

## 小特集

核融合炉内外におけるトリチウムのメンテナンスと廃棄物処理

# 7. 作業環境中におけるトリチウムの動態

福井正美  
(京都大学原子炉実験所)

Behavior of Tritium in the Working Environment

FUKUI Masami

Research Reactor Institute, Kyoto University, Osaka 590 0494, Japan

(Received 30 June 2000)

### Abstract

The distributions and behavior of tritium in the working environment have been rarely reported so far. This paper describes tritium kinetics related to the leakage of heavy water in the containment building of the Kyoto University Research Reactor (KURR) which supports two major sources of tritium: a D<sub>2</sub>O (heavy water) facility and a Cold Neutron Source (CNS) facility (liquid deuterium). Mathematical models were developed to predict both the changes in HTO concentrations in water pools and the emission of HTO soaked in the concrete material during the leakage event from the D<sub>2</sub>O facility. After the remediation of the HTO contamination the cause of recent ingrowth of HTO concentration in the building air during venting cessation may be attributable due to the fact that the higher HTO concentration in condensates of than  $2 \times 10^5$  Bq/cm<sup>3</sup> was found in the CNS exhaust stream, though the specific activities in condensates in the stack air is less than 1 Bq/cm<sup>3</sup> during venting operation.

### Keywords:

tritium, heavy water, cold neutron source, modeling, distribution, HTO exchange, research reactor, exhaust stream, containment building

## 7.1 はじめに

地球環境におけるトリチウムの主な発生源は、核融合炉がエネルギー源としてまだ実用化されていない現在、(1)宇宙線との核反応、(2)核実験、(3)原子力発電および、(4)核燃料再処理、である。UNSCEAR 報告によれば、大気中で(1)の反応により窒素および酸素から生成されるトリチウムは99%が酸化態トリチウム(HTO)や有機物との結合状態となり、その賦存量は  $1.3 \times 10^6$  TBq (生成率:  $3.7 \times 10^4$  TBq/y [1])、地球上での分布量比率(%)は、6.8(成層圏)、0.4(対流圏)、27(陸上生態圏)、35(海洋混合層)、30(海洋深層 [2])と報告されている。核実験開始以前の濃度は陸水で  $0.2 \sim 0.9$  mBq/cm<sup>3</sup>、海洋水

author's e-mail: fukuim@rri.kyoto-u.ac.jp

で  $0.1$  mBq/cm<sup>3</sup> 程度であり[3]、人体組織中トリチウムの比放射能が陸水の代表値  $0.4$  mBq/cm<sup>3</sup> に等しいとすれば、すべての組織の年間吸収線量は  $10^{-2}$  μGy オーダとなる[4]。全核実験によるトリチウムの生成量は  $2.4 \times 10^8$  TBq (Fission:  $5.7 \times 10^3$  TBq, Fusion:  $2.4 \times 10^8$  TBq)、その分布量比率は80%(北半球)および20%(南半球)と推定されており、それによる実効線量当量預託はそれぞれ51(北半球, Inhalation: 4, Ingestion: 47)および14(南半球, Inhalation: 1, Ingestion: 13) μSv と評価されている[5]。また、これらを人口により重みづけし、地球人口を  $4 \times 10^9$  人とした集団実効線量当量預託は  $1.9 \times 10^5$  man-Sv となるが、UNSCEAR 1988年報告では単位

放出量あたりの規格集団実効線量当量預託は、人口増を考慮して  $3.2 \times 10^{-5}$  man-Sv/TBq と再評価している。

以上のような地球規模からトリチウムの環境への放出量を考えれば、単一施設からの放出寄与は微々たるものであるが、"As Low As Reasonably Achievable" (ALARA) の観点および作業員および周辺公衆に対しても無駄な被曝の低減策を講じるうえで、放出源近傍における作業環境でのトリチウム動態を究明することは有意義である。しかしながら従来、放出後の野外環境での研究は多く報告されているものの、実際の作業環境でのトリチウム動態に関する情報は皆無である。そこで、ここでは重水施設や冷中性子設備を有する研究炉(KURR)について、過去に実施してきた炉室建家内でのトリチウム、とりわけその形態中では最も生体への影響の大きいHTOの挙動について述べる。

## 7.2 KURR からのトリチウムの発生源と排気経路

KURR (京都大学原子炉実験所, Fig. 1 参照)における主なトリチウムは、(1)KURR 一次系の軽水に含まれる天然の重水、(2)KURR の炉心近傍に炉の設置と同時に装備されている減速材としての重水(約  $2 \text{ m}^3$ )、および(3)1986年に設置された冷中性子設備(Cold Neutron Source: CNS)に装備された液体重水素(約  $4 \text{ L}$ )などと中性子との  $(n, \gamma)$  反応により生成されるものである。Fig. 1 に示すように上記(1)のソースは炉頂からスイープ(Sp)ガス( $2.5 \text{ m}^3/\text{min}$ )として炉水の蒸発分がスタックから排気されるが、通常、一次系のHTO水濃度は  $20 \text{ Bq}/\text{cm}^3$  程度以下であり、この経路のHTO放出率は高々  $20 \text{ MBq}/\text{月}$  と少ない。(2)のHTOは当初、(1)と同様に重水タンク近傍の空気はスイープ(Sp)ガスとしてスタックへ排気されていたが、1996年に重水タンクが更新されてからは $^{41}\text{Ar}$ 減衰タンク( $560 \text{ L}$ )を装備した独立の排気経路が設けられ、これを經由してスタックへ排気されている。(3)のCNSに関連するトリチウム(HTおよびHTOの混合物)は、(2)と同様に1986年以降、設置された減衰タンク(1997年に  $1.0 \text{ m}^3$  から  $1.3 \text{ m}^3$  のタンクへ更新)を經由する排気経路から排気されている。したがって、スタックへの排気は上述した3経路と格納容器である炉室作業場の換気( $350 \text{ m}^3/\text{min}$ )の計4経路である。炉室地下のスタック煙道に排気されるこれらのトリチウムはさらにその下流においてホットラボおよびホットケープ等の実験室システムの排気により混合・希釈され、電離箱により連続モニタリングされた後、スタックから排気される。ただし(2)、(3)の経路では、トリチウムが容器により隔離されている

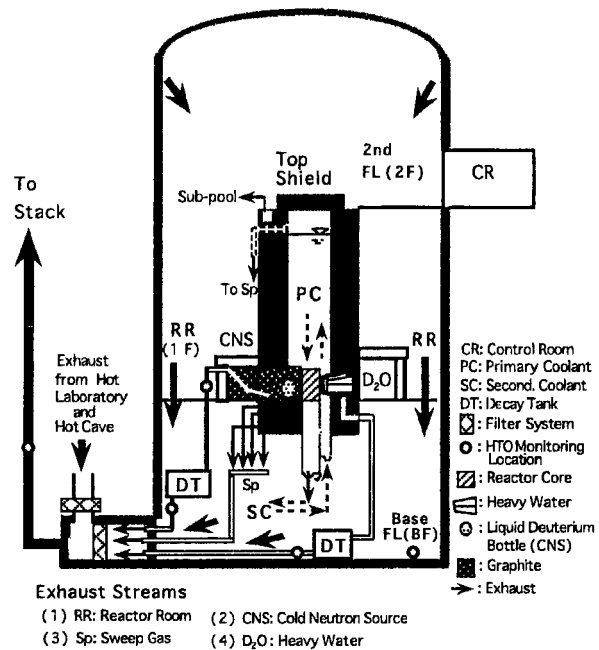


Fig. 1 Cross-section of KURR containment building.

ため、オーバーホールのための解体、隔離容器内圧力調整作業および不測の漏洩事態が生じない限り、トリチウムの放出は無視できるはずである。そこで次章では1987年に(2)の経路で漏洩した重水に関するHTO汚染について動態と関連させて述べる。

## 7.3 重水漏洩に伴う KURR 炉室内の HTO 汚染

### 7.3.1 汚染の発現と問題点

KURRでは炉室およびスタックにプラスチックシンチレータおよび電離箱式モニタが設置されている。これらは通常放出される $^{41}\text{Ar}$ に比べてトリチウムに対する検出感度が低いため、放射線管理部により春、秋季の炉稼働時にスタック排気凝縮水中のHTO測定が実施されている。1987年の秋季測定では通常よりも高い排気濃度が検出されたが、排気口核種別濃度測定担当者がこの原因をHTOをトレーサとして扱う研究に用いた器具の汚染とみなした。半年後の1988年春季の定期モニタリング時には、冷却系統ポンプ改修のために炉の運転が数ヶ月以上停止されたため測定は実施されなかった。以上の経過では、2回のモニタリングデータの欠如が汚染の検知を遅らせた。しかしながら1988年6~7月の炉の非運転時には排気濃度が再測定され、通常よりも高い濃度が確認された。また重水タンク周辺のスマヤ試験および移動式電離箱による空気モニタリングの調査が放射線管理部によ

り実施され、タンクの汚染が確認された。このような調査の契機は、炉室内における一次冷却水等のプール水中濃度が上昇したためである。毎月1回、研究炉部により行われているこの水中放射能測定結果は、1987年5月頃から上昇傾向を示しており、3ヶ月後の8月には炉頂にあるサブプール水(1.7 m<sup>3</sup>)が交換されている。当初、この水中HTO濃度上昇原因を、主に水中のLiなどの不純物と推定した水質検査では、プール水濃度上昇の原因が究明されなかった。このような水濃度上昇モニタリング結果は、1988年の夏期に一般に知られることとなった。この夏期までに要した約一年間が調査期間としては一つの問題となる。すなわち水濃度上昇初期におけるHTO動態に関する管理者の認識、研究炉部と放射線管理部との間の情報交換、ルーチン業務以外の汚染検出時期における管理部の調査態勢の未確立と管理システムの硬直化、研究と管理体制の混在、重水タンク修復作業過程での過度な管理濃度規制による作業の非効率性など、再検討されるべき事柄が多い。

1988年9月から1990年3月までに以下のような問題について調査研究を実施した。

- (1) 約1.7 m<sup>3</sup> (サブプール) や 30 m<sup>3</sup> (一次冷却水) もある炉室内のプール水濃度の上昇を重水の漏洩と関連づけて合理的に実証すること、
- (2) 炉室空気中におけるHTO分布の評価、
- (3) 換気システムによる空気中濃度変動の解明、
- (4) 重水タンクに隣接する黒鉛層へのHTO吸収量の推定と実測、
- (5) 重水漏洩部の究明に関連する濃度測定、
- (6) 漏洩検知以前の作業場所(熱交換器室)における空気中平均濃度のモデルを用いた評価、
- (7) 炉室内におけるHTO源の存在と空気中濃度の相関、
- (8) HTO源の撤去後におけるプール水濃度減少の予測と実証および空気中濃度の長期モニタリング、
- (9) 炉室コンクリート壁へのHTO吸着現象の明確化と吸収量評価、
- (10) 放射性廃水系統に廃棄されたHTOを用いた敷地内の貯留池での拡散状況調査。

次項ではこれらの調査うち、炉室内トリチウム動態の概要について述べる。

### 7.3.2 炉室におけるトリチウムの挙動

HTO漏洩が確認された1988年8月下旬からの数ヶ月間は、放射線管理部排気口核種別測定担当者により、氷を用いた冷却凝縮水によるスタック排気中濃度が測定された。この結果、炉室換気中でもその濃度は1.1~13 kBq

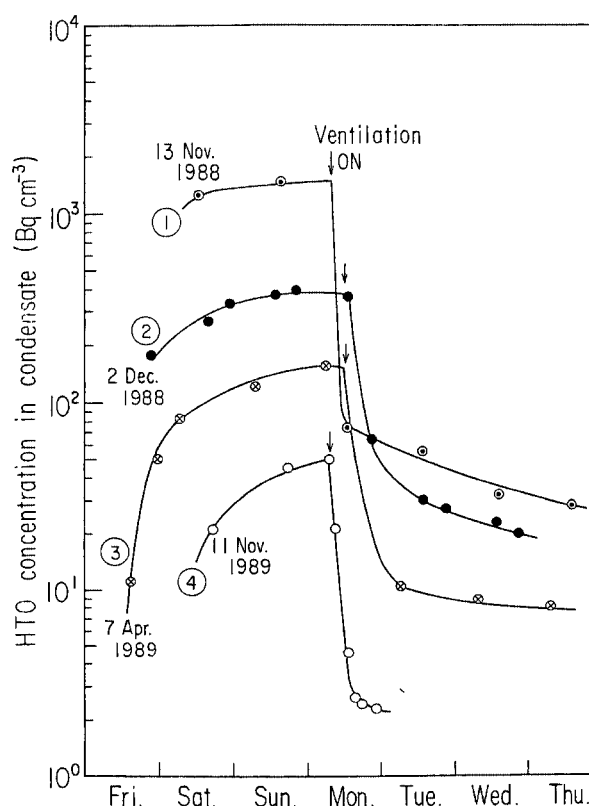


Fig. 2 Changes in HTO concentration in condensate from the containment building air as a result of venting cessation followed by resumption for periods of less than 1 week.

/m<sup>3</sup> airと大きく変動することが報告された。そこで後述するようなシャーレにトレーサとして数十cm<sup>3</sup>のHTO水を添加した気-液相間のHTO移行実験とモデル化[6]により、Fig. 1に示すサブプールおよび一次冷却水の濃度上昇が空気から経由したことを実証したあと、11月中旬からスタックよりも放出源に近い炉室にモニタリング場所の重点を移し、除湿器を用いてモニタリング頻度を高めるとともに、濃度変動のより詳しい検討を開始した。

以下では空気中の温湿度がすべてのサンプリング時期について把握されていないため、HTOを凝縮水単位容積(cm<sup>3</sup>)あたりの濃度として表す。

炉室の換気は炉が運転される週には通常、火曜日から金曜日まで連続に行われる。そこで初めに換気の作動条件に伴い変動する濃度を検討した。Fig. 2にはこのような1週間の換気の停止・作動によるHTO漏洩後の炉室内空気凝縮水中HTO濃度の変化を示した。

1988年11月13日の週は、汚染源の重水(2 m<sup>3</sup>)をタンクから約10本のドラムカンに移送・隔離(11月17~18日)

する以前であり、主な発生源が重水設備内に存在していたため、換気停止時の空气中凝縮水濃度はほぼ  $1.5 \times 10^3$  Bq/cm<sup>3</sup> と高くなっている。換気を作動した直後には炉室1階の換気率が1時間あたり2回程度であるため濃度は大きく減少する。12月2日の週は、11月13日の週に比べて換気停止時の最高濃度が1/4程度に減少していることがわかる。これは重水が移送・隔離されたためである。しかしながら主な発生源が隔離されたにもかかわらず換気停止時に炉室内濃度が再度上昇し、移送した重水以外にも炉室内に発生源のあることが推定された。1989年4月7日の週に濃度が低下した原因は、2~3月にかけて重水タンクに隣接していた黒鉛層に吸収されたHTOを除去する作業が実施されたためである。これにより飽和濃度は12月2日の週の約1/3となったが、その濃度はまだ  $1.5 \times 10^2$  Bq/cm<sup>3</sup> と高い。

このように炉室内空気凝縮水中HTO濃度は、炉室格納庫に使用されているコンクリート建材から逸出するラドンの挙動と類似した、換気条件とともに変動する濃度パターンを示すとともに、汚染源の存在・除去を換気停止時の飽和濃度によりよく反映している。残存する飽和濃度 ( $1.5 \times 10^2$  Bq/cm<sup>3</sup>) から、第3の発生源の存在はコンクリートに浸透したHTOであると推定した。この濃度は前述した換気パターンの継続により、7ヶ月後の1989年11月11日の週に1/2 ( $7.5 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>) に減少する程度の緩慢なものであった (Fig. 2)。1990年3月末日にこの空气中凝縮水の飽和濃度は  $5.0 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>、数日換気した場合は数 Bq/cm<sup>3</sup> のオーダーに減少し、ほぼ原状に回復したとみなされる。

この不測の事態により、重水設備に装荷されている重水の約0.1% (0.34 TBq) が漏洩した。そのうち回収率は18%であり、このうち3/4は重水タンクに隣接して設置されている黒鉛層に吸収されたHTOであった[7]。

### 7.3.3 プール水中へのトリチウム移行

約30 m<sup>3</sup>の一次冷却水が5倍、1.7 m<sup>3</sup>のサブプール水が60倍の濃度上昇を示したモニタリング結果 (Fig. 3) は、漏洩したトリチウムの空气中から一次冷却水やサブプール水中への移行が同位体交換により生じることは、誰しも知識としては理解できる現象である。「それを実証するためには何が必要か」という自問が契機となり、1988年9月に現場での挙動究明調査を開始した。

空気から水中への移行を定量的に扱うためにはその現象をモデル化することが必要であり、ここでは水槽中におけるトリチウムの交換と蒸発を駆動力とする保存の簡単な基礎式から空气中のHTOが水中へ移行して濃度を

上昇させる式を誘導した[8]。この式はシャーレ水盤によるモニタリング法としても簡便法として用いらてれる[9-11]。このモデルは蒸発により水深が減少する影響も考慮しているが、実際の炉では蒸発量が補給され、一定の水位を保つように管理されている。そこでこれを希釈効果として水位一定とし、簡素化したモデルによりプール水濃度上昇式として(1)式を誘導した[6]。

$$C_w/C_{v0} = r \left\{ 1 - (1 - r^{-1} C_i/C_{v0}) \exp [(-k_c + k_e) H^{-1} t] \right\} \quad (1)$$

ここで  $r = k_c \varepsilon^{-1} / (k_c + k_e)$ 、 $V_w$ : プール水量 (cm<sup>3</sup>)、 $C_w$ : 水中濃度 (Bq/cm<sup>3</sup>)、 $C_{v0}$ : 暴露時間中の平均空気水分中濃度 (Bq/cm<sup>3</sup>)、 $C_i$ : プール水中初期濃度 (Bq/cm<sup>3</sup>)、 $\varepsilon$ : 水と空気水分中HTO比放射能の比率 (-)、 $k_c$ : 交換速度定数 (cm/h)、 $k_e$ : 蒸発速度定数 (cm/h)、 $H$ : 水深 (cm)、 $t$ : 気-液相接触の経過時間 (h)。(1)式において  $t \rightarrow \infty$  とすれば  $C_w = r C_{v0}$  となり、水中濃度 ( $C_w$ ) は空気中水分濃度よりも  $r$  倍 ( $r < 1$ ) だけ低い濃度で平衡状態になる。

濃度上昇を示す(1)式の場合とは逆に、炉室内から汚染源が除去され、期間  $t$  に水中濃度が  $C_{w0}$  から  $C_w$  に減少する場合も同様の基礎式から濃度変化式が得られる。この場合、水面に接触する期間の平均空気凝縮水濃度を  $C_{v0}$  とすれば、それは(2)式で与えられる。

$$C_{v0} = r^{-1} [C_w - C_{w0} \exp(-at)] [1 - \exp(-at)]^{-1} \quad (2)$$

ここで、 $a = (k_c + k_e) / H$ 。

(2)式は汚染源を隔離もしくは除去した後に減少すると考えられる水濃度変化を長期モニタリングすることにより、その間の平均空気水分中濃度 ( $C_{v0}$ ) を推定するとともに、これを空気凝縮水の長期モニタリングデータと比較することにより、モデルの検証に用いることができる。

(1)および(2)式において、 $k_c$  と  $k_e$  以外のパラメータは既知である。 $k_e$  は蒸発の実測データから算定できる。交換速度定数  $k_c$  の測定法は、HTO水を添加したシャーレ水盤の濃度変化から、蒸発を伴う条件で得た解析解を変形することにより(3)式として求められる[8]。

$$k_c = k_e \ln(C_w/C_0) / \ln(1 - k_e t / H) \quad (3)$$

ここで

$C_0$  : シャーレ水盤中の初期濃度 (Bq/cm<sup>3</sup>).

4種類の初期水深として添加したHTO水の濃度変化および時間  $t$  における蒸発量から  $k_c$  ( $3.3 \times 10^{-3}$  cm/h) を算定した. これを(3)式に適用し,  $k_c$  の平均値として  $6.8 \times 10^{-3}$  cm/h を求た. これは1988年9月, 実験室において行ったものであり, 変動の少ない結果は気-液相間におけるトリチウム移行のモデル化が妥当であることを示している (Verification).

類似した方式ではあるが, 境界条件の設定によりHTOの空気雰囲気からHTOを含まないシャーレ水盤中への移行に伴う水中HTO濃度変化を実測して  $k_e$  および  $k_c$  値を算定できる. 1989年1月(換気停止期間)に1週間, 40 cm<sup>3</sup> の水道水を湛水したシャーレを空气中HTOがほぼ平衡に達した炉室に静置した. その水中の濃度変化および蒸発量から得た  $k_e$  および  $k_c$  値はそれぞれ  $2.4 \times 10^{-3}$  cm/h および  $4.3 \times 10^{-3}$  cm/h であり, 上述した場合と移行方向は逆であるが, 類似したパラメータ値が得られた. これらの値は温湿度により変化するが, その比率 ( $k_c/k_e$ ) はほぼ2として近似された. サブプール水や一次冷却水の温度は30以上であり, 1989年5月および6月に実測したサブプール水の  $k_e$  の平均値は  $1.9 \times 10^{-2}$  cm/h であった. そこで  $k_c$  の in-situ 値も  $k_e$  の2倍と仮定して(1)式から炉室内水槽水中の濃度上昇を予測した結果が Fig. 3 である. この図ではサブプール水を交換した1987年8月を気-液相の接触開始時とした. また, (1)式において濃度上昇の評価期間における平均的な空気水分中トリチウム濃度は, 重水漏洩が検出される時期以前であるため実測値が少ない. そこで, その濃度を2つの水槽ともに  $0.4$  kBq/cm<sup>3</sup> (下限) および  $0.6$  kBq/cm<sup>3</sup> (上限) と仮定して計算した. 予測値に比べて実測値の濃度上昇が経過時間とともに若干大きくなる様相を示しているが, この理由は重水の漏洩率が実際に増加したこともしくは漏洩した重水が黒鉛に吸収され, それが二次汚染源となって炉室空気への移行率が増加したことなどが考えられる. いずれにしても上述したような比較的簡単なモデルにより, 同一の移行パラメータ値 ( $k_c, k_e$ ) を適用してファクタ2以内の精度で形状の異なる2つの水槽の濃度上昇を再現できたことは, このモデルの妥当性が実証されたといえる (Validation). このことはパラメータとして fitting により得た平均空気水分中HTO濃度値の信頼性が高いことを示唆している.

重水漏洩が検知される以前の平均空気中トリチウム濃度は水分濃度から空気濃度への換算に安全側の係数 ( $10^{-5}$ ) を用いても  $4 \sim 6$  kBq/m<sup>3</sup>-air となり, 法に定めら

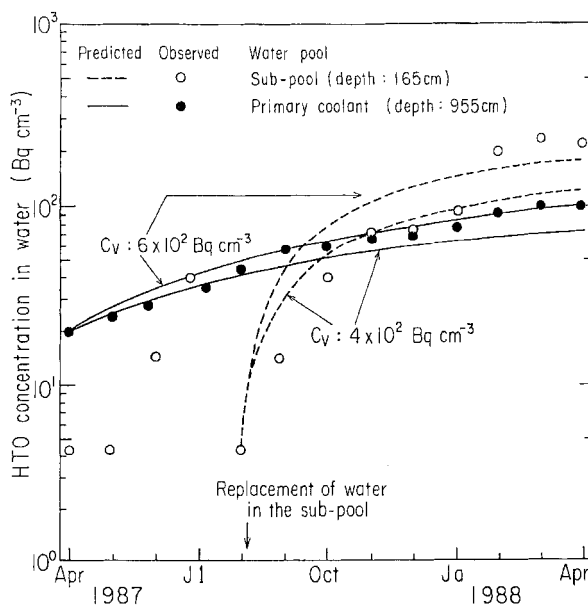


Fig. 3 Measured and calculated HTO concentrations in primary coolant and sub-pool waters at a function of time resulting from heavy water leakage.

れた業務従事者に対する3ヶ月平均の濃度限度 ( $7 \times 10^2$  kBq/m<sup>3</sup>-air) より2桁以上低い環境であったことが判明し, 結果的にはあるが漏洩に気付いていない時期の炉室作業者の安全性が確認された.

約2 m<sup>3</sup> の重水が200 L ドラム缶に隔離され, 黒鉛の除湿作業がほぼ終了した1989年3月下旬から1年間のサブプール水のモニタリング結果, 炉室内の換気によりサブプール水中トリチウムが低減される半減期は15週と評価された. この水中濃度減少と(2)式から, この1年間のプール水に接触する平均空気水分中濃度は  $3.6 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup> と評価された. すなわち, 汚染源を隔離・回収したことにより, 空気水分中濃度はそれ以前 (Fig. 3) の評価濃度 ( $0.4 \sim 0.6$  kBq/cm<sup>3</sup>) よりも1桁以上低下したことがわかる.

### 7.3.4 気-固相間における移行

前項の気-液相間におけるHTO移行モデル過程で空气中濃度は長期の評価期間における定数(平均値)として取り扱ったが, 短期的には Fig. 2 のように炉室換気の作動状況により大きく変動する. この変動パターンは過去に検討した炉室内のラドン系列核種に類似するが, HTOによる空気汚染の状況は炉室内の汚染源(内蔵量)の変化により異なるはずである. Fig. 2 から推定された第3の汚染源(建家コンクリートに吸収されたもの)の吸収量を評価するために, 気-固相間でも移行のモデル化を実施した[6]. ここでは換気停止期間に湧出し, 炉室内

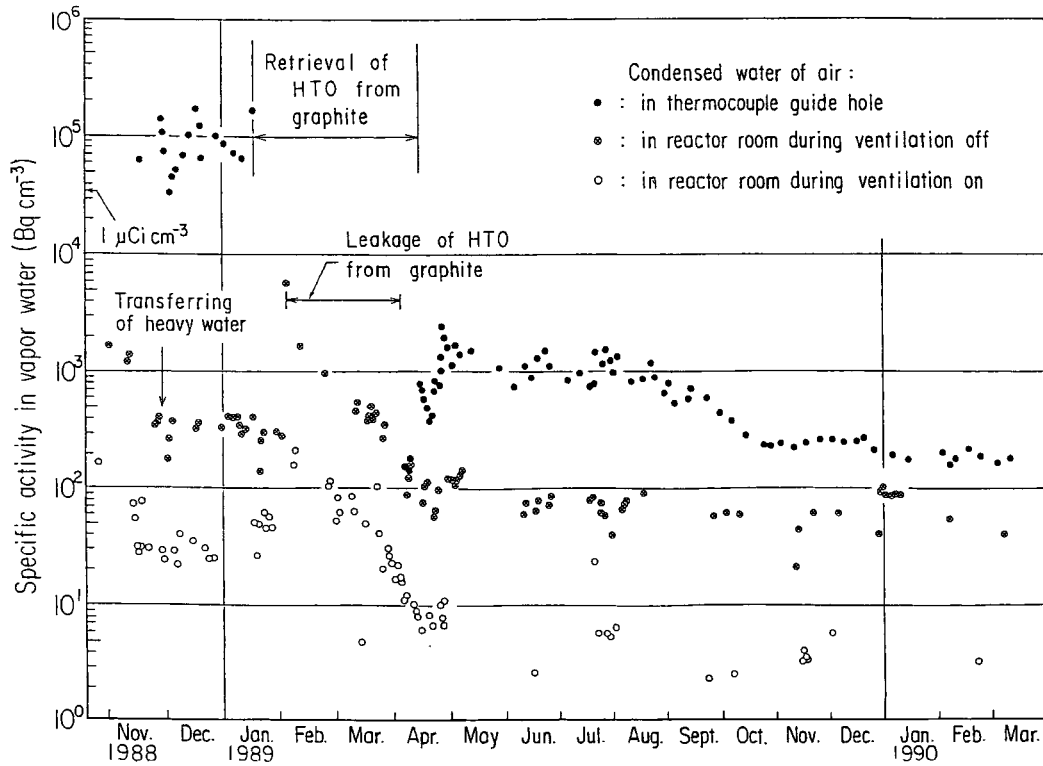


Fig. 4 Monitoring data of HTO concentrations over 15 months starting early November 1988.

に充滿したトリチウムの換気再開直後の排気およびその後建家から湧出して換気停止までに放出される排気量を個別に評価した。その結果、週ごとの放出量を基準にして評価した1年間の総放出量は4.2 GBqであった。その内訳は換気停止時に炉室内に湧出したものが1.5 GBq、換気再開後の湧出によるものが2.7 GBqであった。これらの量はサブプールからの蒸発を含むが、その揮散量は水モニタリングの結果からこの評価値の1割程度にすぎず、この量を差し引いたあとのコンクリートからの放出積算量すなわち吸収されていた量はほぼ3.7 GBq程度と評価された。

Fig. 4には重水の隔離直前から約1.5年にわたる炉室内空気水分中HTO濃度のモニタリング結果(●: 炉壁の熱電対挿入孔, ⊗: 換気停止時室内, ○: 換気作動時室内)を示す。重水漏洩の経路を暗示するように炉壁の熱電対挿入孔内の空気水分中濃度が換気の作動条件に関係なく常に換気停止時の炉室内濃度よりも1桁以上高いことがわかる。1989年2～3月の炉室濃度は換気停止、作動どちらの場合にもそれ以前より濃度が上昇しているが、これは隔離した黒鉛の熱風による除湿作業時に容器から漏洩した結果である。黒鉛から $4.6 \times 10^1$  GBqを回収する過程で約11% (4.1 GBq)がブローを経由して炉室内

に漏洩したことが算定された。

Fig. 4のモニタリング結果によれば、空気水分中濃度は、重水の隔離直前には炉室の換気作動状況に応じて $0.15 \sim 1.5 \text{ kBq/cm}^3$  (1988年11月)、主な汚染源を除去した1989年4月以降は数 $\text{Bq/cm}^3 \sim 60 \text{ Bq/cm}^3$ の範囲を示している。他方、前述した空気からの移行による一次冷却水の濃度上昇に際してモデルによるfittingから評価した重水隔離前の平均空気水分中濃度は $0.4 \sim 0.6 \text{ kBq/cm}^3$ 、汚染源を除去した後のサブプール水中濃度変化から(2)式のモデルを用いて評価した1年間平均の空気水分中濃度が $3.6 \times 10^1 \text{ Bq/cm}^3$ と、簡単なモデルから独立に評価された平均濃度が、汚染源除去前後どちらの場合にも換気作動・停止時期のモニタリング濃度範囲内にあることが判明し、移行モデルの妥当性が検証された。

#### 7.4 重水設備改修後のスタック・炉室空気中濃度とモニタリングの問題

上述したような重水設備からの重水漏洩事象(1987～1988年)が原状に回復してから今日まで約10年が経過した。この事象以後、定置式電離箱による連続モニタリングを補完する目的で実施していた、スタックの排気中凝縮水を採用して測定する感度の高い定期モニタリングの

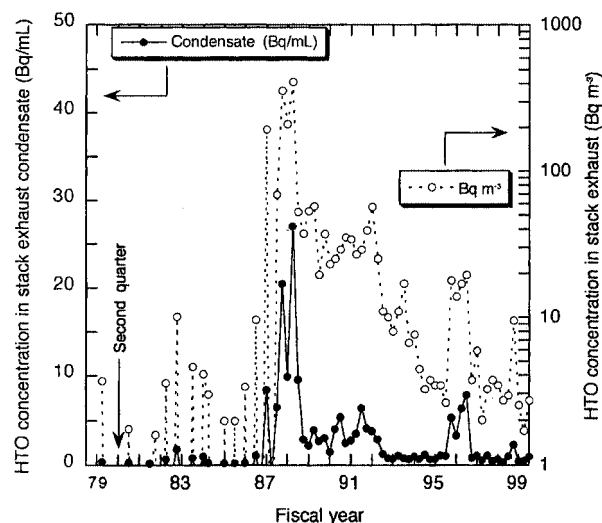


Fig. 5 Evolution of HTO concentrations in the KURR stack exhaust over the last twenty years.

頻度を2回/年から4回/年ごととした。さらにこの間、重水給排水管の取り替え(1991~1992年)、重水タンクの更新(1995~96年)および重水の水位計差圧伝送器の調整作業(1997年)など、HTOの漏洩が予想される作業期間には測定頻度を必要に応じて密にするとともに、作業場所である炉室内の空気も同様の方法でモニタリングを実施した。ここではその長期の凝縮水サンプリングによる定期スタックモニタリングおよび短期の作業前後の空気モニタリングの結果を比較する。

スタック排気中の凝縮水は通常、四半期ごとに電気クーラーにより(1~2日作動)、また炉室内凝縮水は数時間の除湿器の作動により採取して液体シンチレーション法(試料水1cm<sup>3</sup>,シンチレータ10cm<sup>3</sup>)に従って測定した。炉運転中に炉室は通常、火曜日9時~金曜日18時まで連続に換気されるため、炉室内トリチウム濃度は換気直後に急減し、換気停止後から次週の換気前までは上昇する(Fig. 2)。スタックの凝縮水は、炉室の換気による影響が少なくなる(排気中濃度がほぼ定常になる)水~金曜日に採取した。Fig. 5にはこのようにして1980年以後20年間の半期~四半期ごとに測定したスタック排気凝縮水中のHTO濃度および温湿度データにより換算した排気空気中濃度を示す。凝縮水濃度は前章に述べた重水漏洩時の1988年に最大27Bq/cm<sup>3</sup>を示し、前述した重水設備改修時の1991~1992,1996~1997年頃には7~8Bq/cm<sup>3</sup>の小さな濃度ピークが認められるにすぎない。またFig. 5によれば、1997年の重水設備工事・改修の終了後には1~2Bq/cm<sup>3</sup>以下が定常濃度となっている。このよう

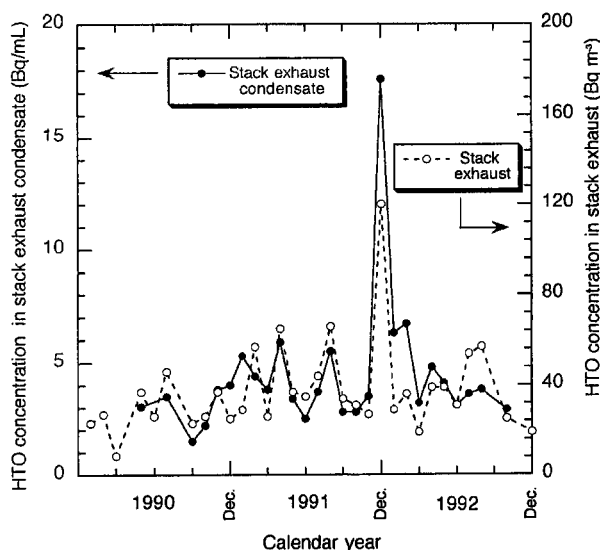


Fig. 6 HTO concentrations in the stack exhaust monitored on a monthly basis during 1990-1992.

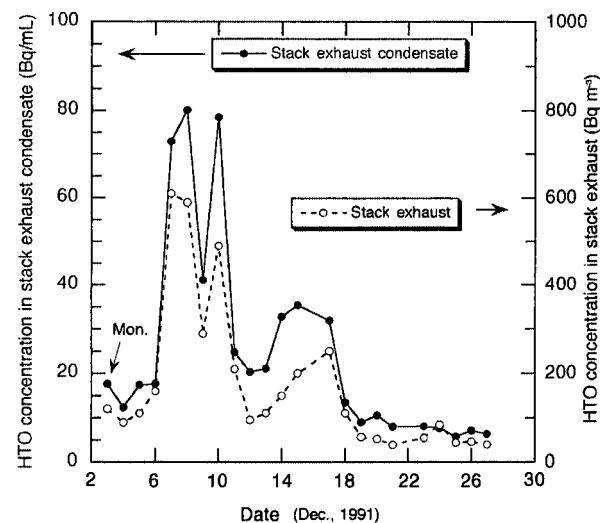


Fig. 7 HTO concentrations in the stack exhaust monitored on a daily basis in December 1991.

な定期モニタリング以外に、1990年1月から1992年の12月までは毎月1回(Fig. 6)および工事による重水漏洩が予想された1991年12月には毎日1回(Fig. 7)と頻度を高めたサンプリングを実施した。その結果、Fig. 6では1991年に凝縮水濃度として18Bq/cm<sup>3</sup>、Fig. 7では1991年12月上旬に80Bq/cm<sup>3</sup>と、当然のことではあるがサンプリング頻度が高い場合ほど高濃度が検知された。その程度は四半期モニタリングに比べて毎日サンプリングでは1桁程度高い。ちなみに1991年12月の重水設備のオー

バーホールに際しては、約 2 GBq と平常運転時よりも多くのトリチウムが放出された[ 12 ]。

1996～1997年に実施された重水タンクの更新時に、定期モニタリングではスタック排気凝縮水中濃度は最大 7 Bq/cm<sup>3</sup> を示した後、1 Bq/cm<sup>3</sup> 程度で推移していたが、その濃度低下後も重水移送配管系統や重水位差圧計の改修等の作業により、換気中でも短期的かつ局所的に炉室内の作業環境では高い空気凝縮水濃度（最大約 2,000 Bq/cm<sup>3</sup>）が検知された。このことからスタックだけでなく、より作業環境に近い室内での作業に応じたモニタリング計画の必要・重要性が認識された。

重水設備系統の工事が終了した1997年7月以後、上記スタック濃度は再度 0.5～1.0 Bq/cm<sup>3</sup> 程度と低い状態に回復した。しかしながら金曜日に炉室の換気が停止すれば、月曜日早朝には炉室内濃度が数十 Bq/cm<sup>3</sup>（換気中濃度の数十倍）にまで上昇する週変化のパターンは消滅せず、再現された。これは1987年に重水が漏洩し、原状回復してから約半年が経過した1989年11月の濃度変化パターンと大きく変わっていない。当時の濃度上昇はコンクリート壁へ吸収されたものが湧出する現象がその原因と推定されたが、漏洩事象が回復してからほぼ10年を経過した1997年以降の換気停止時においても濃度が上昇する原因は定かでない。そこで、前述した CNS や重水設備からの排気系統など、より炉心に近い排気凝縮水中 HTO 濃度を測定した。その契機は CNS 系統において<sup>41</sup>Ar の減衰タンクによる濃度低減効果とその排気系統における低流量（2 L/min）・高<sup>41</sup>Ar 濃度（10<sup>5</sup> Bq/L オーダ）の排気を吸着材カラムにより低減する対策を検討する実験において、<sup>41</sup>Ar の電離箱による破過曲線がテーリングを示したためである。測定の結果、排気凝縮水中 HTO 濃度が 10<sup>5</sup> Bq/cm<sup>3</sup> オーダであることを検出した。現在、その動態を放出源の同定を含めて検討中である。

## 7.5 おわりに

本稿では放出源近傍における HTO の移行・挙動とそのモデル化について、主に KURR 炉室内の作業環境中における結果を総括して論じた。被曝線量は摂取した放射性物質の種類と量が明らかであれば人体臓器や年齢差の相違まで考慮した精度で評価可能な手法が確立されつつある。しかしながらその摂取量については local ,regional

および global いずれの領域においても評価精度は悪く、ソースタームの情報は特にその評価源として重要になる。したがって単なるモニタリングだけではなく、汚染物質の移行・挙動の基本となる Environmental Processes の解明とその Verification と Validation を含めたモデル化が評価精度を向上させるために環境安全研究分野に課せられた今後の主要な課題である。施設内における汚染源の情報はその管理体制が問われることから、ややもすれば隠蔽される傾向にある。しかしながら研究炉・発電炉を含めてトリチウムの発生源を有する施設は今後その情報を開示し、放出量と被ばく低減対策もしくは将来的には核融合炉設計の安全対策に資する知識と知恵を累積していくことが長期的観点から重要と考えられる。

最後に KURR 重水作業に関する情報および黒鉛回収水等の試料を提供いただいた研究炉部員諸氏および1990年以後の凝縮水モニタリングに協力いただいた放射線管理部の義本孝明技官に謝意を表します。

## 参考文献

- [ 1 ] UNSCEAR, *Sources, and Effects of Ionizing Radiation* (United Nations Publication, New York, 1977) No.E.77. IX.1.
- [ 2 ] UNSCEAR, *Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects* (United Nations sales, New York, 1982) No.E.82. IX.8.
- [ 3 ] S. Kaufman and W.F. Libby, *Phys. Rev.* 93, 1337 (1954); UNSCEAR, *Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation* (United Nations sales, New York, 1988) No.E.88. IX.7.
- [ 4 ] J.A. Miskel, *Tritium* (A. Moghissi and M.Carter, eds.) (1973) p.79.
- [ 6 ] M. Fukui, *Health Phys.* 62, 144 (1992).
- [ 7 ] 福井正美, 林 正俊: 日本原子力学会誌 34, 153(1992).
- [ 8 ] M. Fukui, *Rad. Prot. Dosim.* 48, 169 (1993).
- [ 9 ] 野口 宏 他: 日本原子力学会「第34回春の年会」要旨集 (1996) F36, p.308.
- [ 10 ] 徳山秀樹 他: *Radioisotopes* 47(7), 560 (1998).
- [ 11 ] 西川正史 他: 日本原子力学会1999年春の年会要旨集 (1999) A28, p.43.
- [ 12 ] 福井正美, 市原千博, 義本孝明: 平成4年度弥生研究会「研究炉等の運転・管理及改良に関する研究会」要旨集 (1993) pp.3 1～3 6.