東海再処理施設から海洋放出されたトリチウムの 海水中濃度及び拡散状況

中野 政尚^{*1}, 國分 祐司^{*1}, 武石 稔^{*1}

(2008 年 11 月 12 日受理)

(2008 年 11 月 26 日再受理)

Tritium Concentration and Diffusion in Seawater Discharged from Tokai Reprocessing Plant

Masanao NAKANO,^{*1} Yuji KOKUBUN^{*1} and Minoru TAKEISHI^{*1}

The tritium concentrations in seawater collected around the Tokai Reprocessing Plant (TRP) were measured for 10,800 samples in 30 years from 1978. The tritium concentration, dilution factor and diffusion situation were investigated. As a result, the tritium was occasionally detected due to the discharge from TRP. But it was considered to be the result of expected diffusion assumed in the safety assessment. It was confirmed that the tritium concentration was much lower than the concentration limit defined in the law and that it was not concern of environmental safety.

KEY WORDS: tritium concentration, seawater, dilution factor, diffusion, reprocessing plant, discharge, safety assessment.

I 緒 言

東海再処理施設は、使用済核燃料中に含まれるウラン (U) 及びプルトニウム (Pu) を有効活用するために、ピューレックス法 (使用済核燃料を硝酸で溶解の後、TBP-ドデカンを用いた溶媒抽出等を行い核燃料物質と核分裂生成物を分離する方法) によって U 及び Pu を抽出する施設である。その際、使用済核燃料中に含まれる放射性核種を処理施設において可能な限り除去した後、放出基準に従い大気及び海洋から放出している。

再処理施設からの海洋放出については、再処理規則¹⁾

に基づき定められた告示²⁾によって、(線量告示³⁾別表に定める排水中濃度限度は適用されず、) 公衆の実効線量が3月間で250 μ Sv 以下となるよう、海洋における希釈効果を考慮して濃度規制及び総量規制を定めて、公衆の安全を担保している。

茨城県東海村において、(独) 日本原子力研究開発機構 (旧動燃, 旧サイクル機構) 東海再処理施設では使用済核燃料の再処理に関してプロジェクト規模での研究開発を実施している。1977 年からのホット試験, 1980 年の使用前検査を経て, 1981 年から本格運転しており, その累積処理量は 2008 年 3 月末現在で 1,140 トンである。東海再処理施設の低レベル放射性排水 (以下, 再処理排水と記す。) は一旦タンクに貯留し, 放射性物質濃度及び一般公害物質濃度が基準値の範囲内であることを確認後, 沿岸から約 3.7 km 沖の水深約 24 m の海中放出口から拡散効果を考慮して放出している (1991 年以前は旧海中放出口から放出)。

トリチウム (³H, T) は, 最大エネルギー 18.6 keV の

^{*1} (独) 日本原子力研究開発機構東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所放射線管理部; 茨城県那珂郡東海村村松 4-33 (〒319-1194)

Radiation Protection Department, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Tokai Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency; 4-33 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194, Japan.

E-mail: nakano.masanao@jaea.go.jp

弱いベータ線を放出する核種であり、生物による濃縮もないことが報告されている^{4,5)}ことから実効線量係数は 1.8×10^{-11} Sv/Bq と他核種に比べ比較的小さいが、再処理施設からの放出放射線量としては海洋放出される核種の中で最大である。

このため、1977年のホット試験開始後、茨城県からの要請に基づき、1978年7月から環境影響詳細調査として放出口を中心とした東海沖海域において毎月1回定期的に海水を採水し、トリチウム濃度を測定し、茨城県に報告している。これまで環境影響詳細調査によって、トリチウムの拡散状況を逐次確認してきた^{6~9)}。2007年3月をもって東海再処理施設は役務契約による発電用原子炉燃料の再処理が終了し、また、2008年6月をもって、環境影響詳細調査開始から満30年を迎えたことを契機として、これまでの調査結果をまとめたので紹介する。

II トリチウムの放出実績

再処理排水は低放射性蒸発処理施設（E, Z 施設）が1979年から稼動を始め、放出放射能の低減化を図っており、この蒸留処理のため塩濃度は極めて低い。また、水温は30度前後と海水温と比較して高いため、再処理排水の密度は海水の密度と比べて低く、水深24mに位置する海洋放出口から放出された排水は、海洋表層に密度躍層を形成し移流拡散していく。

東海再処理施設から海洋へのトリチウム放出量の推移をFig. 1に示す。トリチウムの海洋放出の傾向は、燃料処理量（発電量換算）と変動が一致している。

再処理施設保安規定で定める年間最大放出量（放出基準）は 1.9×10^{15} Bqであり、放出量が最も多かった1994年においても、同基準の4分の1程度であった。また、ホット試験開始の1977年度から2007年度までの31年

間にわたる累積放出量は 4.5×10^{15} Bqであった。この放出量は国連科学委員会2000年報告書¹⁰⁾に示される大気圏内核実験による放出量（ 1.86×10^{20} Bq）の約40,000分の1、宇宙線による自然生成平衡量（ 1.3×10^{18} Bq）の約300分の1である。

単位燃料処理量（発電量換算）あたりの放出量は、最大でも 5.6×10^5 (GBq/GWa)であり、フランスのラアグ再処理工場、英国のセラフィールド再処理工場と同程度であった。トリチウムの化学形は水（HTO）であるため、再処理施設からは燃料中インベントリのほぼ全量が環境に放出される。このような状況から、各国とも東海再処理施設同様、トリチウムについては燃料インベントリのほぼ全量が放出されているものと推定される。

III 試料分析・評価方法

3.1 試料採取・分析法

月1回の頻度で、原子力機構が所有するモニタリング船等によって、環境影響詳細調査採水地点（Fig. 2に示す再処理施設海洋放出口周辺の東西3km、南北10kmの海域内30地点）において、表層（水深約1m）の海水を採取した。採取は原則として月初めに実施することになっているが、気象、海象の状況により、月初めに実施できないこともあった。なお、1991年10月以前の海洋放出口は沖合約1.8km、水深約16mに敷設されていたが、常陸那珂港の建設に伴う沿岸域埋立のため沖合3.7kmの水深約24mに移設した。

採取した海水試料は蒸留法により精製し、蒸留した試料水8mlと液体シンチレータ（アクアゾル2）12mlを低カリウムガラスバイアル内で加温混合した。混合後、冷暗所にて1日以上静置したのち、液体シンチレーションカウンタ（旧パッカード社製 TRICARB 2260XL等）を用いて、トリチウムを250分間測定した。本測定方法において計数値の標準偏差の3倍から計算した検出限界値にサンプリング誤差や分析・測定に伴うその他の誤差を加味して、茨城県に報告する際の検出下限値を40 Bq/L（1988年までは $1 \text{ pCi/cm}^3 = 37 \text{ Bq/L}$ ）としている。この検出下限値は一般の環境モニタリングにおける検出下限値に比べて高いが、放出排水の最大濃度基準 2.5×10^7 Bq/Lに対して十分小さく、放出口周辺海域の安全評価のための拡散調査には適用できると考えられる。

3.2 バックグラウンド成分

第2章で述べた通り、海水中トリチウムは再処理施設のみならず、大気圏内核実験、宇宙線による原子核破碎反応によって生成されるバックグラウンド成分がある。

Fig. 1 Tritium amount discharged to sea and generated energy of the spent fuel reprocessed in Tokai reprocessing plant.

Fig. 2 Seawater sampling points of detailed investigation on the environmental effects. (left: from July 1978 to September 1991, right: from October 1991 to June 2008)

Fig. 3 Calculated concentration of tritium in surface seawater originated from the atmospheric nuclear testing and natural occurrence by cosmic ray.

国連科学委員会 1977 年報告書¹¹⁾によれば, 宇宙線によるトリチウム平衡生成量 $1.3 \times 10^{18} \text{Bq}$ のうち 35% が海洋の混合層, 30% が深海に存在する。深度 75 m までの海洋表面の体積が $2.7 \times 10^{16} \text{m}^3$ として, 宇宙線起因の表層海水中トリチウムの単純平均濃度を求めると約 0.017Bq/L となった。

また, 大気圏内核実験からのトリチウムの海水への寄与は時間と共に変化していくため, 単純に計算すること

は出来ない。そこで, 筆者が開発した「海洋環境放射能による長期的地球規模リスク評価モデル (LAMER)」¹²⁾を利用して, 大気圏内核実験からの表層海水中トリチウム濃度を計算した。計算結果を Fig. 3 に示す。1960 年代がピークであるが約 1Bq/L 程度であり, 2000 年で約 0.1Bq/L 程度の寄与である。

以上より, 宇宙線による自然生成, 大気圏内核実験からの放出を考慮しても, 現在のバックグラウンドは 0.12Bq/L 程度に過ぎないと考えられる。

なお, 日本分析センターの環境放射線データベース¹³⁾によって, 原子力発電所の影響が比較的少ないと思われる青森海域における, 2000 年度の海水中トリチウムを検索したところ, 全 82 件のうち 24 件が検出下限値未満, 残り 58 件の平均が $0.17 \pm 0.050 \text{Bq/L}$ であった。

以上から, 現在の海水中トリチウムのバックグラウンド濃度の推定値は $0.1 \sim 0.2 \text{Bq/L}$ 程度であると考えられる。

3.3 拡散計算による評価方法

東海再処理施設の安全審査における流下方位の軸上海水中濃度の経験的評価式は式 (1) (2) の通りである。

但し、 erf は誤差関数をあらわす。

$$C = \frac{q}{uHY} \text{erf} \left(\frac{Yu}{4\sqrt{ax}} \right) \quad (1)$$

$$\text{erf}(y) = \frac{2}{\pi} \int_0^y e^{-t^2} dt \quad (2)$$

C : 流下方位の軸上海水中濃度 (Bq/cm³)

q : 放射能放出率 (Bq/s)

u : 流れの速さ (cm/s)

H : 鉛直混合層の厚さ (cm)

Y : 水平面内での流れの軸 (x 軸) に垂直に測った拡散源の幅 (cm)

x : 軸上距離 (cm)

パラメータには、旧動燃による染料拡散実験によって得られた、 $u = 10(\text{cm/s})$, $H = 460(\text{cm})$, $Y = 200(\text{cm})$, $a = 0.1415$ を用いている。但し、1991 年以降は放出管を移設したため、鉛直混合層の厚さを変更した。水深と鉛直混合層の厚さは比例関係にある¹⁴⁾ものとして計算した $H = 690(\text{cm})$ を用いている。

IV 結 果

4.1 海水中トリチウム濃度

1978 年 7 月から行われた全 10,800 件の調査結果において観測された表層海水中トリチウムの濃度範囲を 10 年毎に整理したヒストグラムを Fig. 4 に示す。

分析操作等を考慮した検出下限値 (40 Bq/L; 1988 年までは 37 Bq/L) 未満のデータは 10,773 件 (99.75%)、検出下限値を超えるデータは 27 件 (0.25%)、また、そのうち計数値の標準偏差の 3 倍以上のデータは 1,970 件 (18.24%) あった。10 年毎に件数の推移を見ると、 3σ を超えるデータの数、1978 年～1988 年で 1307 件、1988 年～1998 年で 333 件、1998 年～2008 年で 330 件

Fig. 4 Number of each tritium concentration range.

と減少傾向にあった。

また、Fig. 2 に示したように、1991 年 10 月から放出口が約 2km 沖合に移動し、より深い水深 (16m → 24m) から放出されるようになったため、鉛直混合層厚さが大きくなる等、より拡散しやすい状況に変化した可能性がある。

これまでに観測された海水中トリチウム濃度の最高値は 1979 年 12 月 21 日に放出口直上で観測された 1700 Bq/L であった。40 (37) Bq/L 以上が検出されたポイントは、1 点 (1996 年 12 月採水) を除いて放出口周辺 1 km 以内あるいは南方向であった。2000 年から 2002 年にかけて放出口付近の水深 0.5m, 1.0m, 3.0m において流向流速計を設置し、連続観測した結果、放出口付近では流向頻度的に夏季を除いては南下流が非常に多いことが観測されている¹⁵⁾。さらに、東海沖の北端には久慈川が流入しているため、北へ行けば行くほど南下流が強くなると考えられるため、放出口よりも南で比較的高めのトリチウム濃度が検出されたと思われる。

検出下限値以上の濃度データについての距離別の海水中濃度範囲を Table 1 に示す。放出口からの距離が長くなるに従い、海水中トリチウム濃度が小さくなっていくことが確認されるとともに、濃度的にも法令に定める周辺監視区域外の水中の濃度限度 (60,000 Bq/L) と比較して十分小さく、環境安全上問題となるレベルではない。

4.2 希釈倍率

全測定地点の希釈倍率 (放出水中濃度を海水中濃度で割った値) を Table 1 に示す。全体での希釈倍率は、240 ~ 290,000 倍と計算された。比較的小さい希釈倍率 (240 ~ 1,600 倍) の全ては、放出中に放出口直上で採取した値である。放出後 3 時間 ~ 11 時間に採取した場合は 7,300 倍から 290,000 倍であった。また、距離別に見ると、距離が長くなるに従って希釈倍率が増加していくことが確認された。

4.3 拡散計算との比較

3.3 での (1) 式において、単位放出 (1 Bq/s) とした場合の相対軸上濃度 $C_R(x)$ を計算した。Fig. 5 に示すように、両対数グラフ上においては 10m 以遠で直線になった。旧海中放出口 (1) 及び現海中放出口 (2) における相対軸上濃度の近似式はそれぞれ式 (3) (4) となった。

$$C_{R1}(x) = 0.013401x^{-0.97113} \quad (3)$$

$$C_{R2}(x) = 0.0089340x^{-0.97113} \quad (4)$$

$C_R(x)$: 相対軸上濃度 ((Bq/L)/(Bq/s))

x : 軸上距離 (m)

Table 1 Concentration and dilution factor of tritium in surface seawater.

Distance from discharge port (km)	Number detected	Tritium concentration (Bq/L)	Dilution factor
0	5	89 ~ 1700	240 ~ 71,000
0.35	5	56 ~ 550	15,000 ~ 88,000
1 ~ 1.41	7	57 ~ 500	7,300 ~ 97,000
2 ~ 2.25	5	52 ~ 120	47,000 ~ 110,000
3	2	41 ~ 89	100,000 ~ 140,000
5	2	41 ~ 83	71,000 ~ 290,000

次に、トリチウムが検出されたデータについて、その採取位置から軸上距離 x (m) を決定した。また、採取直前の放出データから放出率を算出し、 $C_R(x)$ に乗じて軸上トリチウム濃度を計算し、実測値と比較した。Fig. 6 に比較結果を示す。

全ての実測値は計算値よりも低く、その比は概ね 1/1 ~ 1/100 程度であった。ホット運転以前に行われた染料拡散

実験結果では、その比は 1/1 ~ 1/10 程度だったが、実際の放出では、染料拡散実験のような流向軸上の採取ではなく、あらかじめ決められた格子点での採取であること等が原因で、染料拡散実験結果よりも約 1 桁低くなることがあった。しかしながら本拡散計算結果は実測値を上回ることではないため、安全評価としてはほぼ妥当である。

Fig. 6 において■で示される放出中の観測値が計算値よりも低くなる理由としては、以下の 2 点が考えられる。

- (1) 計算式のパラメータは拡散実験結果の中央（平均）値を与えるものではなく、ばらつきを包含するよう、少し過大（安全側）に計算されるように設定している。
- (2) (1) の式は流向が一定の定常モデルである。また、流速は拡散実験の結果に基づき 10 cm/s の固定値を用いている。これらのことから実際の放出時における流向、流速の変動及び放出終了後採取までの流向、流速の変化が計算値と実測値の違いを生んだものと思われる。従って流速が 10 cm/s より極めて遅い時などには放出口直上付近で計算とより高い濃度になる可能性も予想されたが、今回の調査ではそのよう

Fig. 5 Relative concentraion on the downstream axis. **Fig. 6** Comparison between the observed and calculated concentration.

な現象は確認されなかった。2000年から2002年にかけて放出口近傍に流向流速計を設置し観測した結果によれば、スカラー平均速度は水深0.5mで21cm/s、1.0mで18cm/s、3.0mで13cm/sであり¹⁵⁾、本計算で用いた流速10cm/sは、実測よりもやや小さい値である。

V 結 論

30年間に渡る東海再処理施設周辺海域の環境影響詳細調査によって10,800件の海水中トリチウムを測定した結果、再処理施設からの排水放出に起因するトリチウム濃度がスポット的に観測された。これらは、あらかじめ安全審査で評価された希釈倍率以上に希釈された予想通りの拡散であり、またその濃度は法令に定める周辺監視区域外の水中の濃度限度(60,000 Bq/L)に比べて十分に低く、環境安全上問題となるレベルではないことを確認した。さらに安全審査で用いた拡散式がやや保守的な評価の傾向を有し、ほぼ妥当であることを確認した。

参 考 文 献

- 1) 使用済燃料の再処理の事業に関する規則，総理府令第10号(1971)。
- 2) 核燃料物質の加工の事業に関する規則等の規定に基づき，線量限度等を定める告示，科学技術庁告示第13号(2000)。
- 3) 実用発電炉の設置，運転等に関する規則の規定に基づく線量限度等を定める告示，経済産業省告示第187号(2001)。
- 4) 小松賢志；水生生物系におけるトリチウムの挙動，放医研環境セミナーシリーズ—環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題(1983)。
- 5) 宮本霧子；環境水中のトリチウム，海生研ニュース，99(2008)。
- 6) 國分祐司，藤田博喜，中野政尚，小嵐 淳，竹安正則；再処理施設周辺の海水中トリチウム濃度について，日本保健物理学会第40回研究発表会(2006)。
- 7) 飛田和則，桜井直行，鈴木 猛，渡辺 均，清水武彦，住谷秀一，森澤正人，吉田美香，磯崎久明，磯崎徳重，晴山央一，磯野文江；動燃再処理排水環境影響詳細調査結果(2)(1988年10月—1991年9月)，PNC-TN8440 93-027(1993)。
- 8) 赤津康夫，片桐裕実，渡辺 均，森澤正人，森田重光，吉田美香，中野政尚，磯崎久明，磯崎徳重，大内 博，磯野文江；動燃再処理排水環境影響詳細調査結果(3)1990年10月—1996年3月，PNC-TN8440 97-011(1996)。
- 9) 片桐裕実，篠原邦彦，渡辺 均，森澤正人，仲田 勲，中野政尚，磯崎久明，磯崎徳重，磯野文江；サイクル機構再処理排水環境影響詳細調査結果(4)1996年4月—2000年3月，JNC-TN8440 2000-003(2000)。
- 10) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR); Exposures to the Public from Man-made Sources of Radiation. In: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York (2000)。
- 11) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR); Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations, New York (1977)。
- 12) 中野政尚；LAMER:海洋環境放射能による長期的地球規模リスク評価モデル，JAEA-Data/Code 2007-024(2008)。
- 13) 日本分析センター；環境放射線データベース，Available at <http://search.kankyo-hoshano.go.jp/>，閲覧2008年11月7日。
- 14) 水鳥雅文，片野尚明，仲敷憲和；鉛直重力噴流拡散予測モデルの開発，電力中央研究所報告，U88051(1988)。
- 15) 中野政尚，磯崎久明，磯崎徳重，根本正史，蓮沼啓一，北村尚士；開放型沿岸域における流れに及ぼす風の効果，海の研究，18, 37-55(2009)。

中野 政尚 (なかの まさなお)

名古屋市生まれ。名古屋大学工学部原子核工学科池辺研究室にて保健物理を学び，平成6年に旧動燃入社。2度の組織改組を経て，現在原子力機構サイクル工

研放射線管理部環境監視課技術副主幹。主な業務は，再処理施設及び核燃料使用施設の排水分析，環境試料分析，海洋及び陸上における放射性物質の拡散挙動研究。

E-mail: nakano.masanao@jaea.go.jp