



小特集 施設起源トリチウムの移行モデルと環境トリチウム分布

2. 環境トリチウムの現状と分布

2.1 大気中トリチウム濃度の変遷と化学形態別測定

宇田達彦, 田中将裕

核融合科学研究所安全管理センター

(原稿受付: 2009年6月8日)

大気中トリチウムは、宇宙線との核反応によって生成される天然起源と、核実験や原子力施設の稼働に伴う人為起源とに大別できる。近年、核実験による影響が大幅に減少している一方、原子力施設が増えることによって大気中のHT濃度に影響を与えていることが、示唆されている。ここでは大気中トリチウムの変遷と化学形態別測定方法について述べ、トリチウム濃度の変動、地域的影響や季節変動について解説する。

Keywords:

atmospheric tritium, environmental monitoring, nuclear test, nuclear facility, tritiated water vapor (HTO), tritiated hydrogen (HT), tritiated methane (CH₃T)

2.1.1 自然界のトリチウム源

地球上に存在するトリチウム (³H, 以降 T と表記) 源には、自然界で生成される天然起源と、人的な活動によって生成される人為起源とがある。天然起源のトリチウムは、主に大気上層での高エネルギー宇宙線 (中性子や陽子) と空気 (¹⁴N, ¹⁶O) との核反応、核粉碎反応により生成されると考えられている [1-3]。宇宙線によるトリチウム生成率は、およそ 0.20 atom/cm²/sec と推定されており [4, 5]、地球上の表面積を 5.1 × 10¹⁴ m² とすると、トリチウムの年間生成量は約 72 PBq (P = 10¹⁵) となる。地球全体のトリチウム保持量は、トリチウムの放射壊変 (半減期: 12.3年) による減少量とバランスしており、1~1.3 EBq (E = 10¹⁸) と推定されている [6]。これを重量に換算すると約 3 kg に相当し、将来の D-T 反応型核融合炉 1 基が保持するトリチウム量 (数 kg) に匹敵する。また、⁶Li(n, α)T 反応や、ウランなどの自発核分裂からトリチウムが生成されるが、生成量は 10⁻⁶ atom/cm²/sec 以下であり [7]、環境トリチウムへの影響は無視できる。

一方、核兵器開発や平和利用を目的とした原子力技術開発においても、トリチウムが生成されている。人工的なトリチウムは、核実験の際の生成物として、また原子力関連施設内で副次的に生成され、大気環境中に放出されている。現在、自然環境中に存在するトリチウムの大部分は、1945年~1980年に行われた大気圏内核実験、特に水爆実験の結果として地球上に拡散したものである。その総量は 186 EBq と推定されている [6]。

原子力発電所や再処理工場でも副次的にトリチウムが発

生するため、気体状のトリチウムは管理基準を満たしたのち、排出ガスとして施設から放出されている。1995年から1997年までの3年間に、全世界の原子炉施設および再処理工場から気体として放出されたトリチウムの総量は、およそ 43 PBq と推定されている [6]。1年平均に換算すると 14 PBq となり、宇宙線によるトリチウム年間生成量の 1/5 に相当する。

2.1.2 大気中トリチウム濃度の経年変化

宇宙線により大気上層に生成されたトリチウムは、一部は酸化されて水状トリチウム (HTO) となり、成層圏から対流圏に入って、大気/水循環に取り込まれる。同様に、核実験に由来するトリチウムも、実験直後に一時的に大きな値を示すが、その後は大気/水循環系に取り込まれ大気環境中を拡散する。

大気中トリチウムは、主に水蒸気 (HTO)、水素 (HT) および炭化水素 (主に CH₃T) の化学形で存在している。図 1 に大気中トリチウム濃度の経年変化を化学形態別に示す [8]。本格的な核実験が開始される前の1950年代初頭は、HT濃度で 1 mBq/m³ 以下であった。しかし、大気圏内核実験が開始されると、HT濃度は指数関数的に増加し、1960年代初頭から1970年代初頭にかけては 100 mBq/m³ を超えるまでになった。その後、大気圏内で核実験が行われなくなると、1970年代半ばからはすべての化学形態でトリチウム濃度が減少している。環境中のトリチウムは、大気や海水への拡散による希釈効果と、トリチウムの放射壊変により減少すると考えられている。Mason らは、1968

2. Recent Status and Distribution of Environmental Tritium

2.1 History of Atmospheric Tritium Concentrations and Measurement of Tritiated Water Vapor, Hydrogen and Methane Gases

UDA Tatsuhiko and TANAKA Masahiro

authors' e-mail: uda.tatsuhiko@nifs.ac.jp, tanaka.masahiro@nifs.ac.jp

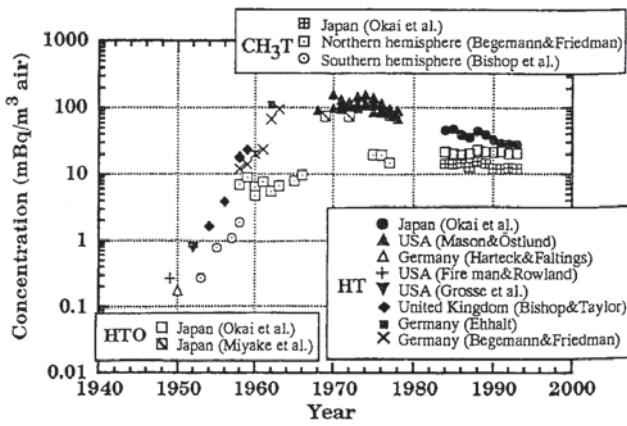


図1 化学形態別に示した大気中トリチウム濃度の変遷[8].

年から1978年にかけて測定したHT濃度の変動から、放射壊変を考慮したHTの滞留時間を4.8年と推定した[9]。また、岡井らは、1984年から福岡で大気中トリチウム濃度測定を開始し、HTの滞留時間を6.5年(1988年~1992年)、10年(1988年~1995年)と見積もった[10]。1970年代と比較してHTの滞留時間が長くなっており、何らかのHT放出源による影響を示唆した。表1に岡井らが測定した化学形態別の比放射能を示す。HTと比較してHTやCH₃Tの比放射能が、3~4桁大きい値を示している。この要因として、環境中での化学形態間の転換反応速度が遅いこと、化学形態毎の発生源が異なることを挙げている。

気体状トリチウム放出源について、Happellらは、原子力関連施設から環境に放出されたトリチウム総量[6]と、大気中HT濃度の観測結果から推算した大気環境中トリチウム総量との比較から、近年のHT放出源が原子力関連施設である可能性を示唆している[11]。

2.1.3 化学形態別トリチウムの測定方法と近年の測定結果

大気中トリチウムの化学形態を弁別して測定を行うため、図2に示すような化学形態別トリチウム捕集装置が考

表1 トリチウム濃度と比放射能の年平均値の範囲[10]。測定期間：1984年~1995年。

Species	Concentration, mBq/m ³	Specific activity, TU
HTO	18.7-23.3	14.6-16.7
HT	27.5-48.5	5.5 · 10 ⁵ -1.0 · 10 ⁶
CH ₃ T	11.6-15.6	3.2 · 10 ⁴ -4.5 · 10 ⁴

案された[9, 10, 12, 13]。装置を構成する各機器は直列に接続され、ポンプで試料空気を吸引して化学形態別にトリチウムを捕集する。この装置では、始めに冷却凝縮器と吸湿材を用いて大気中の水分(H₂O)を捕集する。吸湿剤には、シリカゲルやモレキュラーシーブスが用いられる。次に、水素成分(HT)を触媒で酸化して水(H₂O)の化学形態に転換したのち吸湿材で捕集する。大気中の水素の存在比は0.5 ppm程度ときわめて微量のため、無トリチウム水を電気分解して得られる水素ガスを担体として触媒前段に添加し、放射能測定に必要な水分量を確保する。最後に、メタン成分(CH₃T)を300℃以上に加熱した触媒で酸化し、吸湿材で捕集する。大気中のメタンの存在比も1.7 ppm程度と僅かであるため、トリチウムを含まないメタンガスを担体として触媒前段に添加して、測定に必要な水分量を確保する。捕集した各試料水を吸湿材から回収し、環境試料測定に適した低バックグランド型液体シンチレーション計数装置でトリチウムを定量し、大気中トリチウム濃度に

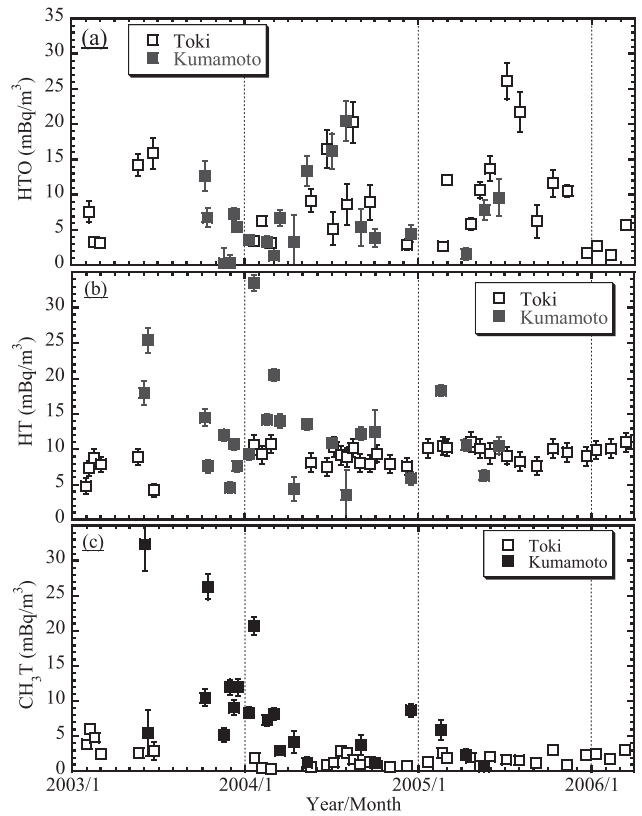


図3 熊本[12]と土岐[13]における大気中トリチウム濃度の変動測定期間：2003年1月~2006年3月、(a)HTO、(b)HT、(c)CH₃T。

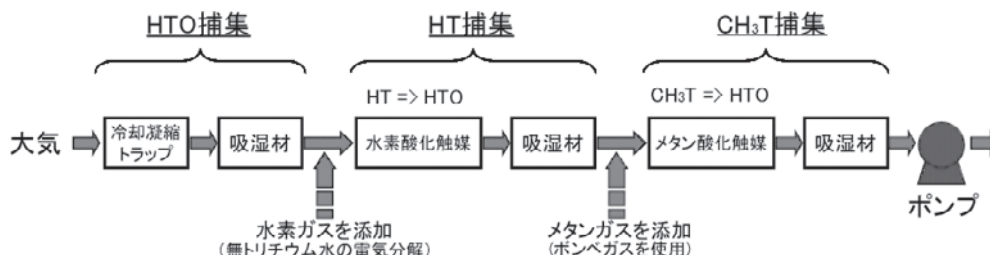


図2 化学形態別大気中トリチウム捕集装置のフロー図。

換算する。

図3に、2003年から2006年にかけて熊本市[12]と土岐市[13]で測定した化学形態別トリチウム濃度を示す。熊本市は海洋近くに位置し、土岐市は山に囲まれた内陸に位置するが、図3に示した測定期間では地理的な特長は見られない。また、日本国内の複数の機関で測定したHTO濃度の比較でも、違いが見られていない[13]。これは日本が周囲を海に囲まれた面積も広くない島国であり、緯度の違いも小さいことから、地域差が見られないと考えられている。一方で、中国内陸部の環境水中トリチウム濃度は、海洋周辺と比較して高い値を示すことが知られている[14]。海洋周辺が低くなるのは、トリチウム濃度が低い海水蒸気を含む海洋性気団により、希釈されるためと考えられている。

図3(a)に示す水蒸気成分(HTO)は、大気中に含まれる水分量と相関があり、気象の影響を受けて季節変動を示すことが知られている。すなわち、夏季は気温が高く、水分を多く含む海洋性気団に覆われるため、大気中水分量が多くなり、大気1m³あたりのトリチウム濃度(mBq/m³)が高くなる。また、冬季は気温が低く、乾燥した大陸性気団に覆われるため水分量が少なく、大気中トリチウム濃度は低い。図3(b)と図3(c)に示す水素(HT)およびメタン(CH₃T)成分に、明確な季節変動は見られない。全般的にトリチウム濃度レベルが低くなっていることも、季節的な傾向を見ることを困難にしている。特に、メタン成分は、トリチウム濃度が減少しており、従来の手法では測定が困難になりつつある。

2.1.4 おわりに

近年、核実験に由来する人工的なトリチウムの影響が少なくなっている。しかし一方で、地球温暖化対策として新しい原子力関連施設が増設され、大量のトリチウムを使用する国際熱核融合実験炉(ITER)の建設も進みつつある。

このような現状を鑑みると、今後も継続して大気中トリチウム濃度の変動を監視することは、核融合炉を含む原子力関連施設による環境影響を評価する上でますます重要になるであろう。

本研究の一部は、核融合科学研究所研究予算 NIFS06 UCSS004および NIFS04KOBS008の支援を受けた。

参考文献

- [1] W.F. Libby, Phys. Rev. **69**, 671 (1946).
- [2] S. Kaufman and W.F. Libby, Phys. Rev. **93**, 1337 (1954).
- [3] L.A. Currie, W.F. Libby and R.L. Wolfgang, Phys. Rev. **101**, 1557 (1956).
- [4] B.J. Teegarden, J. Geophys. Res. **72**, 4863 (1967).
- [5] D. Lal and H.E. Suess, Ann. Rev. Nucl. Sci. **18**, 407 (1968).
- [6] United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation (UNSCEAR 2000 report); Sources and Effects of Ionizing Radiation, Vol. 1, New York, (2000).
- [7] D.G. Jacobs, Report TID-24635, U.S. Atomic Energy Commission, Washington, (1968).
- [8] 一政祐輔他：日本原子力学会誌 **39**, 914 (1997).
- [9] A.S. Mason and H.G. Östlund, IAEA/STI/PUB 498, IAEA, Vienna, (1979).
- [10] T. Okai, N. Momoshima and Y. Takashima, J. Radioanal. Nucl. Chem. **239**, 527 (1999).
- [11] J.D. Happell, G. Östlund and A.S. Mason, Tellus **56B**, 183 (2004).
- [12] N. Momoshima, T. Yamaguchi, T. Toyoshima, Y. Nagao, M. Takahashi, M. Takamura and Y. Nakamura, J. Nucl. Radiochem. Sci. **8**, 117 (2007).
- [13] T. Uda, M. Tanaka, T. Sugiyama, T. Yamaguchi and N. Momoshima, Fusion, Sci. Technol. **54**, 281 (2008).
- [14] N. Matsuoka, E. Hirai, H. Tagomori, N. Momoshima and Y. Takashima, Sci. Total Environ. **145**, 197 (1994).