核融合研究におけるトリチウムの放出低減 と環境管理の技術の現状

(日本原子力研究所) 吉田 芳和, 成瀬 雄二, 飯嶋 敏哲

核融合研究におけるように大量のトリチウムガスが取り扱われる場合には、トリチウムガスの捕集など高濃度トリチウムの安全取扱い技術や、トリチウムの性状とくにガスと酸化物との挙動の相違を考慮した環境管理技術の確立が重要な課題である。本稿では、トリチウムガスの放出低減技術、環境モニタリング技術ならびに被曝線量推定方法の現状およびトリチウムガスのトリチウム酸化物への転換に関する研究の現状を紹介する。

わが国においては、加速器におけるトリチウムターゲットや重水炉で2次的に発生するトリチウムの管理経験を通じて、トリチウムに対する作業者の防護ならびにモニタリング技術はほぼ確立されてきた。

しかしながら、核融合研究におけるように大量のトリチウムガス(T_2)が取り扱われる場合には、トリチウムガスの捕集など高濃度トリチウムの安全取扱い技術や、トリチウムの性状とくにガスと酸化物との挙動の相違を考慮した被曝評価やモニタリング技術の確立が重要な課題になる。

本稿では、核融合に関連して、トリチウムを比較的大量に、特にガス状で取り扱う場合の環境への放出低減技術、環境モニタリング技術ならびに被曝線量推定技術の現状について述べる。なお、安全取扱い技術全般について別に紹介した文献⁽¹⁾と重複する部分のあることをお断りする。

I. トリチウムの性質

トリチウムは、物理的半減期約12.3年、比放射能9,600 Ci/gの低エネルギー β 放射体(エネルギーは最大18.6 keV, 平均約6 keV)で、その飛程は空気中で約5 mm, 水または組織中で約5 μ m(0.5 mg/cm²)である。トリチウムの環境における主な存在形態は、水素ガス(T_2 , HT など)と酸化物(T_2O , HTO など)のほか、 CH_3T など有機物である⁽²⁾。環境に放出されたトリチウムガスは、最終的には大部分が酸化物に転換する(Ⅲ-2節参照)。

トリチウムの人体への影響の基本的事項は次のとおりである⁽³⁾⁽⁴⁾。酸化物の場合は吸入トリチウムの98~99%が体内に摂取されるが、水素ガスが吸入により体内に取り込まれる割合は、酸化物の場合の約1/15,000である。なお酸化物は皮膚からの浸透によっても体内

に取り込まれる。トリチウム水蒸気の体表面(標準人体の表面積2m²)からの摂取量は吸入摂取量とほぼ同一になる。また、トリチウム水(HTO)が皮膚から体内に浸透する割合は0.03~0.06 mg/cm²・minと報告されている⁽⁵⁾。したがって、空気中トリチウムが酸化物の場合は、吸入および皮膚からの浸透による摂取のほか、環境においては食物連鎖による経口摂取が問題となるが、水素ガスとして存在する場合は、内部被曝は無視でき、放出 β 線による皮膚または肺の被曝が問題になるのみで、その危険度は酸化物の場合に比べて2桁以上小さい。人体内に取り込まれたトリチウムは、摂取後短時間に大部分が水の形で身体内にほぼ均等に分布し、⁹⁰Sr や ¹³¹I のように特定の臓器に濃縮することではなく、その主要成分の生物学的半減期は8~12日である⁽⁶⁾。これらのトリチウムの特性に基づいて定められたICRP 勧告の最大許容身体負荷量(MPBB)⁽⁵⁾⁽⁶⁾と最大許容濃度(MPC)⁽⁶⁾を第1表に示す。ただし、わが国の法規では(MPC)₀はトリチウムの性状に関係なく酸化物に対する値が定められている。

トリチウムの生物影響については、上記のほかいくつかの問題があり、これらの調査結果のまとめが多数報告されている^{(4)(7)~(9)}。本稿では環境の線量評価に関する生物影響の主要な問題を最近の文献⁽¹⁰⁾から引用し紹介する。

(1) 線質係数(QF) : 1965年以前のICRP 勧告では、0.03 MeV 以下の電子に対する $QF=1.7$ とされ、第1表の(MPBB)および(MPC)はトリチウム β 線の $QF=1.7$ として求められたものである。ICRP はその後の生

Present Techniques for Control of Tritium Release and Environmental Monitoring in Fusion Research, Yoshikazu YOSHIDA, Yuji NARUSE, Toshinori IJIMA.

(1979年 2月5日 受理)

物学的効果の調査結果からトリチウム β 線の QF を1より大きくする特別な根拠はないとして、最近の勧告⁽¹¹⁾⁽¹²⁾では $QF=1$ を採用している。ただし、一部の分野で $QF=2\sim4$ を示唆する報告もある。

第1表 トリチウムの最大許容身体負荷量(MPBB)と最大許容濃度(MPC)⁽¹⁾

区分	身体負荷量 (mCi)	体液中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) [†]	空气中濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)		
			HTO	HT (T_2)	HTO
MPBB	連続摂取 (5 rem/yr)	1	0.023		
	単一摂取 (2.5 rem)	15	0.35		
MPC	管理区域 (週40hで5 rem/yr相当)		5×10^{-6}	$2 \times 10^{-3} \dagger\dagger$	1×10^{-1}
	一般区域 (週168hで0.5 rem/yr相当)		2×10^{-7}	$4 \times 10^{-5} \dagger\dagger$	3×10^{-3}

[†] 標準人(体重70kg, 体内水量43kg)のMPBBに相当する体液中濃度

^{††} サブマージョンモデルで皮膚の β 線被曝線量が管理区域、一般区域に対し、それぞれ30と3 rem/yrに相当する。

(2) 有機物との結合による長半減期成分：体内に取り込まれたHTOの一部は、組織の有機化合物に取り込まれ、再交換または組織有機物の分解過程により、ふたたび体液のHTOとなって排出される。したがって、体内に取り込まれたHTOは前述の10日前後の半減期で排出されるほかに、一部は体内に保留されてゆっくりと排出される成分(生物学的半減期が30~40日と300~600日の2成分)があるが、後者の割合は極めて小さくその線量寄与は全線量の20%以下である。

(3) 生体重要分子への取り込み効果：体内に取り込まれたトリチウムの一部はRNAやDNA分子中に取り込まれ、身体的および遺伝的影響を与える可能性が考えられるが、現在までの多数の報告では、その効果が特に危険性を増すことは示されていない。

(4) 核変換(Transmutation)効果：細胞分子に結合したトリチウムの壊変によってH原子がHe原子に変ることによって生ずる核変換効果は、細胞レベルおよび動物実験結果から、放射線の効果に比べて重要ではないことがわかっている。

以上が現在の結論と考えてよいが、今後低レベルトリチウムの生物影響に関する研究をさらに進めることの必要性も指摘されている。(吉田芳和)

II. トリチウムの放出低減化技術

核融合炉においてはD-T系の燃料を用いるため、トリチウムの製造システム、炉における燃料給排気システム(トリチウム精製・循環システム)およびブランケット処理システム、トリチウム廃棄物処理システム、トリチウム格納システム等のトリチウム燃料サイクル技術の確立と、それを支える幅広い工学基礎研究が必要になる。米国においては、Mound Lab., LASL, LLNL, Sandia Lab. などの研究機関において、トリチウムに関する広範囲の研究を実施しているが^{(13)~(23)}、このうちMound Lab.のTECL(Tritium Effluent Control Laboratory)は⁽¹³⁾、小規模の施設ながらトリチウムに係わる安全対策と放出低減化技術が講じられており、今後わが国において核融合関連のトリチウム研究施設の建設を進めるとき、最も参考となるものと考えられる。そこで、本章ではTECLを中心にして、トリチウム研究施設におけるトリチウム除去システムと、廃棄物処理システムとについて述べ、トリチウム取扱いに関する基本事項を明らかにする。

1. TECLの概要^{(13)~(15)}

Mound Lab.では大量のトリチウムを取り扱っているが、当初の設計・運転には、作業者の安全確保と施設の境界において濃度基準(Radioactivity Concentration Guide, RCG)を満足すべく、排気系の空気流量をできるだけ大きくして希釈効果を上げるよう考慮が払われていた。しかし、1970年のALAP(As low as practicable)の考え方にに基づき、対象となる濃度点を施設の境界からスタックの放出口に変更し、スタックにおける濃度をRCGの10%以下となるようにするため、種類の改造および装置の新設を行なった。この結果、トリチウムの放出量は、第1図に示すように低下した(1980年の目標値は5,000 Ci/yrである)。

第1図 Mound Lab.におけるトリチウム放出低減化の実績と目標値⁽¹³⁾

TECLは⁽¹³⁾、このような背景のもとに、将来の核融合炉のトリチウム格納システムを念頭におき、装置お

よび設備から漏洩または排出されるトリチウムを捕集し、大気中への放出を RCG の 10% 以下に保持するための技術を開発することを目的として建設された小型の実験施設である。本施設は、他の大量トリチウム取扱施設から隔離され、トリチウム放出を制御し、インベントリー管理が確実になされるよう配慮されている。

第 2 図は、TECL のレイアウトを示したものである。本施設は実験室、装置室、制御室および更衣室から構成されており、トリチウムの取扱い量は最大 3×10^4 Ci である。

第 2 図 Mound Lab. のトリチウム取扱い施設 (TECL, 取扱い量 $\sim 3 \times 10^4$ Ci)⁽¹³⁾

実験室 (約 60 m^2) には、写真 1 に示すように、4 台のグローブボックスと 1 台のパスボックスが配置されている。大型のグローブボックスには水素同位体分離用の

の深冷分離装置が、小型の 3 台のグローブボックスには小規模の実験装置が設置されている。グローブボックス雰囲気ガスとしては He を使用し、操作圧力は 1 in. 水柱程度の負圧である。パスボックスは、実験器具や材料の搬出入または除染用として使用され、雰囲気ガスとして空気が用いられている。

装置室 (約 100 m^2) には、3 種類のトリチウム除去システムが設置されている。GADS (Glovebox Atmosphere Detritiation System) はグローブボックス雰囲気である He からトリチウムおよび混入微量空気を除去するためのものであり、ADS (Air Detritiation System) はパスボックス雰囲気である空気からトリチウムを除去するためのものである。また、ECS (Emergency Containment System) は異常時に作業エリアに漏洩したトリチウムを捕集するための装置である。以上のように、平常時および異常時を対象としたトリチウム除去システムが完備され、作業者の被曝防止および環境への放出低減化が図られている。

このほか、Mound Lab. では共通設備として、真空排気装置からの排ガス (有機物蒸気を含む)、不活性雰囲気ガス精製システムおよびパスボックスからの汚染ガス、除染や保守作業のときに発生する排ガス (溶媒蒸気等) など種々の装置の排ガスからトリチウムを除去して環境へのトリチウム放出を低減化させることを目的とした ERS (Effluent Removal System) を設置している⁽¹⁴⁾。このシステムは、広濃度範囲の HT, HTO を捕集でき、比較的多量の水分、油および有機物が含まれていても対処できることが要求されるので、多目的シ

手前のグローブボックスには水素同位体分離用の深冷分離装置が設置されている。
中央の実験中の小型ボックスはパスボックスである。

写真 1 TECL 内のグローブボックス

システムとなり、装置は複雑で大型となる。

制御室(約30 m²)には、トリチウム除去システムの制御計、モニタ類、警報システムが設けられている。異常時には、制御室においてトリチウム除去システムを遠隔操作により運転できる。

室の換気は、コールド区域→実験室→装置室の方向に流れ、各室間の差圧は0.1 Torr 程度である。実験室、装置室の床面、壁面、天井は通常のホット実験室と同じであり、トリチウムに対して特別の考慮は払われていない。

トリチウムの取扱いには、前述したように、グローブボックスが用いられる。グローブボックスの材料としては通常、本体にはステンレス鋼、操作面(窓)には強化ガラス、グローブにはネオプレン、ブチルゴムが採用されている。グローブボックス製作上の問題である漏洩量については、1測定点で $10^{-8} \sim 10^{-9}$ atm·cc/s、1台当りで $10^{-5} \sim 10^{-6}$ atm·cc/s という報告もあるが⁽¹⁵⁾、これは構成材料(特にグローブ材)からの透過量とのバランスを考慮して決定すべきである。第3図は、グローブ材として使用される各種ゴムについてトリチウムの透過速度を示したものである⁽¹⁶⁾。これより、HTOの透過速度はHTよりもほぼ2桁大きく、材料としてはブチルゴムが優れていることがわかる。このようなことを考慮して、Mound Lab. では、ブチルゴ

第3図 各種グローブ材のトリチウム透過速度⁽¹⁶⁾

ムを主体としたグローブを採用している。グローブボックスの取扱いに関しては、グローブポートに密閉用カバーを設け、使用に先立ちグローブを透過したトリチウムを真空排気したり、グローブボックス作業で使用する保護用ゴム手袋を適当な間隔で交換して、被曝を防止することが必要である⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾。

2. トリチウム除去システム

トリチウム除去システムにおけるトリチウムの捕集の原理としては、一般に、(A)トリチウムガスを酸化して水分の形でモレキュラーシープなどに吸着させる方法^{(13)~(16)(18)(19)(21)~(24)}、(B)極低温(液体窒素温度)で不純物ガス(トリチウムを含む)をモレキュラーシープなどに吸着させる方法⁽¹³⁾が採用されている。

第4図は、(A)の原理に基づくトリチウム除去システムとして、Mound Lab. のADSのフローシートを示したものである⁽¹³⁾。パスボックスからのトリチウムガスを含む空気は、フィルタを通りブローアにより本システムに供給される。まず、ガス-ガスの熱交換器により予熱されて触媒反応器に入る。触媒反応器は、ヒーターにより150~540°Cの温度に加熱される(設定温度は炭化水素の有無による)。触媒としては、Engelhard No. A 16648(DEOXO 触媒)が用いられている。ここで、トリチウムは空気中の酸素と反応してHTO(水蒸気)となる。触媒反応器を出たHTOを含む空気は、熱交換器で室温まで冷やされてブローアにより乾燥器に送られる。乾燥器にはモレキュラーシープLinde type 13Xが充填されており、ここで空気中のHTOが除去される。ADSで処理された空気は再びパスボックスに戻る。

本システムの不純物除去仕様は、次のとおりである。

不純物	入口濃度(ppm)	出口濃度(ppm)
H ₂ O	30,000	10
CH ₄	1.0	0.001
C ₃ H ₈	1.0	0.001
H ₂ (T ₂)	1.0	0.001

すなわち、本システムが得られる除染係数は、炭化水素およびトリチウムに対し1,000である。

以上は、最も基本となるプロセスについて述べたものであるが、実際には各場合に応じて次のような考慮を払う必要がある⁽²⁴⁾。

(1) 処理すべきガス中のトリチウムの化学形が水素ガスの場合：触媒反応器の操作温度は約180°C程度でよい。

第 4 図 パスボックス雰囲気ガス精製システム(ADS)のフローシート (13)

第 5 図 グローブボックス雰囲気ガス精製システム(GADS)のフローシート (13)

(2) 処理すべきガスに炭化水素を含む場合: 触媒反応器の操作温度は約 500°C 程度とする。

(3) 処理すべきガスが不活性ガス(Heなど)の場合:

予熱器の前に空気または酸素を添加する。

(4) 高除染係数が要求される場合: 乾燥器を2基直列に設け, その中間に水を添加する方式(Interstage

Water Addition Swamping System)を採用する。

(5) 大量のトリチウムガスが実験室に漏出するという異常時に使用する場合：乾燥器にあらかじめ水分を飽和させておき、H-Tの同位体交換反応を利用する。

(6) 乾燥器を再生し繰り返し使用したい場合：循環用ブローヤ、予熱器、冷却器、水分(HTO)トラップなどからなる再生システムを別に設置する。この場合には、乾燥器は2系列設けることが望ましい。

第5図は、(B)の原理に基づくMound Lab.のGADSのフローシートを示したものである⁽¹³⁾。グローブボックスから排気されたHeは、ガス-ガスの熱交換器(予冷器)に導かれて冷却される。ここで、He中のトリチウムを含む水蒸気は大部分除去される。ついで、液体チッ素で冷却されたモレキュラーシープ吸着塔(Linde 5Aが300lb充填されている)に入る。本システムの設計条件は、O₂, N₂, H₂O, CO₂, CmHn, H₂, T₂などの不純物について、出口濃度が1ppm以下になることである。特に水素同位体については、トリチウムを含めて出口で0.01ppmを超えないようにしている。モレキュラーシープ吸着塔の操作条件は77°K, 大気圧付近である。なお、本システムの主要部は、図に示されているように、断熱用のコールドボックス内に収納されている。

本システムは2系列あり、捕集-再生操作が交互に行われる。熱交換器に捕集された水分は、液体貯留タンクに集められる。モレキュラーシープ吸着塔の再生は、120°Cに加熱してHeをバージして行う。

以上、Mound Lab.における代表的なトリチウム除去システムを例に挙げて説明したが、いずれの施設におけるトリチウム除去システムも、その使用目的に応じて、原理(A)または(B)を変形して設計したものと考えてよい。

3. トリチウム廃液の固化

Mound Lab. では大量のトリチウムを取り扱っており、各種のトリチウム除去システム(ERS, GADS, ADS, ECS など)および真空ポンプなどからHTOや油廃液が排出される。これらの廃液は、直接配管輸送(2重管を通して真空輸送)または所定の容器に詰められて第6図に示すトリチウム廃液処理施設LWPF(Liquid Waste Packaging Facility)に搬入される⁽¹⁷⁾。

本施設では、まず、処理すべきトリチウム廃液を攪拌(空気攪拌し、その排気はERSで処理)、サンプリング(正確に1l採取)、分析(インライン方式のカロリメータで測定)し、トリチウム量を計量する。本分析法の

第6図 トリチウム廃液処理施設(LWPF)の配置図⁽¹⁷⁾

精度は±1mW(トリチウム量にして3mg)である。計量されたトリチウム廃液は、第7図に示す3重の容器内で所定の固化剤と混合して固化する。

第7図 トリチウム廃液の固化と包装のための容器⁽¹⁷⁾

トリチウム廃液固化容器および固化剤の仕様は次のとおりである。

(1) 固化容器

第1次容器：硬質のポリエチレン、ポリプロピレン(ないしは、同等の耐食性、耐衝撃性をもつ材料)製の気密容器で、第2次容器(115l)に密着挿入できる大きさの容器(100l)。

第2次容器：アスファルトでコーティングされた115lの鋼製の容器。

第3次容器：210lの鋼製の容器。

(2) 固化法

水溶液の処理：水溶液/(セメント+石膏)の混合割合(重量)を最大で1/3とする。

オイルの処理：オイル/バーミキュライトの混合割合を最大で2/1とする。またはオイル/Absorbal

の混合割合を最大で2/3とする。

(3) トリチウムの処理量

1 容器当りのトリチウム量は 7×10^4 Ci (~ 7 g)

以下とする。

第8図は、以上の方法で処理した固化容器を水中に浸した場合のトリチウム透過率測定結果の1例を示したものである。図には3.80 gのトリチウムが含まれている水溶液を処理した場合の透過率が示されているが、年間の透過率は処理量に対し 7×10^{-9} に過ぎない。

第8図 トリチウム廃液固化容器からのトリチウム透過⁽¹⁷⁾

Mound Lab.では、このようなトリチウム透過試験を多数の固化容器について実施しているが、いままでの測定結果を総合すると、年間の透過率は 10^{-6} 以下といわれている。(成瀬雄二)

Ⅲ. トリチウムの環境管理

1. モニタリング

トリチウムは前述のように、その放出β線の飛程が極めて短いので、その測定にはガス捕集型電離箱やガスフローカウンタのように検出器内にトリチウムを導入する方式、またはプラスチックや液体シンチレータのように直接接触する方式の検出器が用いられる。また、トリチウムの測定方法については論文^{(25)~(28)}やマニュアル^{(29)~(30)}などが多数発表されている。特に、NCRP レポート⁽²⁶⁾には、各種の測定方法が検出感度順にまとめられ、連続測定の可否など適用上の特徴が示されている。本節では、比較の実用化されている測定方法を中心に紹介する。

(1) 排気モニタリング

空気中トリチウムの測定方法としては、① 試料空

気を検出器に直接導入して測定する方法、② 空気中の水蒸気を捕集(トリチウムガスの場合は触媒などにより酸化後捕集)し、その捕集水中のトリチウム濃度を計測することにより空気中トリチウム濃度を求める方法の2つがある。これらの測定方法のうち、比較の実用化されている方法とその主な特徴を第2表⁽¹⁾に示す。電離箱型モニタは、トリチウムの性状に関係なく空気中の全トリチウム濃度を連続的に測定するもので、排気中など空気中のトリチウム濃度の監視の基本的測定器として広く用いられているが、第2表に示される特徴のほか、高濃度トリチウム測定後の内部汚染によるメモリー効果などの欠点がある。外部放射線の影響を除去するためにはγ線補償型のものが用いられる。

第2表 空気中トリチウム濃度測定方法の比較⁽¹⁾

試料採取方法 [†]	捕集材・計測器	検出限界 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)	備 考
気体状で測定			
直接捕集方法	ガス捕集用電離箱(容積1ℓ程度) - 振動容量型電位計	2×10^{-6}	半減期などの測定により他の放射性ガスとの分離測定可能
	電離箱式モニタ (γ線補償型あり)	10^{-5} $\sim 10^{-6}$	他の放射性ガスとの分離測定は困難、連続測定可能
	比例計数管	10^{-6} $\sim 10^{-7}$	同上
液体状で測定			
冷却凝縮捕集方法	水蒸気凝縮(コールドトラップ)-L.S.C ^{††}	10^{-9}	他の放射性ガスとの分離捕集可能。温度、湿度の測定必要
固体捕集方法 ^{†††}	モレキュラーシーブ、シリカゲル-L.S.C	10^{-9}	他の放射性ガスとの分離捕集可能
液体捕集方法 ^{†††}	水バブラー-L.S.C ^{††}	10^{-6}	同上

[†] 試料採取方法の定義は文献⁽¹⁾による。

^{††} 液体シンチレーションカウンタ

^{†††} 水蒸気に対する捕集効率90%以上になるように、捕集材量および試料空気吸引流量を定める必要がある。

電離箱型モニタの検出感度を $1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下まで向上させるためには、次の方法が用いられる^{(13)~(15)}。

- (1) 大容積(20~50ℓ程度)の電離箱を用いる。
- (2) 低線量率の場所においてもγ線補償型電離箱を用いて外部放射線の影響を補償する。
- (3) メモリー効果を低減する方策を講ずる。そのため1日1回程度定期的(高濃度のトリチウムが通過したときにはその都度)にバルブの切換えなどにより、乾燥した清浄空気(できれば高温の空気)を電離箱に一定時間流通させることにより、トリチウムによる内部汚染を防止する。ほかに電離箱

内面の金メッキも内部汚染低減に用いられている。

電離箱を用いて他の β 核種を分離測定する方法として、トリチウム β 線のみを透過しないような薄い壁で隔離した同心円筒型電離箱が開発されている⁽³¹⁾。また、比例計数管を用いて 2×10^{-8} 程度の低濃度まで測定できるようにするため、ガードカウンタと逆同時計数回路を付けた比例計数管(有感容積 2.27 l)式モニタが試作されている⁽¹³⁾。

第2表のうち、空気中の水蒸気を捕集して計測を行う方法は、水蒸気成分を(MPC)_aの1/1,000以下の濃度まで測定できるが、連続測定監視には不向きである。ただし、冷却凝縮方法または液体バブラ捕集方法とアントラセン・フローセルまたは液体シンチレータ・フローセルとを組み合わせることにより連続測定を行うこともできるが、その場合の空気中濃度の検出限界濃度は、非連続測定の場合に比べて2~3桁高くなる⁽²⁸⁾。

大量のトリチウムガスを取り扱う施設の排気モニタリングにおいては、電離箱型モニタにより全トリチウムの濃度を連続監視するとともに、水蒸気成分を連続サンプリングして定期的に測定するのが一般的である。例として、Mound Lab. の TECL における排気モニタリング方式を第9図⁽³²⁾に示す。この場合、液体バブラと貴金属触媒との組合せにより水蒸気とガス成分が前段と後段のバブラにそれぞれ分離捕集され、一定期間中のそれぞれの放出量が定量される。

第9図 トリチウムのガスと水蒸気成分の分離捕集用サンプル⁽³²⁾

Mound Lab.においては、バブラ液には、サンプリング中の蒸発と凍結を防止するためにエチレン・グリコールが使用されている⁽³³⁾⁽³⁴⁾が、捕集原理は水バブラと同様であって、上流側バブラ2段の捕集効果は99%以上と報告されている。また、バブラの代わりにシリカゲルなどの捕集剤を用いることもできる。

(2) 排水モニタリング

排水中のトリチウムのモニタリングには、一般に廃

液タンクなどから水試料を採取し、液体シンチレーション計測する方法が用いられ、最近の技術では $1 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下を充分検出できる⁽³⁵⁾。他の核種が混合しているときは蒸留水を計測する。排水中のトリチウムの連続測定にプラスチックシンチレーション検出器⁽²⁵⁾⁽³⁶⁾を用いる方法が開発されている。

(3) 施設周辺環境モニタリング

Mound Lab.⁽³⁴⁾と LASL⁽³⁷⁾からの1976年における平常稼働時のトリチウムの環境への放出量は、それぞれ約6,000 Ciと約2,000 Ciで、取扱い量に対する放出割合は0.1~0.01%/yrといわれている。このように大量のトリチウムが取り扱われる場合には、施設外環境におけるトリチウムのモニタリングが必要になる。モニタリングの対象は、トリチウム水蒸気のほか、表面水(河川水、池水など)、地下水、土壌や農作物中のトリチウム水などである。

わが国で最近定められたトリチウム分析法⁽³⁰⁾には、原子力施設周辺環境におけるトリチウムモニタリングの対象となる試料の採取法と分析法が詳細に述べられている。

トリチウム水蒸気の採取には、一般にシリカゲル捕集材を用いるが、Mound Lab.⁽³⁴⁾では前述のエチレングリコール液体バブラを用いている。空気(水蒸気)については、連続採集された試料を定期的に、例えば2週間ごとおよび事故的放出のときはその都度測定する。試料中トリチウム濃度は、空気試料の場合は捕集水を、その他の試料の場合は蒸留水または凍結や減圧などの方法による抽出水を、液体シンチレーション計測して求める⁽²⁶⁾⁽³⁷⁾。

(吉田芳和)

2. 環境線量の評価

環境へ放出されたトリチウムが人間に放射線被曝をもたらす経路(被曝経路)は他の放射性物質の場合と同様であるが、第1章で紹介されているようなトリチウム特有の性質のために、被曝経路の重要性について異なる点がいくつかある。特に、トリチウムの化学形態によってその差異は大きい。トリチウムが大気中に放出される場合には、まず拡散中に放射される β 線の皮膚照射がある。この被曝経路による被曝線量は次式から推定することができる⁽³⁸⁾。

$$D = 7.8 \times 10^9 f_s E \bar{X} = 4.4 \times 10^7 f_s \bar{X} \quad (1)$$

ここで、 D : 皮膚線量 (mrem/yr)

f_s : 皮膚不感層の遮蔽係数(10^{-4} より小さいであろう)

E : 1崩壊当り β 線として放出されるエネ

ルギーの平均値(5.7×10^{-3})(MeV/dis)

$\bar{X}$: トリチウムの地表付近年間平均濃度
($\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$)

トリチウムガスは人体にはほとんど取り込まれないが(第1章), 酸化トリチウム(HTO)の場合には呼吸摂取や経口摂取も考える必要がある。呼吸および皮膚浸透による被曝線量は次のように得られる。

$$D = k_a R \bar{X} \quad (2)$$

ここで, D : 内部全身線量 (mrem/yr)

k_a : $1 \mu\text{Ci}$ の HTO を取り込んだときの 50 年積算線量(線量係数) (mrem/ μCi)

R : 呼吸量 (cm^3/yr)

また, 経口摂取では

$$D = k_o W \Phi \bar{X} \quad (3)$$

ここで, D : 注目する食物(飲料水, 牛乳も含めて)の摂取による全身線量 (mrem/yr)

k_o : 経口摂取による線量係数 (mrem/ μCi)

W : 食物摂取量 (g/yr, l/yr)

Φ : 大気中の HTO の食物への移行係数
($\text{cm}^2/\text{g}, \text{cm}^2/\text{l}$)

Anspaugh らは HTO の植物への移行に関する研究をレビューして, 次のモデルを提唱した⁽³⁹⁾。

$$C = 0.5 \bar{X} / H \quad (4)$$

ここで, C : 植物水分 1g 中の HTO 量 ($\mu\text{Ci}/\text{g}$)

H : 絶対湿度 (g/cm^3)

0.5: 大気水分中 HTO の植物水分中へ移行する割合

Morley らは, HTO の連続放出時では人間が摂取する水分中の濃度は大気水分中の濃度と等しいと考えた⁽⁴⁰⁾。また Baker らは, 食物中のトリチウム-水素比(T/H)は大気水分中の T/H に等しいと想定した⁽⁴¹⁾。

米国原子力規制委員会(U.S.NRC)は, 軽水炉から放出される HTO の葉菜や牛乳への移行を Anspaugh らのモデルを用いて, 次のように推定した⁽⁴²⁾。

$$C_o = 0.75 C \quad (5)$$

$$C_m = 0.75 C_m F_m \quad (6)$$

ここで, C_o : 葉菜または牧草中の HTO 濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{g}$)

0.75: 葉菜または牧草 1g 中の体液量

C_m : 牛乳中の HTO 濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{l}$)

M_c : 乳牛の牧草摂取量 (g/d)

F_m : HTO $1 \mu\text{Ci}/\text{d}$ 摂取率のときの牛乳中濃度 (d/l)

これら C_o, C_m をわが国の線量評価指針⁽⁴³⁾ のモデル

に用いれば, (3)式の Φ はそれぞれ次のようになる。

$$\text{葉菜摂取} \Phi = C_o f_i f_m f_d \quad (7)$$

$$\text{牛乳摂取} \Phi = C_m f_i f_m f_c \quad (8)$$

ここで, f_i : HTO が移行した葉菜, 牛乳の摂取
期間の年間割合

f_m : 市場希釈割合

f_d : 調理時 HTO 残留割合

f_c : HTO の減少を考慮した補正係数

わが国の主食である米類についても(4), (5)式が適用できれば, Φ は次のようになる。

$$\Phi = f_m C_o (1 - e^{-\lambda_{ef} T}) / T \lambda_{ef} \quad (9)$$

ここで, λ_{ef} : 摂取までの HTO 減少率 (d^{-1})

$T = 365$ 日

(1)~(3)式をまとめると $D = A \bar{X}$ と表わせる。そしてどの被曝経路が重要かはこれら A の比較から理解されよう。関連パラメータに第3表の値を用いると第4表のような A が得られるが, 呼吸経路が最重要といえる。葉菜や牛乳摂取経路の寄与は呼吸経路より1桁小さい。この点はこの放射性物質の場合と異なるところである。米類の摂取経路が比較的大きな寄与をするように見えるが, 実際には刈取りから摂取までのトリチウムの減少があり, 寄与は小さいのではなかろうか。しかし, 定量的な判断のためにはさらに研究が必要である。他の食物摂取経路については移行モデルなどの開発は必要であろうが, 移行過程においてトリチウムの濃縮はほとんどないので, あまり大きな寄与はないと想像される。飲料水摂取経路については, 放出されるトリチウムの実際の移行過程を考察する必要があるだろう。

第3表 大気中に放出される HTO による被曝線量の計算に用いたパラメータの値

パラメータ	使用した値	備考	文献
線量係数 k_a (mrem/ μCi)	0.25	成人の全身	(5)
線量係数 k_o (mrem/ μCi)	0.13	"	(5)
呼吸量 R (cm^3/yr)	7.3×10^9	成人	(5), (43)
絶対湿度 H (g/cm^3)	1×10^{-5}	大気温度 20°C 相対湿度 70%	
乳牛の牧草摂取量 M_c (g/d)	5×10^4		(42)
牛乳への移行率 F_m (d/l)	1×10^{-2}		(42)
米類摂取までの減少率 λ_{ef} (d^{-1})	0	仮定	
葉菜摂取量 W (g/yr)	3.65×10^4	成人	(43)
牛乳摂取量 W (l/yr)	73	"	(43)
米類摂取量 W (g/yr)	9×10^4	1974年度 全国平均	(44)

第4表 大気中に放出されるトリチウムによる被曝線量の被曝経路別比較
〔被曝線量〕 $=A \times$ 〔地表付近空気中濃度〕

被曝経路	$A \left(\frac{\text{mrem/yr}}{\mu\text{Ci/cm}^3} \right)$	被曝臓器	備考
β 線外部被曝	$4 \times 10^3 f_s^\dagger$	皮膚	$f_s < 10^{-4}$
呼吸摂取	2×10^9	全身	
葉菜摂取	9×10^7	全身	
牛乳摂取	9×10^7	全身	
米類摂取	$4 \times 10^9 f_{ss}^{\dagger\dagger}$	全身	$f_{ss}=?$

$^\dagger f_s$: 皮膚不感層の遮蔽効果を考慮した補正係数

$^{\dagger\dagger} f_{ss}$: 米類採取から摂取までのトリチウム減少を考慮した補正係数

液体廃棄物中のトリチウムはすべて HTO と考えられ、魚類などの摂取による取込みに注目すればよい。さらに、魚類などのトリチウム濃縮比はほとんど1と考えられるので、全身線量 D (mrem/yr) は簡単に次のように推定できる。

$$D = k_0 \bar{C}_w \sum_i W_i \quad (10)$$

ここで、 $\bar{C}_w$: トリチウムの海水中年間平均濃度 ($\mu\text{Ci/g}$)

W_i : 海産物 i の年間摂取量 (g/yr)

k_0 : dose factor

トリチウムガスが大気中に放出された場合、その拡散中に僅かながら HTO に転換して行くことが知られている。しかし、転換の様子についてはいまだ明確ではない。最近Burgerは、トリチウムの大気中における反応に関する研究をレビューし⁽²⁾、トリチウムガスの H_2O への置換や酸化による HTO への転換は触媒がなければきわめて小さいこと、光化学的效果が支配的であり、さらに長期間にはバクテリアの作用も重要とみられることを指摘している。Yangらは50~700 $\mu\text{Ci/cm}^3$ のトリチウムガスについて実験したが、トリチウムガスの β 線により発生する HTO の濃度変化が次のように与えられることを見出した⁽⁴⁵⁾。

$$dC/dt = 1.7 \times 10^{-3} C_0^2$$

ここで、 C_0 : T_2 の初期濃度 (Ci/l)

Burgerはこの関係が $C_0 \approx 10^{-3}$ Ci/l まで成立すると仮定して転換率を約 0.004%/d と見積った (Burgerはこの程度の濃度までは β 線の転換作用が可能と考えている)。Savannah River Plant では1974年に 4.8×10^6 Ci のトリチウムガスを放出する事故があったが、約5時間後に環境中で 0.2% の HTO が測定された⁽⁴⁶⁾。Burgerはこれらのレビューにより、転換率を決定するには充分情報が得られていないが 1%/d 以下である

と推定している。

Sutra-Fourcade は 50~700 Ci/ m^3 のトリチウムガスの酸化物への転換について次のような転換係数を得た⁽⁴⁷⁾。

酸化: $K (\text{m}^3/\text{Ci} \cdot \text{s}) = 1.72 \times 10^{-10}$ (乾燥空気中)

$K (\quad) = 3.3 \times 10^{-10}$ (乾燥酸素中)

同位体交換: $K (\quad) = 4.63 \times 10^{-10}$ (水分含有空気中)
Ballereau はトリチウム転換に関する研究のレビューの中で上記の結果を引用し、転換率が 0.2~2.8%/d となることを示している⁽⁴⁸⁾。

次に、転換率と被曝線量との関係を考察してみよう。トリチウムガスの事故的な大量放出を想定する。転換率を $\alpha (\text{d}^{-1})$ とし、拡散中の減衰や生成される酸化トリチウムの地表沈着を無視すると、拡散中のトリチウムガスの濃度と、生成される HTO の濃度は次のように表わされる。

$$\left. \begin{aligned} \chi_{\text{HT}} &= Q_{\text{HT}} e^{-(\alpha/u)x} \chi_0 \\ \chi_{\text{HTO}} &= Q_{\text{HT}} (1 - e^{-(\alpha/u)x}) \chi_0 \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

ここで、 Q_{HT} : トリチウムガスの放出量 (Ci)

u : 風速 (m/d)

x : 放出源からの拡散距離 (m)

χ_0 : 国の気象指針⁽⁴⁹⁾に定義される相対濃度 (h/m^3)

HTO の許容濃度が HT の 1/200 (第1表) であることに注目して、次の比を考える。

$$R = 200 \chi_{\text{HTO}} / (\chi_{\text{HT}})_{\text{max}}$$

ここで、 $(\chi_{\text{HT}})_{\text{max}}$: トリチウムガスの最大濃度

$\alpha = 1\%/d$, $u = 1 \text{ m/s} (= 8.6 \times 10^4 \text{ m/d})$, χ_0 に気象指針⁽⁴⁹⁾の拡散式を使うと、放出高が 200m 程度以下では常に $R < 1$ となる。実際には HTO の地表沈着により χ_{HTO} はさらに小さくなるので、転換率が 1%/d 程度であればトリチウムガスによる皮膚線量が最大となる。Otauy らは 0~10%/d 範囲の転換率の線量計算への影響を考察している⁽⁵⁰⁾。

(11)式から理解されるように、転換率が 1%/d の場合には約500日で、また 10%/d の場合には約50日でトリチウムガスの99%が HTO に転換される。したがって、地球規模の放射線被曝を考えるときには、すべて HTO とみなす必要がある。(飯嶋敏哲)

本稿では、トリチウムの放出低減および環境管理の技術の現状を紹介したが、今後研究開発が望まれる重要な課題として、低濃度トリチウムを対象とする除去

システムの実規模での性能向上, トリチウム廃棄物の処理, 処分, 保管技術の開発, トリチウムガスの環境中挙動(特に HTO への転換)の解明などが考えられる。

— 参 考 文 献 —

- (1) 吉田芳和, 成瀬雄二: *Radioisotopes*, 27, 160 (1978).
- (2) BERGER, L.L.: *BNWL-2113*, (1976).
- (3) PINSON, E.A., et al.: *J. Appl. Physiol.*, 10, 108 (1957).
- (4) 秋田康一: 原子力工業, 21(8), 14 (1975).
- (5) 日本アイソトープ協会: ICRP Publ. 2, (1960).
- (6) 同 上: ICRP Publ. 10, (1970).
- (7) BOND, V.P.: *Proc. Symp. Environmental Aspects of Nuclear Power Stations*, p. 287 (1971), IAEA.
- (8) ELWOOD, J.W.: *Nucl. Safety*, 12, 326 (1971).
- (9) STRAND, J.A., THOMPSON, R.C.: *BNWL-2022*, (1976).
- (10) POHWER, P.S., WILCOX, W.H.: *Nucl. Safety*, 17, 216 (1976).
- (11) ICRP: *Health Phys.*, 17, 389 (1969).
- (12) 日本アイソトープ協会: ICRP Publ. 26, (1977).
- (13) KERSHNER, C.J., BIXEL, J.C.: *MLM-2169 (OP)*, (1974).
- (14) RHINEHAMMER, T.B., LAMBERGER, P.H.: *23rd Conf. Remote Systems Technology*, p. 94 (1975).
- (15) idem: *WASH-1269*, (1973).
- (16) WITTENBERG, L.J., et al.: *Conf-760935-P4*, 1339 (1976).
- (17) MERSHAD, E.A., et al.: *Nucl. Technol.*, 32, 53 (1977).
- (18) CARSTENS, D.H.W.: 前出 (4), p. 94.
- (19) ANDERSON, J.L., et al.: 同 上, p. 77.
- (20) LASL Group H-3: *LA-6307-C*, (1975).
- (21) ANDERSON, J.L., SHERMAN, R.H.: *LA-6855-P*, (1977).
- (22) ANDERSON, G.W., et al.: *SAND-76-8053*, (1976).
- (23) COLLINS, M.F., TERRY, P.L.: *Management of Low-Level Radioactive Symposium*, (1977).
- (24) SHERWOOD, A.E.: *UCRL-78173*, (1976).
- (25) BUDNITZ, R.J.: *Health Phys.*, 26, 165 (1974).
- (26) NCRP Rep. No. 47, (1976).
- (27) SHANK, K.E., EASTERLY, C.E.: *ORNL/TM-5344*, (1976).
- (28) 穴沢 豊, 他: 保健物理, 7, 27 (1972).
- (29) 労働省安全衛生部労働衛生課編: 作業環境測定ガイドブック(4), 電離放射線関係, (1976), 作業環境測定試験協会.
- (30) 科学技術庁: トリチウム分析法, (1978).
- (31) JALBERT, R.A.: 前出 (4), p. 89.
- (32) BISHOP, C.T.: Personal Communication, (1977).
- (33) SHEEHAN, W.E., et al.: *MLM-2205*, (1975).
- (34) FARMER, B.M., et al.: *MLM-2416*, (1977).
- (35) IWAKURA, T., et al.: *IAEA-SM-232*, (1978).
- (36) MURAMATSU, M., et al.: *Nucl. Instrum. Methods*, 54, 325 (1967).
- (37) Environmental Studies Group: *LA-6801-MS*, (1977).
- (38) 原子力学会編: 環境被曝線量評価, p. 31 (1975).
- (39) ANSPAUGH, L.R., et al.: *UCRL-73195*, Rev. 1, (1972).
- (40) MORLEY, F., KENNEDY, J.W.: *BNES Conf. Nuclear Fusion Reactor*, p. 54 (1960).
- (41) BAKER, D.A., SOLDAT, J.K.: *BNWL-2020*, (1976).
- (42) U.S.NRC: Regulatory Guide 1.109, (1977).
- (43) 原子力委員会: 発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針, (1976).
- (44) 飯嶋敏哲: *JAERI-M 7757*, (1978).
- (45) YANG, J.Y., et al.: *USNRDL-TR-471*, (1960).
- (46) MARTER, W.L.: *DP-1369*, (1974).
- (47) SUTRA-FOURCADE, Y.: *CEA-R-3350*, (1967).
- (48) BALLEREAU, P.: *CEA-BIB-179*, (1970).
- (49) 原子力委員会: 発電用原子炉施設の安全解析に関する気象指針, (1977).
- (50) OTADUY, P., et al.: *CONF-760935-P4*, (1976).

☆昭和 54 年度会費をお払込み願います☆

(請求書が必要な場合にはご一報願います。)

本会の会計年度は 4 月 1 日～翌年 3 月 31 日です。会費は定款で全額前納となっておりますので, 54 年度会費・欧文誌代を未納の方は同封の振替用紙にてお払込み願います。

(10 名以上分の全額を上半期中に一括お払込み下されば 5% 引になります)

また, 炉物理・海外原子力研究・核融合炉研究の連絡会会費(各 1,000 円)も一緒にご送金願います。

正会員 5,000 円 学生会員 2,500 円 賛助会員 1 口 25,000 円(2 口以上)

「欧文誌」誌代 会員特価 2,000 円

会費を滞納されると, 年会・分科会の口頭発表申込みや「会誌」投稿等は受け付けません。上半期(4～9 月)半年間滞納すると, 10 月号から「会誌」が発送保留となり(「欧文誌」代滞納も同様), 来年 3 月までの 1 年間滞納すると「除名」になりますので, ご留意願います。(除名の場合は, 半年間既送分 6 冊の会誌代・欧文誌代はそれぞれ定価(800 円×6 冊=4,800 円)でお支払い頂きます。)