



講座 トリチウム実験入門

2. 何に気をつけて実験すべきか？ 放射性物質・水素同位体としてのトリチウムの特性

2. Important Points in Safe Handling of Tritium Compounds. Characteristics of Tritium in View from Hydrogen Isotopes or Radio Isotopes

原 正憲

HARA Masanori

富山大学 学術研究部理学系

(原稿受付：2020年5月1日)

トリチウムの量は放射性核種としてはBqの単位、水素同位体としてみるのであればmolの単位あるいは分子数で議論される。この二つの観点からの数字を実感することは、安全な実験計画、取り扱いにつながる。そこで、この二つの側面から、化学物質としてのトリチウム、トリチウムによる被ばくについて簡略化した仮想的な系で述べた。併せて、トリチウムを使用する際に有用と思われる数値をまとめた。

Keywords:

tritium, hydrogen isotope, range, isotope exchange, internal dose

2.1 はじめに

トリチウムは放射性の水素同位体であり、 ${}^3\text{H}$ または T で表記される。トリチウムの壊変は



で表され、半減期は 12.312 年 (4497日) である [1]。放出される電子の運動エネルギーはゼロから 18.564 keV であり、その平均エネルギーは 5.68 keV である [1]。

トリチウムを用いる実験を行う際には、トリチウムの水素としての化学的性質、放射性核種としての性質、作業環境を考慮して計画を立てる。この際、トリチウムの放射能と実際の物理量の関係が重要となる。そこで、トリチウムに対する量の感覚を知るために、種々のトリチウムに関する量を表 1 にまとめた。

表 1 を見ながら実感できる量と比較を行っていく。この表を作成するにあたり、最初に半減期を用いて壊変定数を求める。壊変の速さは

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2)$$

で表される。ここで N はトリチウムの原子数、 λ は壊変定数である。単位時間 (dt) でのトリチウムの壊変の数 (dN) より、放射能は $A = dN/dt$ となる。求めた壊変定数を用いることにより、当初の放射能が A_0 であった試料のある時間 (t) 経過後の放射能 (A) は以下の式より求めることができる。

$$A = A_0 \exp(-\lambda t) \quad (3)$$

トリチウムの放射能と分子数についてみる。式 (2) より、1 Bq に対応するトリチウムの原子数が 560.5×10^6 と求められる。1 TBq (27 Ci) のモル数は HT または DT で 9.31×10^{-4} mol であり、そのガス体積は 298.15 K, 1 bar の下で $23.1 \text{ cm}^3 \cdot \text{bar}/\text{TBq}$ である。より実用的な量として 1 GBq の HT, DT ガスでは、 $2310 \text{ Pa} \cdot \text{cm}^3/\text{GBq}$ であり、100 Pa の圧力で 23.1 cm^3 となる。1 GBq の HT, DT のガス量は実験で使用するには少量であるため、通常は水素同位体ガスで希釈し、ガス量を増やして使用する。

トリチウム水を用いる実験では、1 MBq/cm³ 以下のトリチウム濃度で扱う場合が多い。高濃度のトリチウム水は被ばくの問題、放射線による自己分解等があり、特段の理由がない限り使用しない。ここで、1 MBq/cm³ のトリチウム水の化学的性質が通常の水と変わらないことを確認する。1 MBq の HTO のモル数は $9.31 \times 10^{-10} \text{ mol}_{\text{HTO}}/\text{MBq}$ であり、1 cm³ の水のモル数は $55.5 \times 10^{-3} \text{ mol}_{\text{H}_2\text{O}}/\text{cm}^3$ である。その分子数比は $\text{HTO}/\text{H}_2\text{O} = 1.68 \times 10^{-8}$ となる。1 MBq/cm³ のトリチウム水では、HTO の数は H₂O の 6 千万分の 1 であり、実質上、通常の水と変わることはない。

次に、トリチウムから放出される β 線についてみる。トリチウムから放出される β 線の最大運動エネルギーは他核種の β 線の最大運動エネルギーと比較して小さく、物質中での飛程も短い。このため、トリチウムからの β 線の測定は難しい。様々な物質中でのトリチウムの β 線の飛程を検討する。トリチウムの β 線の運動エネルギーは連続であるが、ここでは 10 keV の単一エネルギーの電子線を考える。10 keV 以上の電子線の飛程は Web 上の

表1 トリチウムに関連する実用的な値.

	数値	文献		数値	文献
原子質量		[2]	放射壊変に伴う発熱量		---
^1_0n	$1008664.9232 \pm 0.0022 \mu\text{u}$		1 TBq 当たり	$9.10 \times 10^{-4} \text{ W/TBq}$	
^1_1H (H)	$1007825.03214 \pm 0.00035 \mu\text{u}$		HT, 1 g 当たり	0.243 W/g	
^2_1H (D)	$2014101.77799 \pm 0.00036 \mu\text{u}$		DT, 1 g 当たり	0.194 W/g	
^3_1H (T)	$3016049.2675 \pm 0.0011 \mu\text{u}$		T ₂ , 1 g 当たり	0.324 W/g	
^3_2He	$3016029.30970 \pm 0.00086 \mu\text{u}$				
	$1 \text{ u} = 1.66053906660 \times 10^{-27} \text{ kg}$				
半減期	$12.312 \pm 0.025 \text{ 年} = 4496.9 \pm 9.1 \text{ 日}$ $1 \text{ 年} = 365.242198 \text{ 日} = 31556926 \text{ 秒}$	[1]	HTO, 1 g 当たり	48.8 mW/g	
トリチウムのβ線エネルギー		[1]	DTO, 1 g 当たり	46.5 mW/g	
最大エネルギー	$18.564 \pm 0.03 \text{ keV}$		T ₂ O, 1 g 当たり	88.7 mW/g	
平均エネルギー	$5.68 \pm 0.01 \text{ keV}$		トリチウムの放射能が 1 Bq/cm ³ の水中の HTOとH ₂ Oの 分子数比		---
壊変定数	$5.630 \times 10^{-2} \text{ 年}^{-1}$ $1.541 \times 10^{-4} \text{ 日}^{-1}$ $1.784 \times 10^{-9} \text{ 秒}^{-1}$	---	HTO/H ₂ O	1.68×10^{-14}	
			H ₂ O/HTO	59.6×10^{13}	
放射能当たりの トリチウム原子数		---	種々の物質中での 10 keVの電子の飛程 (CSDA)		[3]
1 Bq	560.5×10^6 トリチウム原子/Bq		空気 (0.001185 g/cm ³)	$2.4 \times 10^{-3} \text{ m}$	
1 GBq	560.5×10^{15} トリチウム原子/GBq		水 (1 g/cm ³)	$2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
1 TBq	560.5×10^{18} トリチウム原子/TBq		ベリリウム (1.8477 g/cm ³)	$1.6 \times 10^{-6} \text{ m}$	
水素同位体 1 mol 当たりの放射能		---	黒鉛 (1.7 g/cm ³)	$1.7 \times 10^{-6} \text{ m}$	
HT	$1.07 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{HT}}$		アルミニウム (2.698 g/cm ³)	$1.3 \times 10^{-6} \text{ m}$	
DT	$1.07 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{DT}}$		鉄 (7.874 g/cm ³)	$5.5 \times 10^{-7} \text{ m}$	
T ₂	$2.15 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{T}_2}$		銅 (8.960 g/cm ³)	$5.1 \times 10^{-7} \text{ m}$	
1 TBq 当たりのモル数		---	金 (19.320 g/cm ³)	$4.1 \times 10^{-7} \text{ m}$	
HT	$9.31 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{HT}}/\text{TBq}$		ポリエチレン (0.91 g/cm ³)	$2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
DT	$9.31 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{DT}}/\text{TBq}$		天然ゴム (0.91 g/cm ³)	$2.6 \times 10^{-6} \text{ m}$	
T ₂	$4.65 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{T}_2}/\text{TBq}$		パイレックス (2.23 g/cm ³)	$1.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
1 TBq 当たりの 標準状態 (1 bar, 298.15 K) でのガス量		---	下限数量		[4]
HT	$23.1 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		数量	$1 \times 10^9 \text{ Bq}$	
DT	$23.1 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		濃度	$1 \times 10^6 \text{ Bq/g}$	
T ₂	$11.5 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		管理区域内での 空气中濃度限度		[4]
水素同位体 1 g 当たりの放射能		---	元素状水素	$1 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$	
HT	$267.0 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{HT}}$		メタン	$1 \times 10^2 \text{ Bq/cm}^3$	
DT	$213.6 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{DT}}$		水	$8 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
T ₂	$356.2 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{T}_2}$		有機物 (メタンを除く)	$5 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
			上記を除く化合物	$7 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
HTO	$53.6 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{HTO}}$				
DTO	$51.1 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{DTO}}$				
T ₂ O	$97.5 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{T}_2\text{O}}$				

ESTARにより得ることができる[3]。ここでは、飛程として連続減速近似 (Continuous Slowing Down Approximation, CSDA) [5, 6]のものを使用する。この近似において、粒子は連続して運動エネルギーを失い停止するとしており、飛程は減速過程での移動距離となる。ESTARで得られた空気中 (密度 0.001185 g/cm^3 , 1気圧, 298 K) の飛程は、 $2.4 \times 10^{-3} \text{ m}$ である。水中での飛程は約1000分の1の $2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$ であり、空気に比べ密度が約1000倍であることを反映している。固体物質中の飛程は、有機物質あるいは軽元素では約 $2 \times 10^{-6} \text{ m}$, 金属元素では $5 \times 10^{-7} \text{ m}$ である。ESTARで20 keVの電子線の飛程もみることにより

トリチウムのβ線の飛程がいかに短いかわかる。トリチウムの壊変に伴う放出エネルギーを求めると、1 TBqのトリチウムでは $9.10 \times 10^{-4} \text{ W/TBq}$ となる。また、単位重量当たりの放出エネルギーを表1に示す。

ここまで、いくつかの数値が出てきたが、特に覚えておくと便利な数値は、半減期 ≒ 4500日, 平均エネルギー ≒ 5.7 keV, 1 GBqのトリチウム (HT, DT) のガス量 = $2.3 \text{ L} \cdot \text{Pa}$ である。

2.2 化学物質としてのトリチウム

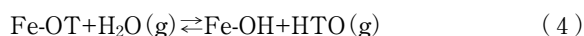
トリチウムは水素同位体であるので、水素としての化学

的性質を持っている。条件がそろえばHT, DT, T₂は、爆発的に酸素と反応する。水素を含む物質中の水素とも交換する(同位体交換反応)。様々な物質へ溶け込むことができ、物質中を拡散、透過する。

表1で見たように放射能当たりのトリチウム原子数は少ない。1 GBqのトリチウムガス(HT, DT)のガス量は2.3 L・Paである。トリチウムガスを使うラインから1秒間に1 kBqのトリチウムが漏洩するとき、その際のトリチウムの外部へのリークレートは $2.3 \times 10^{-6} \text{ L} \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{-1} = 2.3 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{-1}$ となる。

次にどれほどのトリチウムが容器表面に吸着するか検討してみる。ここでは、計算を簡単にするために内容積1 L(10 cm×10 cm×10 cm)の鉄製の容器を考える。表面粗さは考えずに、容器の表面は体心立方構造の(110)面で構成されているとする。鉄1原子が占める面積は $\sqrt{2}(0.287 \times 10^{-9})^2/2 = 5.8 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ となる。よって、容器の内表面に現れている鉄原子の数は 1.7×10^{16} となる。この鉄原子は水酸基(-OH)と結合しているとする。さらに、水酸基の水素が全てトリチウムで置換されていると仮定すると、そのトリチウムの量は $1.7 \times 10^{16}/(560.5 \times 10^6) = 3.0 \times 10^7 \text{ Bq}$ (=30 MBq)となる。このトリチウムがすべてHTOで脱離した際のガス量は $69.3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}^3$ となる。また、表面のトリチウム密度は 50 kBq/cm^2 と見積もられる。このようにトリチウムを放射能の観点から見ると、材料表面に多くのトリチウムが吸着できることがわかる。

次に、この鉄製の容器の表面の水酸基がトリチウムで置換されているところへ、298 Kで1 kPaの水蒸気を含む空気を1 bar(100 kPa)導入するとする。この時、どのようなことが起こるか考えてみる。水蒸気の導入により鉄表面のFe-OTとH₂Oの同位体交換反応が起こる。



簡単のため同位体効果を考えないとすれば、この平衡反応は水素とトリチウムの入れ替えなので、系内のトリチウムから見ると、導入されたH₂O(g)による希釈と考えることができる。つまり、平衡達成後は、鉄表面上の[T]/[H]比と気相中の[T]/[H]比は等しくなる。交換反応前の鉄表面に存在するトリチウムの原子数は 1.7×10^{16} である。導入した空気中の水分子の数は 2.4×10^{20} で、そこに含まれる水素原子は 4.8×10^{20} である。当初、表面上のトリチウム濃度は100%であったのが、平衡到達後は $3.5 \times 10^{-3}\%$ となる。平衡到達後に鉄表面に残存するトリチウムの原子数は 6.0×10^{11} で、このトリチウムの原子数は1 kBqに対応する。また、表面のトリチウム密度は 1.7 Bq/cm^2 となる。水蒸気を含むガスの導入は、効率的なトリチウムの除染技術であることが分かる。一方、トリチウムを使用していた配管を保守のため大気開放を行うと、多くのトリチウムが気相中に放出されることとなる。トリチウムを使用していた配管の開放作業は、この点に注意して作業計画を立てる必要がある。

気相中へ放出されたトリチウムの回収は、一般的に酸化-吸着法(湿式法)で行われる。この方法は、トリチウムを含む全ての分子(HT, CH₃T, 有機物)を触媒により燃

焼させ、水素同位体を水の化学形へと変換し、この水を乾燥材で回収する方法である。酸素分圧の低い気相中からのトリチウム回収では、触媒として酸化銅を利用する。酸化-吸着法は、広く利用されており、大気中からトリチウムを回収する方法として信頼性が高い。しかし、生体への影響が大きいトリチウム水を積極的に生成する回収方法である。

2.3 トリチウムによる被ばく

トリチウムのβ線(18.6 keVの電子線)の飛程をESTAR[3]のデータより内挿して求めると、空気中で7.3 mm程度である。これは、トリチウムから体が10 mm以上離れていれば、トリチウムのβ線による被ばくが起らないことを意味している。さらに、有機物質中のトリチウムのβ線の飛程は7.5 μm程度であり、人間の表皮の厚さ20 μmに比べ飛程は十分短い。よって、トリチウムの取り扱いにおいて外部被ばくは無視できる。一方、トリチウムを体内に取り込んでしまった際の内部被ばくは無視できない。表1に示すように管理区域内での空気中濃度限度は、トリチウムの化学形により異なる。この管理区域内での空気中濃度限度は被ばくの観点より決められており、濃度限度が低いトリチウム化合物ほど生体への影響が大きいことを示している。元素状水素(HT, DT, T₂)では $1 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$ であるのに対し、水の化学形では 0.8 Bq/cm^3 と12500分の1である。言い換えると、被ばくの観点からはトリチウム水1 Bqの飛散は、12500 Bqの元素状トリチウムの飛散と同等であることを示す。取り扱うトリチウムの化学形に応じて被ばく管理を行う必要がある。

トリチウムを体内に取り込む経路として、吸入、経口摂取、吸収の3つが主となる。吸入は作業環境中の大気に含まれるトリチウムを呼吸により取り込む経路であり、この軽減には作業環境の換気、フード等の利用による希釈と隔離が有効である。これらは、いずれもハードウェアにより達成できる。経口摂取は、呼吸以外の口を介した体内への取り込みであり、飲食、口周辺へのトリチウムの付着などが原因である。管理区域では飲食は禁止されているので、通常の使用状況では起こりえない。口周辺へのトリチウムの付着による取り込みは、実験者の無意識の動作、癖などにより起こりえる。例えば、トリチウム実験中にゴム手袋をしたまま口周辺に触ることが挙げられる。これは、教育、作業訓練を通して軽減できるものである。吸収で問題となるのは、主に皮膚からのトリチウム水の吸収である。

体内にトリチウム(主にトリチウム水)が取り込まれると、2時間ほどで体内のトリチウム濃度が均一となる。このため、取り込みが疑われたときは、取り込みの可能性がある作業を終えた後、2時間ほど待って試料の採取を行う。取り込まれたトリチウムは、時間とともに体外へ排出される。この排出の速さは人により差があるものの、10日間ほどで取り込まれたトリチウムの半分は排出される。すなわち、トリチウム水として取り込んだ場合のトリチウムの生物学的半減期は約10日間である。

2.4 まとめ

トリチウムは水素同位体であり、水素としての性質を持つ、 β 壊変を起こす放射性同位体である。また、放出される β 線の運動エネルギーが平均で5.68 keVしかなく測定の難しい放射性同位体である。被ばくの影響はトリチウムの化学形により異なり、実験中の化学形の変化にも気を配る必要がある。初めての実験で、これらに配慮してすべての実験計画を立てるのは困難である。

トリチウム使用施設の職員に積極的に相談をしてほしい。

参考文献

[1] M. -M. Bé *et al.*, Table of radionuclides (Vol 3- A = 3-244),

Monographie BIPM-5 (Bureau International des Poids et Mesures 2006).

https://www.bipm.org/utis/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol3.pdf


[2] G. Audi and A.H. Wapstra, Nucl. Phys. A **595**, 409 (1995).

[3] M.J. Berger *et al.*, *Stopping-Power & Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions*, NIST Standard Reference Database 124 (Physical measurement laboratory, 2017). DOI:<https://dx.doi.org/10.18434/T4NC7P>

[4] 放射線を放出する同位元素の数量等を定める件，2000（平成12）年10月23日，科学技術庁告示第5号。

[5] 飯田孝夫：保健物理 **33**, 345 (1998).

[6] H. Nikjoo *et al.*, *Interaction of radiation with matter* (CRC press, 2012).



はら まさ のり
原 正 憲

富山大学 学術研究部理学系 准教授。トリチウムの貯蔵と供給，トリチウムの安全取扱，トリチウムの測定などの研究を水素同位体科学研究センターで行っております。