総	説
---	---

一般環境におけるトリチウムの挙動と モニタリングのための予備知識

岩 倉 哲 男^{*1}

(1975 年 7 月 30 日 受理)

Behaviour of Tritium in the Environment and Preliminary Knowledges for Monitoring

Tetsuo IWAKURA^{*1}

An attempt is made to review behavior of tritium released into the environment in order to give preliminary knowledges for monitoring present and future levels of tritium in the environment. A systematic distribution of bomb-produced tritium on a global scale has been recognized from an evaluation of the precipitation data conducted by the IAEA-WMO Precipitation Network Survey. Latitudinal dependence and continental effect of the tritium concentration in precipitation were found pronouncedly. The mean residence times of several compartments of hydrological cycle for tritium are discussed topically. Recent tritium concentration in environmental water in Japan are summarized. Organically bound tritium in sediments, aquatic plants, fish, and foodstuffs sometimes showed higher concentration than tritium in ambient water. This is probably explained as memory effect or inheritance effect through eco-systems due to long residence time of organically bound tritium. Instrumentation, detection limit and dose calculation for tritium monitoring are proposed. Tritium surveillance activities conducted by U.S. Government are reviewed also historically with some representative data.

I は じ め に

トリチウムは、多くの放射性核種のなかで ^{59}Ni , ^{55}Fe などとともに、ICRP では、最大許容身体負荷量の一番大きいものの1つ、つまりもっとも障害の少ない核種の1つと考えられてきた。さらに、トリチウムの出す β 線のエネルギーがきわめて低く、これまで簡便な測定法がなかったこともあって、一般環境における放射性核種のサーベイ、ないしはモニタリングの意味での測定は、とくなくおざりにされてきた傾向が強い。それでも、核燃料再処理工場や、トリチウム生産炉が古くから稼動している欧米、とくにアメリカでは、サイト周辺のモニタリングはもちろんのこと、一般環境中の河川水、水道水、

降水を対象にした survey network が形成され、定期的なサンプリングと測定が実施されている(第6章)。日本でも、原子力発電所建設の伸長や、近い将来核燃料再処理工場が稼動を予定していることなどから、遅ればせながら放射能測定法基準化委員会において、トリチウム分析法のマニュアルを作成中である。このような時期にあたって、トリチウムの環境モニタリングに際しての基礎的知見ともいえる一般環境、つまり自然界におけるトリチウムの動向について、多くの先駆的研究者らの成果と筆者らの体験的知見をまとめてみた。その結果として総説的記述と解説的記述が混然と同居し、読みにくい面もあるだろうと思われるが、読者のご参考に値すれば幸いである。

II トリチウムの発生源とその挙動

一般環境に存在するトリチウムの発生源のおもなものとしては、1. 天然の核反応、2. 核実験、3. 原子炉および核燃料再処理施設、が考えられる。

^{*1} 放射線医学総合研究所環境衛生研究部; 千葉市穴川 4-9-1 (〒280)

Division of Environmental Hygiene, National Institute of Radiological Sciences; 9-1. Anagawa 4-chome, Chiba-shi. Chiba-ken.

第1表 天然トリチウムの分布
(BEGEMANN²⁾ による)

	分 布 (%)	濃 度 (TR)
水 圏	~90	≤10
対 流 圏		
水 蒸 気	0.1	≤80
水 素	0.02~0.2	$4 \times 10^3 \sim 3.5 \times 10^4$
メ タ ン	≤0.04	≤ 10^3
成 層 圏		
水	~10	6×10^5
水 素	0.004~0.007	$3 \times 10^3 \sim 6 \times 10^4$

1. 天然の核反応

1938年にSHERR, SMITH, BLEAKNEYは、もしトリチウムが一般の水の中に存在するとすれば、その濃度は水素原子 10^{12} 個に対してトリチウム原子1個以下であろうと推論した。さらに1947年には、EIDINOFFが一般の水中トリチウム存在量は水素原子 10^{17} 個に対し、トリチウム原子1個以下との評価を下した。その後、LIBBY, KAUFMAN, BEGEMANN, HARTECK, FIREMANといった地球物理、化学者により、天然におけるトリチウムの生成率と天然存在量の評価と実証が数多く試みられた。その結果、天然トリチウムの濃度は、表面水中で水素原子1個あたり、約 10^{-18} トリチウム原子、大気中の分子状水素で、水素原子1個あたり約 4×10^{-15} トリチウム原子であると評価された（この時点で、地球化学者たちは、トリチウム原子/水素原子 = 10^{-18} をもって1 T.U. (tritium unit) なる表現単位を導入し、その後も長く使用されて来たが、ICRU Report 10C¹⁾により、1 TR* (tritium ratio) と表現すべきであるとの勧告が出され、現在に至っている）。またトリチウムの天然生成率は、0.2~1.0 トリチウム原子/cm²/sec (1.6~8 メガキュリー/年)、平衡存在量は28~140 メガキュリーと評価された。BEGEMANN²⁾による天然トリチウムの地球上での分布を第1表に示す。深層地下水や深海水のように、降水との交換がほとんど行われない水には、トリチウムが全く含まれないか、ごくわずかしかな含まれていない。これらの水は、天然レベルのトリチウム測定の場合に、バックグラウンド測定用標準物質として重用される。天然トリチウムの生成率は、長年にわたって、ほぼ一定で推移してきているが、より詳しく調べてみると周期的に変動しており、グリーンランドや南極の氷のトリチウム濃度

の測定の結果から、この周期は、太陽活動 (sun spot の数)のそれと密接な関係のあることが指摘されている³⁾。

2. 核実験

1952年以来、大気中での核爆発実験が行われるようになり (米, Ivy tests), 人工的要因による一般環境へのトリチウムの注入が本格的に始まった。降水中に、そのきざしがはっきり確かめられたのは、1954年春の castle tests 直後からであり、LIBBYらのシカゴ大学グループの測定によれば、当時の降水中のトリチウム濃度は~450 TR の値に達した⁴⁾。その後も核爆発実験が続行され、それに伴って降水中のトリチウム濃度も増加をつづけたが、1958年春から行われた Hardtak tests 以降、成層圏爆発が主となったため、地表への降下には、それ以前の実験に比べて、ずっと時間がかかるようになった。1958年の末から1961年秋までのモラトリウムの後、ソ連、米国 (Dominic tests) による大規模な核実験が1962年末まで続き、約 500 kg (4,800 MCi) と推定されるトリチウムが成層圏に打上げられた。その結果、1963年には降水中のトリチウム濃度が未曾有の増加を示し、北半球高緯度地域では 5,000~7,000 TR にも達した。

このように、核爆発実験による大量の人工トリチウムの生成も、見方によれば、地球規模のトレーサー注入が行われたことを意味し、地球物理化学者、気象学者、水文学者にとって、またとない問題究明の好機が訪れたことになる。事実、LIBBY, BEGEMANN, MACHTA, SUESSといった著名な地球化学者をを中心に、多くの研究者が降水、大気中の水素、メタンのトリチウムを測定し、解析を行っている。とくに、ウィーンのIAEA (国際原子力機関)の研究グループは、WMO (世界気象機構)および、世界各国の研究所と協力し、全世界に65か国、155地点におよぶ network を組織し、降水中トリチウムの測定データを集めた。これらの膨大な数にのぼるデータは、IAEAより、Technical Reports Series として刊行されており⁵⁾、このデータにもとづいた、まとめと解析は⁶⁾、環境におけるトリチウムの動向についてのきわめて有益な、数多くの情報をわれわれに与えてくれる。そのおもなものを、前述の研究者たちの原著をも参照しつつまとめてみると、次のようになる。

(1) 季節的変動

北半球における降水中のトリチウム濃度には顕著な季節的変動があり、夏期 (6~7月) に年間の最高値、冬 (1~2月) に最低値を示す⁷⁾ (第1図)。これは ⁹⁰Sr に代表される、エアゾル状放射性降下物の北半球中経度地域における spring maximum, autumn minimum に比べて約1か月遅く、大気の炭酸ガス中の ¹⁴C の濃度変

* 1 TR = 3.2 pCi/l 水。

第1図 降水中トリチウム濃度の季節的変動
文献 7) より引用。

動⁸⁾よりも1~2か月早い。この差は、おのおのの放射性降下物の物理化学的性質の違いによるものと説明されている⁷⁾。

(2) 経年変動

北半球では、1963年に降水トリチウム濃度が最高値を示した後、1967年まではほぼ指数的に約1年の半減期で減少している。この年から中国の、また翌1968年からはフランスの核実験がはじまり、その影響で、夏のピーク時の値は1970年まで、ほぼ一定の値を保った(第2図)。

(3) 内陸と海洋の差

降水中のトリチウム濃度は、大陸内地域では、海洋地域よりもつねにかなり高く、全地球的に同じ傾向が見られる。長年にわたって観測を続けている、内陸部のウィーンおよびオッタワと、海洋部のバレンシア(アイルランド)のデータを比較すると、その差はきわめて明瞭である(第2図)。内陸ステーションにおける降水のトリチウム濃度の観測値と、同緯度における海洋ステーションの観測値の比をとってみると、「純」内陸ステーションおよびおもな大陸の東岸では3~4倍であり、西岸では

西風による希釈効果が見られ、1.2~2倍である。また北米大陸では、ロッキー山脈が南北に走っており、その影響で、山脈の東側デンバーで~10倍、ソルト・レークで~7倍におよんでいるが、ヨーロッパ大陸におけるアルプス山脈(東西に連なっている)付近では一般の内陸ステーションと似た値を示している⁶⁾。日本においても、木越ら⁹⁾が東京における大気水蒸気中のトリチウム濃度の測定から、大陸性気団におおわれたときはトリチウム濃度が高く、また海洋性気団の影響下では低くなることを指摘し、三宅¹⁰⁾らもトリチウム濃度と気圧の間には、よい正の相関のあることを示した。

(4) 緯度による変動

SCHELL らの解析⁶⁾によれば、多数の海洋ステーションにおける降水中のトリチウム濃度には、きわめて明らかな緯度依存性が見られ、10°N以北の北半球、10°S以南の南半球では、降水量で重みづけした各年のトリチウム濃度 $y(\text{TU})$ と緯度 ϕ との間には、

$$\log y = a\phi + b \quad (a, b \text{ は定数}) \quad (1)$$

なる関係が存在する(第3図)。最少自乗法により求めた a, b の値を、第2表に示す。勾配 a は北半球では緯度約13°ごとに、南半球では約16°ごとに倍増する。

b は経年変動によって変化する定数で、南半球では、経年変動がはっきり現れていないことがわかる。この緯度依存性についても、季節変動の場合と同様に、トリチウムと⁹⁰Srとはかなりの違いが観察される。1964年の例を第4図に示す。⁹⁰Srでは、南北両半球とも30°~50.の中緯度帯に降下量のピークが見られるが、トリチウムにはそれが無い。トリチウムの場合、海洋の蒸発水による希釈効果がかかなり支配的であることがわかる。

天然のトリチウムも、主として成層圏で生成されるとすれば、対流圏への降下のパターンは、核爆発由来のトリチウムと似たものとなると想像される。実事、核爆発

第2図 降水中トリチウム濃度の経年変化——内陸と海洋の差
文献 6) より引用。

第2表 最小自乗法により求めた式(1)中の a , b の値⁶⁾

年	南 半 球		北 半 球	
	a	b	a	b
1964	0.038176	1.63176	0.053414	3.625508
1965	0.038189	1.7002	0.052485	2.902727
1966	0.042000	1.52932	0.056451	2.240210
1967	0.042437	1.48358	0.0538307	1.919439

第3表 各種原子炉における 1,000 MWe あたりのトリチウム生産率¹¹⁾ (MCi)

原子炉の型	U-235	Pu-239	U-233
BWR	0.018	0.019~0.021	
PWR	0.0118~0.016	0.0136~0.0124	
重 水 炉	0.65~1.10	0.615~1.0	
高 温 ガ ス 冷 却 炉			0.015~0.021
軽 水 減 速 高 速 増 殖 炉	0.03	0.03	

第4表 軽水炉 1,000 MWe 年当りのトリチウム放出量 (Ci)

沸 騰 水 型		加 圧 水 型	
液 体 廃 棄 物 (液)	110	1 次冷却水化学シム, 容量調節系 (液)	1,200*
主復水器排気 (気)	0.028	エバポレータ残 留 物 (固)	20
原子炉建屋ベンチレーション (気)	45	原子炉格納容器 (スタックより) (気)	20
タービン建屋ベンチレーション (気)	45	2 次 冷 却 水 blow down (液)	7
		補 助 建 屋 ベンチレーション (気)	8
計		計	1,255

* 燃料被覆よりのトリチウムのもれを 1%, B によるトリチウムの生成を $10^3 \text{Ci}/1,000 \text{ MWe-年}$ とする。その他の条件は, 文献 12) 参照。

第3図 海洋における降水中トリチウム濃度の緯度依存性

文献 6) より引用。

第4図 トリチウムとストロンチウム-90 の降下における緯度依存性の差

文献 6) より引用。

以前のグリーンランド、南極の氷、ブドウ酒中のトリチウム濃度の測定結果をまとめてみると、核爆発によるトリチウム濃度の緯度依存性と類似の関係が推定できる⁶⁾。

3. 原子炉および核燃料再処理施設

トリチウムは、現用のすべての型の原子炉から、原子核三分裂 (ternary fission) の産物として生成されるほか、冷却剤の添加物 (B, Li など)、減速剤の重水素、その他の原子炉成分と中性子反応の結果、生成される。種々の原子炉におけるトリチウムの生産率¹¹⁾ を第3表に示した。生産率だけを見るなら、重水炉が最も高いが数と規模からいえば、商業用発電炉 (主として軽水炉) による生産が圧倒的である。軽水炉から直接放出されるトリチウムの 1,000 MWe 年あたりの量を第4表に示す¹²⁾。沸騰水型炉 (BWR) に比べて加圧水型炉 (PWR) からの放出が多いのは、1次冷却水中にケミカル・シムとして加えたBのためであり、とくに旧式の炉ではステンレス被覆管を採用しているため、燃料中の核分裂生成のトリチウムが、1次冷却水中に移行する割合が多い結果と考えられる。燃料棒内に残ったトリチウムは、再処理工場における溶解処理のとき、そのほとんどが外部

に放出される。現在標準的な処理法として用いられている Purex 法では、溶解槽オフガス中に 20~25% が放出され、気体状でスタックから大気中に放出される。残りはおもに水相となり、60~70% が低レベル廃液として環境に放出され、5~10% が高レベル廃液および不溶解被覆物として残るといわれる。このようにして、もし今後、大規模な核爆発実験が行われず、また近い将来、核融合炉が実用化しないとすれば、原子炉および核燃料再処理施設からのトリチウム放出が、一般環境へのおもな発生源となると考えてよい。しかし、少なくとも現時点では、核爆発実験で生成されたトリチウムの残存総量が天然生成による平衡量や、原子炉による生産量よりも 1~2 けたは大きいと見てよく、しばらくの間は、平和利用によるトリチウム放出に対するモニタリングにあたっては、バックグランド値の変動への寄与が無視できない。つまり、地球規模で考えた一般環境のトリチウム濃度の変化は、北半球では、大勢的に、いまだ減少傾向が続いていると考えられる。施設からの放出は当然のことながら、地表面近くで水蒸気（一部水素）または水の形で行われるから、天然および核爆発由来のものが成層圏→対流圏の移行に 1~3 年かかり、この間に地球的規模で拡散するのに対して、放出地点の近傍で、ただちに局地的環境における水サイクルに乗ることになる。したがって放出の形に応じて、地理、気象、地質の考察をも含めた水文学的データがより重要となる。対流圏における水の滞留時間は、数日~数週間といわれ、全地球の平均可降水量と年平均降水量から算出される平均値は約 9 日となる。大気中に放出されたトリチウムが、降水により wash out されるまでに要する時間もおおよそ同程度のものとなろう。河川に放出された場合は、流れとともに拡散希釈されるが、米国クリンチ河¹³⁾の例では、放出口より 4~6 マイル下流、オッタワ河¹⁴⁾の例では 2.8 マイル下流で、深さ方向の混合がほとんど完全に行われている。河川水の流速は、同一河川でも水量によりかなり異なるがおおよそ 0.3~3 m/sec といわれ、放出口から河口まで数 100 km ある大河でも、1~2 週間で到達する¹⁵⁾。このように、大気、河川へ放出されたトリチウムは、いずれも長く数週間の滞留の後、海へ移行することになる。

海水の量は膨大であるけれども、直接水循環に寄与する部分は、深さ数 10 m~数 100 m の暖い水で、対流が盛んに行われる、いわゆる混合層に限られる。混合層の下では、水温が急激に下がり、塩分も増して、混合層とは断層を形成し、一般に深海水と呼ばれている。混合層における水の平均滞留時間は、BEGEMANN と LIBBY によれば 1~5 年、BAINBRIDGE によれば 3.5 年であ

るが、ERIKSSON は 22 年という長い値を出している。北半球混合海水のトリチウム濃度は、核実験の影響で、1964 年ごろ北半球高緯度では約 30 TR に上昇したが、その後漸減し、現在では約 10 TR となっている。もともと、海水のトリチウム濃度は、河川水に比べて低いことから、海への直接の放出は、河川水経由で海水へ放出する場合に比べて、人体へ直接摂取される可能性が少なく、より有効であると考えられるが、人間の生活をもとにした時間スケールで考えた場合、海水の 95% 以上を占める深海水（平均滞留時間は 1,000 年以上と試算されている）による希釈効果はほとんどなく、海水による希釈能力への過大な期待は禁物である。一方、地下水の流動現象はきわめて複雑で、まだまだその実態は十分明らかにされていない。しかし、地層の一定断面積を一定時間に通過する水の量に関する比例定数：透水係数は、土質によって非常に異なり、きれいな礫の層と、未風化の粘土とでは、おおよそ 10^{10} も異なる。したがって地下水の滞留時間も、気候や地質条件によって極端な違いがあり、多湿地の砂丘の地下水と乾燥地の深層地下水とでは、数 10 日と数万年の違いがある。平均滞留時間（年齢）の決定は最近では、放射性同位元素をトレーサとして行われることが多く、年齢 10 年~100 年ではトリチウムが、数千年~数万年では ^{14}C が用いられる。分水界で限られた河川の流域（drainage basin）における水の平均滞留時間の評価も、多くの研究者により試みられている。流域からの流出水は、直接河川から流出するもののほかに、一度地下水となってから流出するもの、潮や沼に滞留してから流出してくるものなどいろいろあり、一般に河川の水の滞留時間よりもずっと長くなる。BEGEMANN と LIBBY は核爆発由来のトリチウムをトレーサとして、ミシシッピ河上流部流域内の水の滞留時間約 10 年を算出した¹⁶⁾。また BROWN は、カナダのオッタワ河流域水の平均滞留時間（3.3 年）を決定している¹⁷⁾。

III 日本の一般環境におけるトリチウム濃度

1961、62年の大規模な核爆発実験によって、北半球では1963、64年に降水中のトリチウム濃度が急増したことは前にも述べたが、この現象は日本においても理研高橋ら¹⁸⁾と気象研、三宅、島田ら¹⁹⁾により測定され1,000~1,500 TR にまで達し、その後、年を追って減少し、1970年には 100 TR 前後になったと報告されている。海水については、北太平洋西部海域における1957~1970年の三宅・島田ら²⁰⁾の測定値があり、参考になる（1958年~25 TR、1970年~15 TR）。この期間において河川水中のトリ

第5図 近年の日本における環境水中のトリチウム濃度

チウムを測定した例は見当たらないが、おおよそ降水と同じレベルで推移したものと考えられる。筆者らの研究室では1967年より、原子力平和利用による将来のトリチウムの環境における濃度の推移を正しく評価するための基礎データを得る目的で、主として稼動、未稼動の原子力発電所周辺の河川水、沿岸海水を試料水として、トリチウム濃度を測定している²¹⁾。おもな採水地は、(A)福島県大熊、(B)茨城県東海、(C)福井県敦賀・美浜、(D)島根県鹿島、(E)佐賀県玄海で、年1~2回、ほぼ同一季節に同一地点で採水した。その結果、河川水では'67年末の約200 TR (約600 pCi/l) から、'73年末の約40 TR (約120 pCi/l) までほぼ指数的に減少しており、その半減期は約2~2.5年であった。また、参考試料として測定した放医研における'66~'74年の降水中のトリチウム濃度(F)の半減期は、約2年であった(第5図)。これらのことから、日本における降水および河川水中のトリチウムは、核爆発により成層圏に打上げられたものの残りが、まだわずかながら降下を続けていることによるものと考えられ、一般環境のトリチウム濃度は、大勢としては、減少傾向を続けていると見てよいであろう。一方、沿岸海水については約10 TR (30 pCi/l) ~ 約30 TR (100 pCi/l) とかなりばらついており、年を追っての減少傾向や、緯度効果らしきものも一部には観察できるが、採水場所が岸であり、流入する河川水の影響も無視できないため、あまり明確な結論は導きだせない。

IV 生物体内におけるトリチウムの挙動

トリチウムは、炭素、酸素とともに、生物体の主要な構成成分である水素の同位元素であることから、他の放

第5表 生物体中の体液(速いターンオーバー区画)におけるトリチウムの生物学的半減期(記載のないものは日)

人	間	5~13		
マウス		1.13 ²²⁾	巻貝	2~8分 ^{*23)}
ラット		3.53 ²²⁾	おたまじゃくし	7.7分 ^{*23)}
カンガルーラット		11.8 ²²⁾		
兎		3.87 ²²⁾	樹木(熱帯)	3.9~11 ²⁴⁾
犬		5.14 ²²⁾		
馬		8.41 ²²⁾		

* 平均滞留時間(生物学的半減期の1.4倍)

射性同位元素のように、決定経路や決定臓器を明確には定めにくい。つまり、生物体における、極端な濃縮は起りえないと考えてよい。もし、濃縮の可能性があるとするれば、生物体内でおこる物理化学反応にともなう同位体効果(isotopic fractionation)がおもなものであろう。いままでに知られている同位体効果のよい例は、植物の光合成反応であり、水素、炭素とも、軽い同位体ほど、植物体内にとりこまれやすいことがわかっている。その反面、一部組織に結合された場合、重い同位体ほど離脱しにくいともいわれており(trapping factor)、ある種の成分ではこのことが立証されている。しかし、概していえば、希釈効果が卓越していると考えられる。一方、人間をはじめその他多くの動物実験で立証されているように、水の形で体内に取込まれたトリチウムの体外への排出は、比較的短い半減期をもつ主成分と、ゆっくり排出される若干の成分とからなっており、それぞれ速いターンオーバー区画(short turnover compartment: 体液)と遅いターンオーバー区画(long turnover compartment: 組織結合分)とに対応すると考えられている。いくつかの動、植物における速いターンオーバー区画の半減期を第5表に示す^{22~24)}。

以上のことから、自然の平衡状態におけるような濃度変動がほとんどないトリチウムの慢性摂取の場合には、たとえトリチウム濃度が高くとも、複数経路の摂取が行われようとも、生物体の特定の組織にトリチウムが濃縮(他の組織よりもトリチウム/水素比が大きくなる)されることは、きわめて可能性が少ないと考えられる。しかし、急性摂取も含めて、摂取される水や栄養分(有機物)のトリチウム濃度の時間的変動が大きく、また摂取経路によるトリチウム濃度の差が大きい場合には、遅いターンオーバー区画におけるトリチウムの滞留時間の長さのために、ある時期においては環境水よりも体液の、

また体液よりも組織のトリチウム濃度が大になる可能性は十分に考えられる。このような現象に対しては、そのメカニズムから見て、“濃縮”と呼ぶのは適当でなく、“残留効果”とか“記憶効果”といった名称がふさわしい。COHEN と KNEIP が²⁵⁾ 1969～70 年にかけて Indian Point 発電所の放出口があるハドソン河流域で、河床の堆積土、有限水草、魚類などのトリチウム濃度を測定した結果、組織結合トリチウムの濃度が、周囲の水(河水)のトリチウム濃度 (400～800 pCi/l) にくらべて、堆積土では 10 倍 (水換算で平均 5,000 pCi/l)、魚類で 4 倍 (平均 3,460 pCi/l)、水草で 3 倍 (平均 2,000 pCi/l) 高いことを報告した。この一見濃縮らしい結果も 1963～64 年当時は核爆発の影響で、河水のトリチウム濃度が 3,000～5,000 pCi/l あったこと、堆積土がもっとも発電所放出トリチウムの影響を強くうけ、発電所の放出口からの距離によって指数的に減少していること、などを考えると、原著者ものべているように、河水の過去におけるトリチウム濃度の履歴を採取試料が“記憶”し、水中動植物→死体→堆積土→水中動植物のエコシステムにより“相続”されたもの (inheritance) と解釈するのが最も妥当であろう。また BOGEN ら²⁶⁾ は、1970～71 年におけるニューヨーク市の食料、水道水、空気中水蒸気のトリチウム濃度を測定した。その結果、いくつかの食料では、有機結合トリチウムの濃度が、自由水 (loose water) のトリチウム濃度に比べて 3～5 倍高いという結果を報告している。測定結果の一部には、自由水のトリチウム濃度が異常に低いものがあるなどの疑問も残るが、測定対象にかんづめかなり含まれていることから見て、やはり記憶効果がおもな原因と考えられる。

V 線量評価とモニタリングのための 検出レベルおよび測定法

ICRP 勧告 Pub. II (1959) によれば、トリチウムの最大許容身体負荷量 (MPBB) は、決定臓器を (a) 全身としたとき 2 mCi ($2 \times 10^3 \mu\text{Ci}$)、(b) 体組織としたとき 1 mCi ($10^3 \mu\text{Ci}$) にきめられている。(a) の場合はトリチウムが全身 (70 kg) に一様に分布し、 β 線のエネルギーがすべて吸収されることを想定し、年間 5 レムの線量を与えるトリチウム量であり、(b) の場合は急性摂取を考えて、体液中にトリチウムが多いとき、すべて体液からなる 43 kg (70 kg 人体中の体液量) の仮想の体組織が 1 週間 100 ミリレムの線量を受けるトリチウム量に相当する。また、それぞれの MPBB に応じて空気中最大許容濃度 (MPC)_a と水中最大許容濃度 (MPC)_w がきめられている。一般環境においては、トリチウムの急性摂取が

起ることはまれであろうが、より安全側を考えて、(b) の 1 週 168 時間に対する (MPC)_w = $0.03 \mu\text{Ci/cc}$ (年間 5 レム) の値を用いて、摂取する水のトリチウム濃度を $C(\text{nCi/l})$ 、年間に体組織がうける線量を $R(\text{ミリレム/年})$ とすれば、

$$R = 0.17 C \quad (2)$$

となる。ICRP の考え方では、水の摂取を体液の水から 1,200 ml/日、食物の水から 1,000 ml/日 としており、食物のトリチウム濃度だけが異常に高いという特殊な場合を除いては、線量評価の正当性は成立していると考えてよい。また、以前はトリチウムの β 線に対する RBE 値として 1.7 を採用していたが、現在では 1.0 とする考え方に変ってきている。このことを考慮すると、(2)式は

$$R = 0.10 C \quad (3)$$

となる。つまり、1 nCi/l の水の慢性摂取が、0.1 ミリレム/年の線量を与えることになる。最近では、ALAP の考え方から、公衆に対する全身被曝線量を 5 ミリレムにおさえる案が提出されている。

わが国においても今年 5 月、原子力委員会から出された“発電用軽水型原子炉施設周辺の線量目標値に関する指針について”の中で、放射性希ガスからのガンマ線と液体廃棄物中の放射性物質に起因する全身被曝線量の評価値の合計を、年間 5 ミリレムと定めている。もちろんこの 5 ミリレムは、1つの放射性核種だけに割当てられるわけにはいかないから、トリチウムについても、5 ミリレムよりもかなり小さい目標値を意識する必要がある。当然の結果として、モニタリングのための検出限界もそれに応じたレベルとなる。前述した、1 nCi/l の水中トリチウム濃度が、年間被曝線量 0.1 ミリレムに相当する (5 ミリレムの 1/50) ことを考えると、検出限界としては一応、妥当なレベルと見てよいであろう。しかし、現在の一般環境水におけるトリチウム濃度が $\sim 0.3 \text{ nCi/l}$ であることを考えると、このレベルまで検出限界を下げることが望ましい。

モニタリングの測定法としては、現場のルーチン作業に適したものが良いことはいうまでもない。しかしトリチウムは、 β 線のエネルギーがきわめて低いために、簡便な測定法がなく、どうしても手間のかかるやり方になってしまう。その中で、もっとも有望なのが、液体シンチレーション法である。測定法の詳細については、他の文献を参考にさせていただきとし、ここではごく簡単にふれておく。この方法は、1 nCi/l ていどのトリチウムまでなら、現在多数使用されている市販装置でも十分測定できることと、試料調製がきわめて容易なのが大きな特長である。蒸留した試料水を、乳化用シンチレータ

と混ぜ合せて計数するだけでよい。低バックグラウンド化した装置ならば、 0.1 nCi/l のレベルまで十分測定できる。これ以下のレベルでは、電解濃縮によって試料水のトリチウム濃度をあらかじめ高めておく必要がある。研究的な測定の場合はともかく、通常のモニタリングにはいささか荷の重い作業であろう。

VI 米国における一般環境トリチウム・サベイランスの例

米国におけるトリチウム・サベイランス・プログラムは、1964 年 5 月、U.S. Public Health Service が主体となり、米国内における主要な河川域に 10 の採取点を設けて、毎月のトリチウム濃度を測定したのが始まりである。このうち、8 地点は上流に原子力施設があり、他の 2 点は、ベースライン測定のために選ばれた。この“Surface Water Network”プログラムは 1969 年まで続けられたが、いくつかの河川、とくに Savannah 河（上流に Savannah River Plant あり）や Clinch 河（上流に Oak Ridge National Lab. あり）では、ベースラインと比較して、かなり高いレベルのトリチウム（ $10 \sim 30 \text{ nCi/l}$ ）をしばしば検出している。

1970 年 6 月からは、主管が Environmental Protection Agency (EPA) に移り、その名も Tritium Surveillance System と改められた。測定対象も、飲料水 70 地点 4 回、降水 8 地点毎月を、米国全州にまたがる RAN (Radiation Alert Network) ステーションから選別採取し、以前からの表面水（河川、湖、湾も）39 地点 4 回に拡大された。1973 年 7 月からは、さらに名称が ERAMS (Environmental Radiation Ambient Monitoring System) Surface and Drinking Water Component と変り、原子力施設に近い人工密集地域の飲料水 76 点と、表面水も 55 点にふやして、年 4 回採取し測定するようになった。以前からのプログラムを含めて測定はすべて液体シンチレーション法で行われ、トリチウムの検出限界は 95% 信頼レベルで 0.2 nCi/l である。これらのデータは、すべて Radiation Data and Reports (旧名 Radiological Health Data and Reports) に集録、公表されている²⁷⁾。1970~1974 年の結果をまとめてみると、次のことがわかる。

(a) 降水中のトリチウム濃度は、いまだにわずかながら核実験由来のトリチウムに特有の季節変動を示している。

(b) いくつかの河川水のトリチウム濃度は、同じ期間の降水中のトリチウム濃度の最高値よりもかなり高く明らかに原子力施設より放出されたトリチウムの影響が

現れている (Savannah 河, Clinch 河, Deerfield 河)。

(c) したがって、これらの河川を水源としている市の飲料水も、かなりトリチウム濃度が高い (Savannah 市)。

以上にのべた米国の実例は、一般環境におけるトリチウムのモニタリング・システムとしては、世界でも最も進んだものと思われる。日本の場合、国土の大きさや地理、気象条件の違い、原子力施設の立地条件の差などを考えると、米国式のやり方をそのまま踏襲するのは問題があるにしろ、原子力平和利用の安全対策の一環としての基本的なものの考え方の点では、学ぶべき多くのことを含んでいる。

VII お わ り に

トリチウムの一般環境における挙動は、すなわち水の挙動でもある。書くべきことはあまりにも多く、稿を進める途中で、しばしば困惑した。すでに同じ表題の総説が過去に発表されていることもあって²⁸⁾、なるべく新しい知見や、ものの考え方も盛り込むように努力したつもりである。筆者なりに感じたことは、トリチウムのエコロジーに関するテーマで、今後とくに重要となるのは、土とのかかわり合いに関するものではないだろうかという点である。地中における水の挙動の複雑さはいうまでもなく、河川や海の堆積土、中でも、粘土やシルトが起すであろう水素の交換作用に解明すべき問題があるように思われる。それはさておき、本文中では十分に触れることのできなかった個々の問題の詳細については、参考文献に引用した原著を読まれることを希望する。また、より総合的なトリチウムの問題に関しては、日本原子力学会トリチウム専門委員会の報告書「トリチウム・その性質と挙動」(昭和 47 年刊)を、また地球上の水収支、水循環に関しては、榎根勇著「水の循環」(水文学講座 3, 共立出版発行, 1973)を一読されることをお勧めする。前者は、より広範囲な問題にわたる詳細な記述と豊富な参考文献が特色で、日本語の書物としては他に類がなく、後者は、水文学の入門書としても読みやすくよくまとめられた好著である。

この稿の執筆にあたっては、同じ研究室の仲間である井上義和技官に、いろいろ有益な助言をいただいた。III 章でのべた研究成果については、環境衛生研究部第 3 研究室、榎田義彦室長の指導によるものである。また原稿の校閲には、第 2 研究室市川龍資室長が、貴重な時間をさいてくださった。ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) Recommendation of the International Commission on Radiological Units and Measurements (1962), (ICRU) Report 10 c, radioactivity, *NBS Handbook*, 86 (1963).
- 2) F. BEGEMANN; "Earth Science and Meteorite," p. 169 (1963), North Holland Publishing Co.
- 3) S.K. AEGERTER, H.H. LOOSLI and H. OESCHGER; Variation in the production of cosmogenic radionuclides, Symposium on Radioactive Dating and Methods of Low-Level Counting, Monaco, 2-10 March 1967, IAEA (STI/PUB/152), p. 49 (1967).
- 4) H. BUTTLAR and W.F. LIBBY; Natural distribution of cosmic-ray produced tritium II, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 1, 75 (1955).
- 5) IAEA Technical reports series, No. 96, No. 117, No. 129, No. 147, Environmental Isotope Data No. 1—No. 4, World Survey of Isotope Concentration in Precipitation (1953—1963), (1964—1965), (1966—1967), (1968—1969).
- 6) W.R. SCHELL, G. SAUZAY and B.R. PAYNE; World distribution of environmental tritium, Symposium on Physical Behaviour of Radioactive Contaminants in the Atmosphere, 12—16 Nov. 1973, Vienna IAEA (STI/PUB/354), p. 375 (1974).
- 7) W.R. SCHELL, G. SAUZAY and B.P. PAYNE; Tritium injection and concentration distribution in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 75 (12), 2251 (1970).
- 8) J. YOUNG and A.W. FAIRHALL; Radiocarbon from nuclear weapon tests, *J. Geophys. Res.*, 73 (4), 1185 (1968).
- 9) K. KIGOSHI and K. YONEDA; Daily variations in the tritium concentration of atmospheric moisture, *J. Geophys. Res.*, 75 (15), 2981 (1970).
- 10) 三宅泰雄, 島田利夫, 川村 清, "中共核実験の東京における降水および水蒸気の ^3H 濃度への影響", 日本気象学会秋季大会 (1970).
- 11) K.J.P. SCHRODER and W. ROETHER; The release of krypton-85 and tritium to the environment and krypton-85 to tritium ratio as source indicators, Preprint of Symposium on Isotope Ratios as Pollutant Source and Behaviour Indicators, Vienna, Nov. 1974, IAEA-SM-191/30.
- 12) L.E. TREVORROW *et al.*; Tritium and noble-gas fission products in the nuclear fuel cycle I: reactor, USAEC Report ANL-8102, Oct. p. 79 (1974).
- 13) E.G. STRUXNESS *et al.*; Comprehensive report of the clinch river study, USAEC Report ORNL-4035, April 1967.
- 14) R.M. BROWN; Possible NPD tritium in the Ottawa river, Canadian Report PR-B-59, July—Sept. 1963.
- 15) J.R. NELSON and R.W. PERKINS; Determination of Columbia River flow times downstream from Pasco, Washington, using radioactive tracers introduced by the hanford reactors, *Wat. Resour. Res.*, 2, 31 (1966).
- 16) F. BEGEMANN and W.F. LIBBY; Continental water balance, ground water inventory and strage times surface ocean mixing rates and world-wide water circulation patterns from cosmic-ray and bomb tritium, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 12 (4), 277 (1957).
- 17) R.M. BROWN; Hydrology of tritium in the Ottawa Valley, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 21, 199 (1961).
- 18) T. TAKAHASHI *et al.*; Tritium concentration in wine, rain and ground water, *Radioisotopes*, 18, 560 (1969).
- 19) 三宅泰雄, 島田利夫, 川村 清; 東京における降水のトリチウム濃度, 日本気象学会春季大会 (1969), (1970).
- 20) 三宅泰雄, 島田利夫, 川村 清; 北太平洋西部海水および東京における降水のトリチウム濃度, 日本放射線影響学会第12回大会 (1969).
- 21) 井上義和, 岩倉哲男, 樫田義彦; 日本の環境トリチウムの年変化, 日本放射線影響学会第17回大会 (1974).
- 22) C.R. RICHMOND, W.H. LANGHAM and T.T. TRUJILLO; Comparative metabolism of tritiated water by mammals, *J. Cell. Comp. Physiol.*, 59, 45 (1962).
- 23) M.L. STEWART, G.M. ROSENTHAL and J.R. KLINE; Tritium: Discrimination and concen-

- tration in fresh water microcosms, Preprint of Symposium on Radioecology, Oak Ridge, May 10—12, 1971, Conf-710501-26.
- 24) J.R. KLINE *et al.*; Measurement of transpiration in tropical trees with tritiated water, *Ecology*, **51** (6), 1068 (1970).
- 25) L.K. COHEN and J.J. KNEIP; Environment tritium studies at a PWR power plant, "Tritium," ed. by A.A. MOGHISSI and M. CARTER, Conf-710809, p. 623 (1973).
- 26) D.C. BOGEN *et al.*; Tritium intake in New York city, *ibid.*, p. 639 (1973).
- 27) たとえば Tritium surveillance system, July—December 1970, *Radiation Data and Reports*, **12** (5), 272 (1971).
- 28) D.G. JACOBS, Source of tritium and its behavior upon release to the environment, USAEC Report TID-24635, p. 90 (1968).

日本保健物理学会「入会手続の案内」

本会に正会員および準会員として入会を希望される方は、所定の申込書に次の事項を記入のうえ事務局あてお送りください。入会は、役員会の承認をへて決定されます。

- (a) 氏名（ローマ字読み方付）、生年月日
- (b) 勤務先とその所在地、職名および現住所
（英文およびローマ字読み方付）
- (c) 最終卒業学校、学科名とその年次
- (d) 加入している学会（外国を含む）
- (e) 専攻分野（順位をつける）
- (f) 正会員、準会員の別（定款参照）
- (g) 連絡先

入会申込書および定款は事務局にありますからお申出ください。

会 費	
正会員費	年額 3,000円
準会員費	年額 2,000円

日本保健物理学会事務局

〒113 東京都文京区弥生 2-4-16
 学会センタービル
 日本学会事務センター内
 電話 東京 (03) 815-1903
 振替貯金口座 東京24488番