧によって海洋の低濃度トリチウム水蒸気が日本に運ばれる。この推測を定量的に検討するために、流跡線解析を用いる輸送モデルを適用した。名古屋の1984年2月の水蒸気中トリチウム濃度の2層モデルによる計算結果は 2.5 Bq L^{-1} となり、実測値 2.6 Bq L^{-1} と良く一致した。一方、1984年8月の水蒸気中トリチウム濃度の実測値 2.2 Bq L^{-1} に対し、計算結果は 1.1 Bq L^{-1} とほぼ半分の値を与えた。夏の場合、モデル計算では水蒸気量やトリチウム濃度の太平洋起源成分と日本起源成分の数値の不正確さの影響を受けやすい。

1990年代には環境水中のトリチウム濃度は非常に低いレベルに落ち着いてきていた。それに対して、原子力施設から放出される人工のトリチウム量は年々増加している。そのため、環境中のトリチウム濃度レベルは原子力施設からの放出の影響を受けやすい。このため、環境中のトリチウムの日本における濃度レベルを把握することは重要である。日本の環境水として、1997年に河川水、湖水、池水、水道水の採取を行って、それらのトリチウム濃度を測定した。河川水18試料の平均値は $(0.48 \pm 0.16) \text{ Bq L}^{-1}$ であった。水道水8試料の平均値は

(0.62 ± 0.18) Bq L⁻¹と少し河川水より高かった。湖水、池水は場所による変動は大きい、一般に河川水より低かった。河川水と湖水、池水の濃度差は主に水蒸気交換、雨の影響、池、湖の振る舞いにより説明ができる。海水は $0.12 \sim 0.23$ Bq L⁻¹と予想通り低濃度であった。

環境中に存在するトリチウムはHTOの化学形だけでなく、HTやCH₃Tの化学形でも存在する。それ故、化学形別にトリチウム濃度を把握することは、それらの環境中での動態を知る上で非常に重要になってくる。この研究は日本原子力研究所との共同で行った。この目的で、化学形別に同時にサンプリングする装置を開発した。周辺に原子力関連施設が集まっている日本原子力研究所・東海研究所構内で空気採取をし、トリチウム濃度を化学形別に測定した。化学形ごとの濃度は、1996年6月～11月の平均値でHTOは 12.7 ± 4.3 mBq m⁻³、HTは 12.7 ± 4.2 mBq m⁻³、CH₃Tは 6.6 ± 4.0 mBq m⁻³であった。得られた測定結果と原子力施設の影響のない水戸市の値と比較すると、全体的に高い傾向が認められた。土壌環境においては、土壌、生物、植物の影響は無視できない。土壌空気中のトリチウムの化学形別濃度も調べた。HTO濃度は 12.8 ± 4.0 mBq m⁻³、HTは 3.6 ± 4.1 mBq m⁻³、CH₃Tは 3.4 ± 4.1 mBq m⁻³であった。土壌空気中と大気中とを比較した場合、HTO濃度については、ほとんど差は認められなかった。一方、HT、CH₃T濃度は土壌中微生物による酸化のため、土壌空気中の方が低い結果が得られた。環境中のトリチウム移行のモデル化には、大気から土壌へのHTの沈着速度は重要なパラメータである。この目的で、比較的容易に様々な環境でHT沈着速度を評価するための新しい手法を開発した。得られたHT沈着速度は、 $1.3 \times 10^{-5} \sim 3.2 \times 10^{-5}$ m s⁻¹であった。これまで、HTを人工的に放出した場合でのHT沈着速度は、 $1.1 \times 10^{-5} \sim 3.2 \times 10^{-4}$ m s⁻¹という値が報告されている。この差の原因としては、研究対象とした土壌の含水率がかなり小さかった点が挙げられる。

大気中のトリチウムはレインアウト（雲内除去）やウォッシュアウト（雲下除去）によって大気中から除去される。特に、トリチウムの放出源に近いところではウォッシュアウトが主要な除去過程である。これまで、ウォッシュアウトの評価は実測値による評価が主に行われてきた。当研究室では、モデルによるトリチウムの濃度分布を仮定して、雨によるトリチウムのウォッシュアウト過程も評価した。ウォッシュアウトの評価には、大気中と降水中の放射能比で定義されたウォッシュアウト係数を用いた。ウォッシュアウト過程は、一様分布モデルと濃度変化モデルの2つのトリチウム濃度分布モデルを仮定して評価した。屋外測定を2回行った。ウォッシュアウト係数として、 $(1.81 \pm 0.47) \times 10^{-5}$ s⁻¹と $(1.16 \pm 0.34) \times 10^{-5}$ s⁻¹を得た。モデル計算では測定値の約2倍の値が得ら

れた。人工気象施設を用いた降雨実験で、THOの代わりにD₂Oを用いたウォッシュアウト係数の評価実験も行った。降雨強度が10mmh⁻¹のときウォッシュアウト係数は(2.72±0.10)×10⁻³ s⁻¹、50mmh⁻¹のとき(1.93±0.07)×10⁻³ s⁻¹であった。モデル計算値では、降雨強度が10mmh⁻¹のとき3.56×10⁻⁴ s⁻¹、50mmh⁻¹のとき8.52×10⁻⁴ s⁻¹であった。モデル計算値は実測値に比べ1桁程度小さい。しかし、降雨強度が強いほどモデル計算値と実測値に近い傾向を示している。

自然環境水中のトリチウム濃度を測定することは、原子力関連施設からのトリチウム放出の環境影響を考える上で非常に重要である。トリチウム濃度の測定方法として、科学技術庁が発行している放射能測定シリーズ9「トリチウム測定法」に従っている研究施設が多い。しかし、蒸留操作はかなりの時間と手間が必要である。トリチウム測定の前処理で行われている蒸留法による前処理を濾過法に代替することを検討した。当研究室では2種類の濾過法と蒸留法の合計3つの異なる前処理法を用いて実験を行った。ケミカル・ルミネセンスについては、蒸留の方が優れている。しかし、放置時間を長く取ることによってケミカル・ルミネセンスの問題は解決できる。誤計数の主原因はラドン壊変核種であるので、それらの壊変を待てば測定に影響を与えることはない。環境試料水については、不純物の定量によりイオンとして試料に溶解している物質を濾過により取り除くのは難しい。しかし、トリチウム濃度の測定の結果には影響がなかった。これらの結果から、ラドンの壊変やケミカル・ルミネセンスの十分な減衰に時間をかけるならば、河川水や水道水、降雨等の試料には蒸留法に代替して精密濾過法を用いても濃度測定に大きな影響はないと結論できた。

最後に、東京電力福島第1原子力発電所の事故のトリチウムの環境影響について述べる。事故で放出された核種と放射性核種濃度は推定されている。しかし、公表されている核種の中にトリチウムは含まれていない。これは、トリチウムが放出されていないのではなく、人への被曝が他の核種に比べて小さいと予想されるため、評価されていないと思われる。いずれ、放射性物質の環境動態の面から、どの程度のトリチウムが放出されたか評価は必要である。

(名古屋大学名誉教授)