

解説

トリチウムの環境動態

百島 則幸

熊本大学理学部

〒860-8555 熊本市黒髪2丁目39-1

Environmental Tritium

Noriyuki MOMOSHIMA

Faculty of Science, Kumamoto University

Kurokami 2-39-1, Kumamoto 860-8555

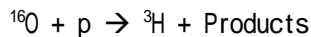
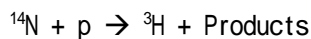
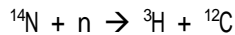
(Received February 10, 2001; accepted March 31, 2001)

Abstract

Environmental tritium was first observed in a helium fraction at a liquid air production facility in Germany in 1949. During the 1950s and early 1960s, huge amounts of artificial tritium were released into the atmosphere by nuclear testing. The environmental tritium level increased to more than 200 times the natural tritium level. Since the signing of a test ban treaty in 1963, the environmental tritium level has decreased, and analysis of recent Japanese rain samples has shown that the environmental tritium level is close to that before the nuclear testing. Tritium released from nuclear bombs into the atmosphere has been used as a global-scale tracer in studies on water mass movement in the ocean, groundwater flow and atmospheric air mass movement. Useful and valuable results have been obtained in those studies. In the atmosphere, tritium exists in three different chemical forms: hydrogen (HT), water vapor (HTO) and hydrocarbons (CH_3T). The concentration of HT is the highest, followed by those of CH_3T and HTO. The most interesting feature of these chemical species is their significantly different specific activities. HT has 10^6 TU, CH_3T has 10^4 TU and HTO has 10 TU, suggesting that HT and CH_3T have been released from nuclear facilities. Vegetation is sensitively responds to a change in environmental HTO level by rapid exchange of water molecules between leaf water and atmospheric water vapor. HTO vapor released into the air slowly contaminates soil water. A nuclear fusion facility is planned to use a large quantity of tritium that is comparable to natural tritium on the earth, indicating the necessity to maintain tritium in a nuclear fusion facility and the necessity to carefully monitor the environmental tritium level.

1. 環境トリチウムの歴史

ドイツの液体空気製造工場のヘリウムに富んだ廃ガス成分中に環境トリチウムが発見されたのは 1949 年のことである¹⁾。その後大気圏内核実験により、環境トリチウム濃度が増加したため、核実験以前の天然トリチウムレベルの報告はきわめて少ない^{2, 3)}。その当時の限られたデータの分析から、環境トリチウムの発生源が大気上層にあることが明らかとなった。天然トリチウムは次のような核反応により生成している。



ここで、n、pは一次宇宙線から生成した二次宇宙線であり、窒素や酸素は大気の構成成分である。生成速度は地表の単位面積あたり 0.2-0.25 トリチウム原子/cm²/sと推定されている^{4, 5)}。トリチウムの半減期が 12.34 年であることから、生成と放射壊変が地球全体ではバランスしており、その結果地球上の存在量は 1-1.3 EBq (E=10¹⁸) となる (Fig. 1)⁶⁾。その他に大地に含まれるウランの三体核分裂やリチウムからの生成が考えられるが、その量は宇宙線生成量に比べると無視できる。当時は大気上層の発生源を反映して環境トリチウムレベルは、雨 > 河川水 > 海水の順に低くなっていた。雨や河川水中のトリチウム原子の数が水素原子 1 個に対して約 10⁻¹⁸であったことから、その原子比をトリチウムユニット (TU) と定義して用いられた。地下水などの水文学や海洋関係の論文で使用されている。ちなみに 1TUは 0.118 Bq/Lである。

1945 年に始まる大気圏内核実験により環境トリチウムレベルは増加した。特に 1953 年から始まる水爆実験により大量の人工トリチウムが環境に放出された。核爆弾はウラン-235 あるいはプルトニウム-239 を臨界状態にして爆発させるものであるが、このとき三体核分裂によりトリチウムが生成する。水素爆弾いわゆる水爆は、ウラン-235 やプルトニウム-239 の核分裂エネルギーを利用し、さらにトリチウムと重水素の核融合を行わせることにより威力を高めているものである。爆弾中のリチウムから生成したトリチウムや充填されていたトリチウムのうち未反応分が環境中に放出された。最もトリチウムの放出が大きかったのは 1960 年代の前半であり、1963 年に米英ソによる大気圏内核実験停止条約が結ばれるまで放出が続いた⁷⁾。その結果、環境中のトリチウム量は 240 EBqと天然存在量の 200 倍以上に増加した。これらの人工トリチウムは天然トリチウムと混じりあい環境中に広がっていった。1963 年以降は、中国の大気圏内核実験による若干のトリチウム放出はあるが、環境トリチウムレベルは漸次減少傾向にある。Fig. 1 に示すように核実験由来の推定トリチウム量は 1990 年で 52 EBqであるので、2001 年はさらにその半分程度になっているはずである。核実験由来のトリチウムは主に大気圏に放出されたが、その内のいくらかは成層圏まで到達した。これらのトリチウムは天然トリチウムと挙動を共にすることになる。高濃度のトリチウムが成層圏から対流圏に移行してくるので、これらの核実験起源のトリチウムは地球規模での大気循環のトレーサとし

トリチウムの環境動態

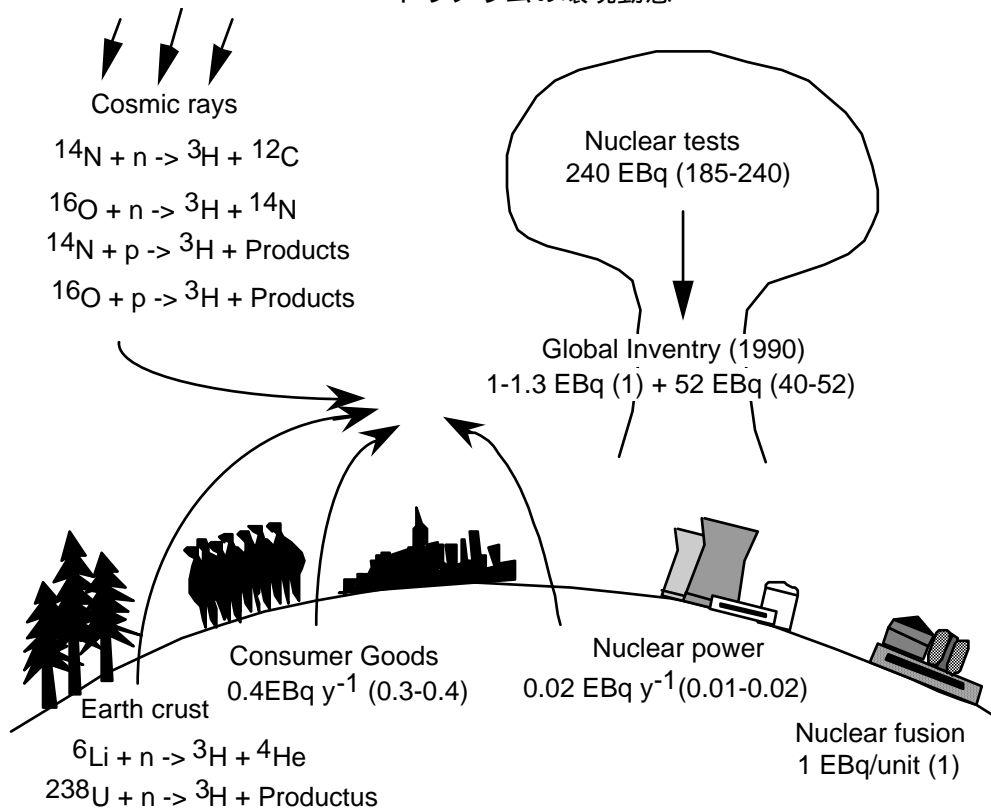


Fig. 1. Global inventory of tritium. Figures in parenthesis are relative values in relation to the tritium inventory in nature (1-1.3 EBq)⁶⁾.

て利用された。トリチウムの最終的なシンクは海である。海洋表面に高濃度のトリチウムが導入されることになり、これらのトリチウムは海水の横方向や縦方向の動きを探る重要な指標として利用された。地下水に取り込まれた人工トリチウムは地下水の動きを探る指標となっている。

核エネルギーの平和利用によるトリチウムの環境放出があるが、これらは主に原子力発電所と核燃料再処理工場である。我が国で使われている原子炉のタイプには加圧水型と沸騰水型があるが、加圧水型からのトリチウム放出が大きいとされている。いずれにしてもトリチウムは保管することができないので原子力発電所からは大気と海に放出されている。放出量は発電所の規模に依存するが1000MW級の施設からは年間10 GBq以上が環境へ放出されていると考えられる⁸⁾。現在、核燃料再処理工場は英国やフランスに限られているが、使用済み核燃料は再処理されるまである期間保管されるので、燃料棒中のトリチウムは減衰する。従って再処理工場からのトリチウム放出量は、定常的な運転状態では大きく変動しないと思われる。青森県六ヶ所村に建設中の再処理工場が本格的に稼働しだすと、トリチウムが周辺環境へ放出されることになる。

将来のエネルギー源として期待されている核融合炉ではトリチウムが燃料として利用される。核融合施設のトリチウム量はいろいろと試算されているが、おそらく1000MW級の施設での取扱い量は天然トリチウム量に匹敵するであろう。すなわち地球上の全部の天然トリチウムを一カ所に集めたことと同じ事になる。核融合施設におけるトリチウム閉じこめ技術がいかに重要であるかわかる。また、施設内はもちろんであるが、施設外の環境トリチウムモニタリングがきわめて重要である。

2. 環境トリチウムの測定法

トリチウムは半減期 12.34 年の放射性核種で最大エネルギー 18 keV の β 線を放出してヘリウムに壊変する。従ってこの β 線を測定することが一般的に行われている。以前はガスカウンターによる測定が行われていたが、現在では液体シンチレーションカウンターによる測定が主流を占めている。現在の雨のトリチウムレベルは、我が国では 1 Bq/L 程度以下であることから、バックグラウンドが高い通常の液体シンチレーションカウンターで測定することはできない。特別にバックグラウンドを下げた装置が必要である。

深層地下水や海水などのトリチウムレベルがさらに低い試料については、電気分解によるトリチウム濃縮が行われる。水が電気分解で水素に還元されるとき、より軽い水素同位体ほど水素に成りやすいため、試料水にトリチウムが濃縮される。さまざまな電極による電気分解が調べられたが、陰極が鉄の場合、高い濃縮率が報告されている。200mL を 15mL 程度まで電気分解するとトリチウム濃縮率は 11 倍程度となる⁹⁾。これらの電気分解では過酸化ナトリウムなどの電解質を加えて電気を流すようにしているが、その後に蒸留が必要で、また爆発の危険性も高い。最近、電解質を加える必要がないイオン交換膜を電極にした電気分解装置が作られている¹⁰⁾。

トリチウムの放射能を測定する代わりに、トリチウムの壊変で生じたヘリウム-3 を質量分析装置で測定することも可能である。この方法の利点は、例えば生体中のトリチウムを測定するときに試料を燃焼するなどの操作が不必要なことである。密閉された容器中に試料をある期間保管しておけばよい。

3. 最近の環境トリチウムの分布

3.1. 大気中のトリチウム濃度

大気中でトリチウムは 3 つの化学形で存在している。水蒸気 (HTO)、水素 (HT) および炭化水素 (CH₃T) である。大気中の HT と CH₃T のトリチウム濃度の経年変化を Fig. 2 に示す¹¹⁾。1950 年代初頭は 0.3mBq/m³ 以下であった HT 濃度は、核実験開始と共に増加し、1960 年代初めには 100mBq/m³ 以上にまで上昇した。1960 年代後半から 1970 年代前半には HT 濃度はほぼ横ばいを示していたが、1970 年代後半から 1980 年代にかけて緩やかな濃度減少にあった。さらに 1990 年代になると減少速度は非常にゆっくりしたものとなっている。我が国で測定されている最近の HT 濃度¹²⁾ は 28mBq/m³ 程度で核実験開始前より 2 桁高い。放射壊変を考慮に入れた HT の滞留時間は 4.8 年と見積もられていることから¹⁶⁾、1962 年に観測された HT の 340mBq/m³ は現在では数 mBq/m³ になっていなければならない。しかし、現在の HT 濃度は予測レベルより明らかに高いことから、原子力施設由来の HT が現在の大气中濃度に寄与していると考えられる。

トリチウムの環境動態

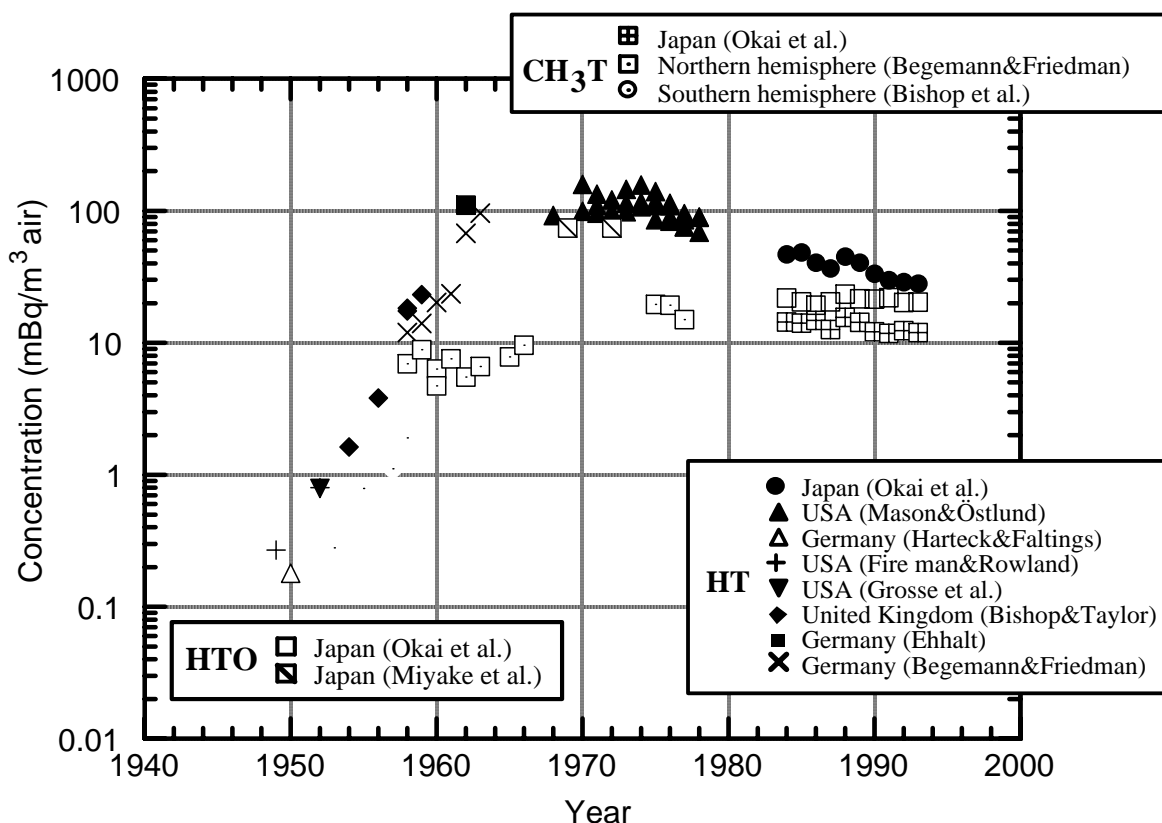


Fig. 2 Tritium concentrations in the atmosphere¹¹⁾.

大気中 CH_3T 濃度は1952年に測定された南半球の約 $0.3\text{mBq}/\text{m}^3$ が最初である。北半球では1958年から1960年代初めにかけて CH_3T 濃度に増加は見られず横ばいであった。HT濃度はこの間著しく増加していることから、HTは核実験により供給されたが、大部分の CH_3T は核実験以外からきたものと考えられる。このことを裏付けるように1970年代に CH_3T 濃度は最大に達し、それ以後は極めて緩やかに減少を続け、最近の CH_3T 濃度は $12\text{mBq}/\text{m}^3$ 程度となっている¹²⁾。メタンの大気中での寿命は12.2年とされているので¹⁷⁾、放射壊変を考慮すれば CH_3T の滞留時間は6年程度と推定される。しかし、この10年間 CH_3T 濃度に明確な減少は起こっていない。 CH_3T は原子力施設から放出されたと考えるのが妥当であろう。

大気中のHTO濃度は、トリチウム濃度(Bq/L)だけではなく水蒸気量で決まるため、季節変化を示す。従って、我が国では夏場の多湿期は冬季の乾燥期よりHTO濃度は4倍くらい高くなる。最近の福岡のHTO濃度の年平均値¹²⁾は $20\text{mBq}/\text{m}^3$ 程度であるが、1962年(10月)と1972年(8-10月)に東京で測定されたHTO濃度は約 $70\text{mBq}/\text{m}^3$ であった¹³⁾。

Fig. 3に福岡市で測定された大気中トリチウムの比放射能を示す。化学形が異なると比放射能も大きく異なりきわめて特徴的である。水素が最も比放射能が高く(10^5 - 10^6TU)、ついでメタン(10^4TU)、水蒸気(10TU)の順となっている¹²⁾。これらの大気中トリチウムの比放射能が大きく異なるのは、上に述べたようにHTと CH_3T は原子力施設に由来しHTOは環境水からきていることによると思われる。比放射能の経年変化が少ない

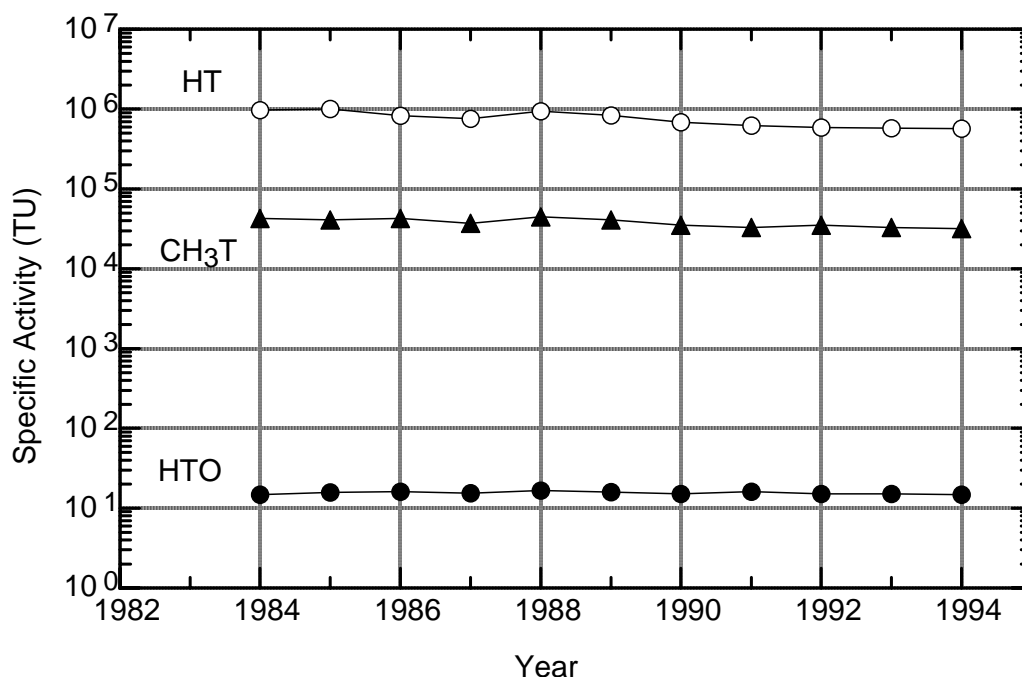


Fig. 3. Specific activities of atmospheric tritium

ことから大気中での化学形の相互変換が遅いこと、現在もHTとCH₃Tが大気へ放出されていることを物語っている。核融合炉では元素状トリチウムを取り扱うことから、HTの環境測定は核融合炉施設の影響評価を行う上で必要不可欠である。

3.2. 海洋および陸水中のトリチウム濃度

トリチウムが最終的に行き着くところは海である。核実験で海洋にもたらされたトリチウムは水塊の動きを探るトレーサとして利用されている。海水の地球科学的な時間スケールでの動きに比較すれば、核実験による大量の人工トリチウムの負荷はきわめて短い時間に起こったと見なせる。パルス的に海洋表面に供給されたトリチウムは、移流拡散で深部に移行し、また水塊の動きにつれて横方向へ広がっていく。海洋のトリチウム濃度は低いいため電気分解によりトリチウムを濃縮してから測定される。Fig. 4 に太平洋で測定されたトリチウムの深度分布を一例として示す。海洋表面にもたらされた核実験のトリチウムが深度500-600mまで移流拡散により到達していることがわかる。濃度が表面から深部に向かって単調に減少していることからこの地点における横方向の移動は少ないと考えられる。さらに興味深いことは、1973年にGEOSECS (Geochemical Ocean Sections Study)で測定されたほぼ同じ地点の深度プロファイルと似ていることである。両測定プロファイルをトリチウムの半減期で補正するとほぼ一致した深度プロファイルとなる。このことは深部へのトリチウムの移流拡散と放射壊変が釣り合った定常状態にあることを示している。

トリチウムの環境動態

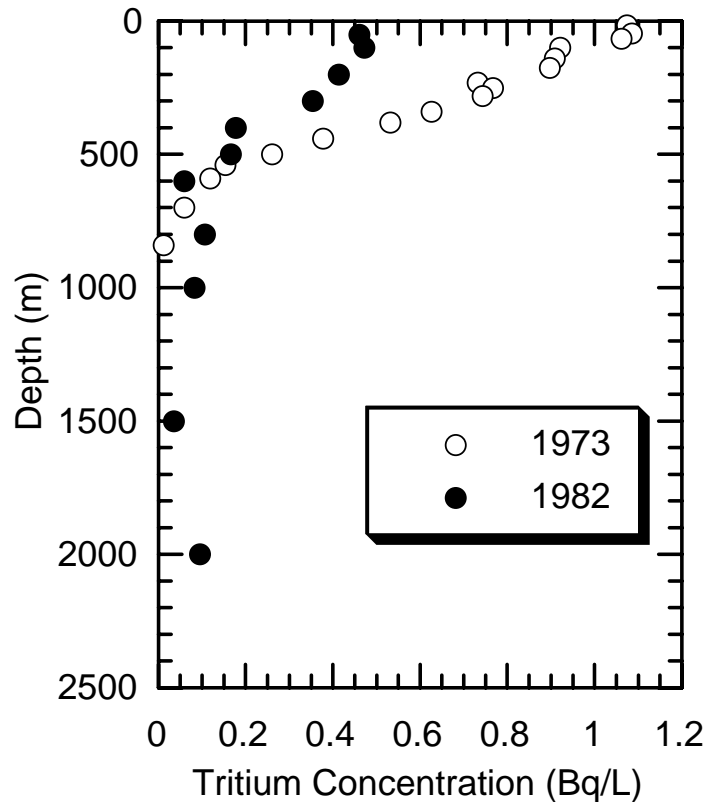


Fig. 4. Tritium profile in the Pacific Ocean.

雨としてもたらされたトリチウムは、河川水や地下水として一時的に陸域に保持されるが、やがて海へ移動する。富山地方の河川水と雨について調べられたトリチウム濃度から判断すると、集水域における降水の滞留時間はかなり短いと考えられる。一方、富山の常願寺河扇状地について調べられた地下水中のトリチウム濃度には1960年代に行われた核実験の影響を示すものが認められ、地下水の移動をトリチウムで追いかけることができることを示唆している¹⁸⁾。

3.3 植物

水素は生体の主要な構成元素であることから、トリチウムは広く生物組織中にも見出される。植物は根から取り込んだ水を代謝に利用しているし、有機物として水素を利用していることから、植物体中でトリチウムは含有水トリチウム (Tissue Free Water Tritium) と組織結合トリチウム (Organically Bound Tritium) として存在している。植物中のTFWTの半減期は短く、環境水のトリチウムレベルの変動に反応し、その濃度は素早く変化する。したがってTFWTはある場所におけるある短い時間内の環境トリチウムレベルに対応していると考えられる。これまでの研究から植物葉の含有水のトリチウム濃度は、大気中水分のトリチウム濃度と数時間で平衡になることがわかっている。注意しなければならないことは、植物は葉の気孔あるいは根から水分を取り込むことである。仮に大気に水蒸気状トリチウムが放出された場合、土壌水のトリチウム濃度の変化はすぐには起こらないことである。そのため、植物葉の含有水中の

トリチウム濃度は、大気水蒸気中のトリチウム濃度レベルまで上昇しない。活発な土壌水の蒸散作用により葉含有水のトリチウム濃度は希釈される。一般環境では、大気水蒸気と土壌水のトリチウム濃度はほとんど変わらないと考えられることから、TFWT は現在の環境トリチウムレベルを反映していると言える。

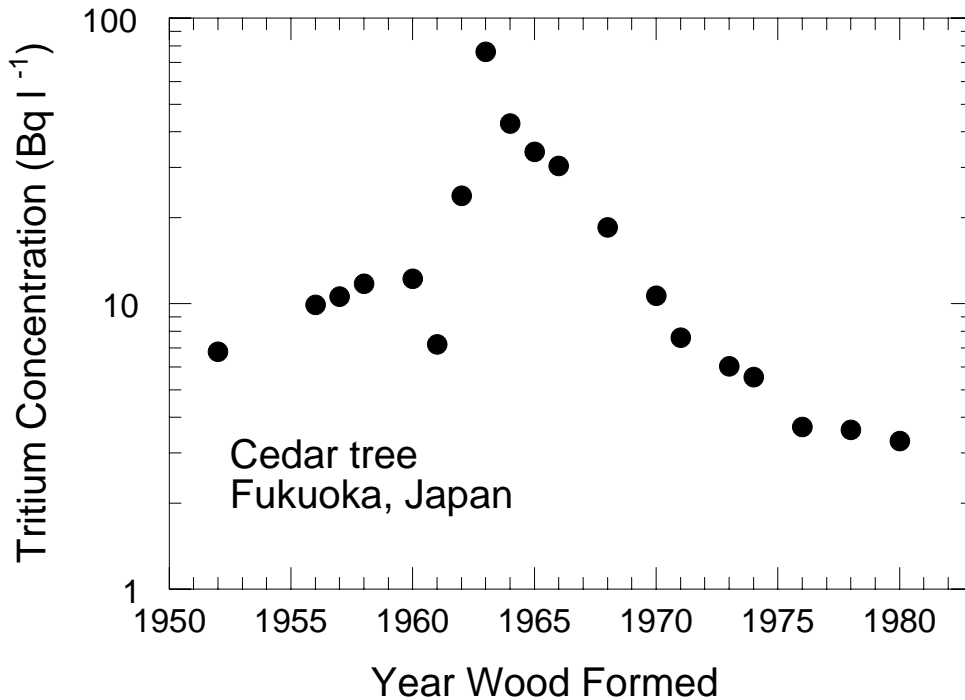


Fig. 5. Tritium concentration in wood ring of Japanese cedar ¹⁴⁾.

一方、OBTは含有水中のトリチウムレベルを反映することになるが、組織が合成された時点での環境トリチウムレベルを示すと考えるべきである。このことはFig. 5 に示す杉年輪の組織中のトリチウム濃度によく示されている¹⁴⁾。杉年輪中のトリチウム濃度は核実験による雨の環境トリチウムレベルに対応している。従って、例えば原子力施設周辺の木を分析することにより、施設寄与による環境トリチウムレベルの変動を過去に遡って評価する道が開ける¹⁵⁾。

4. まとめ

最近の我が国の環境トリチウムレベルは、核実験により環境放出されたトリチウムの影響が弱くなり、雨などの環境試料は核実験以前のレベルに戻りつつあると言える。これは我が国がトリチウムレベルの低い海洋に取り囲まれていることに関係している。しかし、大陸では限定された地域で環境水の循環(蒸発、降水)が繰り返される傾向があるため、現在のレベルは我が国の2倍程度と言われている。我が国は中国大陸からの気団の影響下にあるため、大陸から長距離輸送されてくるトリチウムの影響を受けていること

トリチウムの環境動態

が最近の研究から明らかになりつつある。環境トリチウムレベルが減少してきたことがこのような解明を可能にしていると言える。

我が国では51基の商業用原子炉が稼働しているが、これらの施設からトリチウムが環境へ放出されている。局地的なトリチウム源として、環境トリチウムレベルの変動に及ぼす影響を調べる必要がある。施設周辺の海水中のトリチウムレベルを除けば十分なモニタリングが行われていないのが現状である。多くの施設は運転開始からかなりの時間が経過していることから、施設起源のトリチウムにより周辺生態系の環境トリチウム分布はなんらかの定常状態にあると考えられる。これらを解明していくことで将来の核融合炉の環境安全研究に寄与できると期待される。

参考文献

- 1) V. Faltings and P. Z. Harteck: Der Tritium Gehalt Der Atmosphere, Z. Naturforsch., **5a** (1950) 438.
- 2) S. Kaufman and W. F. Libby: The Natural Distribution of Tritium, Phys. Rev., **93** (1954) 1337.
- 3) H. von Buttlar and W. F. Libby: Natural distribution of cosmic-ray produced tritium. II, J. Inorg. Nucl. Chem., **1** (1955) 75.
- 4) B. J. Teegarden: Cosmic-Ray Production of Deuterium and Tritium in the Earth's Atmosphere, J. Geophys. Res., **72** (1967) 4863.
- 5) H. Craig and D. Lal: The production rate of natural tritium, Tellus, **13** (1961) 85.
- 6) S. Okada and N. Momoshima: Overview of Tritium: Characteristics, Sources, and Problems, Health Phys., **65** (1993) 595.
- 7) UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation, Report to the general assembly, with annexes, United Nation, New York, 1982
- 8) UNSCEAR: Sources and effects of ionizing radiation, Report to the general assembly, with annexes, United Nation, New York, 1988
- 9) T. Kaji and Y. Takashima: The small-volume electrolytic enrichment technique, Radioisotopes, **39** (1990) 106.
- 10) 斎藤正明, 高田 茂, 島宗孝之, 錦 善則, 清水秀人, 林 貴信: 固体高分子電解質を用いたトリチウム電解濃縮, Radioisotopes, **45** (1996) 285.
- 11) 百島 則幸: トリチウムの影響と安全管理-環境中トリチウム挙動, 日本原子力学会誌, **11** (1997) 923.
- 12) T. Okai, N. Momoshima and Y. Takashima: Recent Levels of Atmospheric Tritium in Japan. in Proceeding of "1996 SERNIA Symposium on Environmental Radioactive Nuclides Impact in Asia", Taipei, pp. 41.
- 13) 三宅康雄、他: 環境問題特集号, 日本地球化学会, (1976) 131.

- 14) N. Momoshima. Radionuclides in “*Plant Ecophysiology*”, edited by M.N.V. Prasad, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1996, pp. 457.
- 15) S. Fuma and Y. Inoue: Simplified and Sensitive Analysis of Organically Bound Tritium in Tree Rings to Retrospect Environmental Tritium Levels, *Appl. Radiat. Isot.*, **46** (1995) 991.
- 16) A. S. Mason and H. G. Ostlund: Behaviour of Tritium in the Environment, IAEA/STI/SUB 498, IAEA, Vienna, 1979, pp. 3.
- 17) IPCC, 気象庁訳、気象庁編、地球温暖化の実態と見通し
- 18) 水谷義彦、佐竹洋：富山地方陸水中のトリチウムの挙動、昭和63年度文部省科学研究費報告書、核融合特別研究、環境トリチウムの変動測定とその解析、高島良正編、1989、pp. 96.