資 料

トリチウム取扱作業に伴う空気中および
作業者の尿中のトリチウム濃度滝上 誠^{*1}, 糠沢 敦^{*1}

(1973年7月17日受理)

Tritium Concentrations in Air and in Urine of Workers
Resulted from Tritium HandlingMakoto TAKIUE^{*1} and Atsushi NUKAZAWA^{*1}

Tritium content in air and urine of workers was measured during and after the handling of about 30 Ci tritium.

Tritium content in environmental samples such as air and air-condensed water collected by a cold trap method was determined using a tritium monitor or a liquid scintillation counter. Internal radiation dose was estimated for workers by the analysis of their urine.

The tritium concentration in air was about $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ at the beginning of work, whereas the maximum value was observed during the working period as $2.6 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ in hood, $1.3 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ in laboratory and $1.8 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ in corridor. The daily urinary excretion of tritium was represented approximately by a single exponential function with the effective half-lives of 14 days and 12 days for two workers, and their internal radiation dose was estimated as 12 mrem and 7.1 mrem respectively.

I 結 論

近年、原子力発電などの増大に伴う地球環境のトリチウム汚染の問題が注目されつつある。一方、自発光塗料の素材としてのトリチウムの利用や、医学、薬学、生物学分野でのトリチウムの研究利用、ならびにトリチウム汚染廃棄物の処理などの結果生ずる作業環境の汚染や作業者の被曝が、われわれの研究所のような中小 RI 施設でも放射線管理上大きな問題となっている。

筆者らは最近、約 30 Ci のトリチウムを取り扱う比較

的大量使用の作業に、放射線管理の立場から対処する機会をもち、この種の作業から生ずる汚染の程度や拡大の状況などの実態を知る目的で、作業の前後にわたり作業環境および作業者の体内のトリチウム濃度の経時測定を行なった。測定はコールド・トラップ法などによって採取したモニタリング・サンプルの液体シンチレーション計測によって行ない、さらに環境の測定にはトリチウム・モニター（電離箱式振動容量電位計）を併用した。

本報告は、これらの測定結果およびモニタリング法について考察した。

II 実験対象とモニタリング方法

1. トリチウム取扱作業の概況

作業はトレーサー研究棟内実験室 (5.6 m × 7 m × 3.8

^{*1} 東京都立アイソトープ総合研究所放射線安全課；東京都世田谷区深沢 2-11-1
Division of Health Physics and Safety, Tokyo Metropolitan Isotope Research Center; 11-1, Fukazawa 2-chome, Setagaya-ku, Tokyo.

Fig. 1 Top view of laboratory and corridor.

× sampling sites for air-monitoring, A, B : workers, ← air-current direction (Flow rate of air-current in front of hood is 0.35 m/sec.).

	Time	9	12	15	18
	Ventilator	ON			OFF
The 1st day	Working			← A →	
	Air-Washer	X	X	X X X X	X X
	Corridor				
	Laboratory				
	Hood				
The 2nd day	Working		← B →	← C →	
	Air-Washer	X	X X X X	X X X X	X X
	Corridor				
	Laboratory				
	Hood				

Fig. 2 Time schedule for working and tritium monitoring.

m) に設置されているフード内 (1 m×2.5 m×1 m) で行なわれた。作業者は2名 (A, B) で、作業者Aがフード前正面に立って主作業を行ない、作業者Bは傍で補助作業を行なった。Fig. 1 に、実験室内外の配置を示す。

おもな作業内容は3つで、次のとおりである。

作業 [A]: 封管中で約 10 Ci のトリチウム・ガスを 350°C に加熱した酸化銅によってトリチウム水とし、コールド・トラップに集められたトリチウムの回収率を調べる実験で、酸化銅反応はすでに他の施設において行なわれており、当研究所においては回収したトリチウム水が封じられているアンプルを開管し、トリチウム水の一部を採取して測定試料とし、残りを再びアンプルに封じる作業が行なわれた。開管したアンプルは6個で、トリチウムの全量は約 6 Ci であった。

作業 [B]: 封管中で約 10 Ci のトリチウム・ガスを 900°C 程度に加熱したチタン金属に吸着させ、残留したトリチウム・ガスを前に述べた酸化銅法によりトリチウム水とし、トリチウム・ガスのチタン金属への吸着量を調べる実験で、すでに他の施設においてチタン金属への吸着実験が終わり、残留トリチウム・ガスをトリチウム水としてアンプルに封じて回収しており、当研究所においては作業 [A] と同様の操作で測定試料を採取する作業が行なわれた。開管したアンプルは8個で、トリチウム全量はチタン吸着のトリチウムを除いて約 8 mCi であった。

作業 [C]: Wilzbach 法¹⁾ で、約 10 Ci のトリチウム・ガスと1週間接触されていたモノマー 1g を入れたアンプルで、すでにトリチウム・ガスは排ガスされ別に移されたのち、封じられた状態にあったアンプルを当研究所において開管し、溶媒に溶解する作業を行なった。

この3つの作業は、2日間にわたって行なわれた。Fig. 2 はトリチウム取扱作業 [A] [B] [C] と、次に述べる環境モニタリングとの時間的な関係を示す。

2. 測定試料の採取

作業の前・後にわたって、使用したフード内、実験室およびトレーサー棟内廊下において、コールド・トラップ法により、床面から約 1.5 m 位置での空気中の水蒸気を 1~2 時間にわたって捕集し、その放射能を液体シンチレーション・カウンターによって測定した。コールド・トラップ法は、次に述べる最も簡便な方法を用いた。すなわち、容積 100

ml のビーカーにドライアイスを粉末状にして入れ、そのビーカーをシャーレの中に置き採取場所に放置しておく、ビーカーの外壁面に空気中の水蒸気が氷状あるいは霜状となって凝結する。採取量は気温および湿度によって異なるが、気温 20°C、相対湿度 60% においては1時間に 1 ml 以上の凝縮水を捕集できる。試料採取場所の気温を $t^{\circ}\text{C}$ 、絶対湿度を $w \text{ kg/kg}$ とすると、採取された凝縮水 1 g は空気中で

$$(273+t)/273 \times 1.29 \times 10^{-3} \times w \text{ (cm}^3\text{)}$$

の体積を占めるので、気温および相対湿度から絶対湿度を求めて²⁾、空気中トリチウム濃度への換算を行なった。

また排気浄化用キャピラリー・フィルターに注がれるエア・ワッシャー水を、その専用排水槽から採取して測定試料とした。

さらに、上に述べたモニタリングと並行してトリチウ

ム・モニターによる連続測定を、実験室（振動容量型電位計（タケダ理研：TR-84）に電離槽を接続）、フード内（Johnston Lab. 社：Triton 955B）および排気浄化用キャピラリー・フィルター直前のダクト（Atomic Accessories 社：TSM-91B）において実施した。

一方、個人モニタリングとして尿によるバイオアッセイを行なった。作業者の尿はトリチウム取扱作業の終了約1時間後に採取し、引き続き60余日間にわたって随時採取した。採取試料は脱色等の処理を行わず、そのままを測定試料とした³⁾。

3. 液体シンチレーション測定

液体シンチレーション測定用のガラス・バイアル中に、液体シンチレーター溶液15 mlを入れ、各測定試料を1 ml 加えて全量を16 mlとし、充分な攪拌後に測定を行なった。

使用した液体シンチレーター溶液は、トルエン・トライトン X100 シンチレーター溶液で、その組成はトルエン・シンチレーター溶液（PPO (4 g/l) + POPOP (0.1 g/l) + トルエン）2 parts にトライトン X100 を1 part 加えたもので、水含有率23%まで安定したエマルジョンを形成し、安定した計数を得ることができる⁴⁾。

測定器は Packard Instrument Co. 製の液体シンチレーション・カウンター、3320 型 Tricarb（測定条件：gain 50%, window 50~1,000 div）を使用し、計数効率率は外部標準法により決定した。各測定試料のクエンチングによる計数効率のばらつきは、尿の測定試料で10.5~34.0%，その他の測定試料で30.5~36.5%の範囲であった。また、測定試料の波高スペクトルを観察するために液体シンチレーション・カウンターの sum 回路にマルチチャンネル・スペクトロメーター（日立製 RAH-403 型 400 チャンネル・スペクトロメーター）を接続したものをを用いた。この方法によって、標準試料と測定試料のスペクトルを比較し、あるいは測定試料のスペクトル成分を解析することにより、核種がトリチウムであることの確認を行なった⁵⁾。

III 実験結果および考察

1. 液体シンチレーション測定

多種類の放射性核種を取り扱う施設での作業環境や、作業員から得られる放射線管理のための測定試料については、多くの場合、いくつかの核種による混合汚染を考慮しなければならない。今回の測定に際しても、採取した試料中にはトリチウム以外の核種の混在を前提とするべきであって、モニタリングの目的として、トリチウムのみによる寄与を評価し、それを迅速に現場管理ヘフィ

Fig. 3 Pulse height distribution of measured sample in comparison with that of tritium standard sample, which are obtained by a liquid scintillation counter. Counting rate of measured sample is normalised to that of the standard sample.

Fig. 4 Pulse height distribution of mixed sample, which contains 10% carbon-14 in tritium.

ードバックするためにも、試料中のトリチウムの簡便な分離測定が必要となる。

Fig. 3 および Fig. 4 に、測定試料の液体シンチレーション波高スペクトルを示す。Fig. 3 はエア・ワッシャー水試料の測定を示し、トリチウム標準試料のスペク

トルと比較することによって、他の核種による汚染が混在していないことがわかる。他の測定試料についても、同様な確認を行なった。一方、Fig. 4 は一例としてトリチウムに混在核種としてカーボン・14 を 10% 含む試料のスペクトルを示しており、このように測定試料中にトリチウム以外の放射性核種が混在している場合には、トリチウムの連続スペクトルの高エネルギー側に混在核種によるスペクトルが現われるので、トリチウムの汚染との関係を明瞭につかむことができる。

2. 環境試料の測定

Table 1 および Fig. 5 は、トリチウム取扱作業前後におけるエア・ワッシャー水トリチウム濃度、および廊下、実験室、フード内の空気中トリチウム濃度の経時変化を示す。ここで空気中トリチウム濃度は、各測定時間内の平均濃度を示すものと考えられる。

1 日目において、廊下、実験室およびフード内での換気開始直前の空気中トリチウム濃度は、換気中の作業前のそれよりも常に高い値を示している。これは過去に行なわれたトリチウム実験の際に生じた表面汚染の残留トリチウムが、空気中にわずかず拡散されて、換気の休

止時間中、室内に徐々に蓄積されたためであり、換気開始後は減少して約 2 時間で平衡状態に達する。

実験室における排気はすべてフードを通して行なわれており、廊下は実験室に対し、また実験室はフード内に対して常に陽圧になるように気流が維持されているが (Fig. 1)、廊下および実験室の空気中トリチウム濃度は、作業が行なわれるごとに約 10 倍ずつ増加が認められ、フード内から室内および廊下へのトリチウムの漏洩が観測された。

同時に並行して連続測定を行なっていたトリチウム・モニターによる測定点の測定結果によると、作業 [A] [C] 時にフード内およびキャビラリー・フィルター直前のダクト内の測定点でトリチウムが検出され、作業中の比較的短時間のあいだにトリチウムの漏洩が起きていることを示しているが、定量的なことは明瞭ではなかった。一方、作業 [B] 時のトリチウム・モニターの測定ではトリチウムの漏洩が検出されず、また作業 [A] [B] [C] いずれにおいても、室内測定点においてはトリチウムの漏洩が検出されなかった。Fig. 6 は、2 日目作業 [B] [C] における 3 測定点のトリチウム・モニターによる結果を示す。

エア・ワッシャー水トリチウム濃度も、フード内でのトリチウム取扱作業が行なわれるごとに増加が観測され、トリチウム・モニターの測定結果を考慮すると、トリチウム漏洩後、1 時間以内にその影響が現われる。Fig. 5 に示すように、エア・ワッシャー水トリチウム濃度は実験室およびフード内の空気中トリチウム濃度と強い相関関係を示し、そのためトリチウム取扱作業時にエア・ワッシャー水トリチウム濃度を経時測定することにより、実験室およびフード内の空気中トリチウム濃度の大略的な変動を推察できる。

2 日目作業終了後 13 日目における廊下、実験室およびフード内の空気中トリチウム濃度は、Table 1 に示すように作業終了直後と同じオーダーであり、ひとたびトリチウム汚染が生ずると、かなりの期間その影響が残り、施設内のバックグラウンドが上昇することを示している。

3. 作業者の内部被曝

1 日目、2 日目の作業終了の約 1 時間後、作業員 A、B の尿を採取し尿中トリチウム濃度を測定した。その後、約 2 カ月間にわたり排泄の推移を観察し、その状況を示したのが Fig. 7 で、単一指数関数として近似できる。

作業員 A の摂取時における尿中トリチウム濃度は、Fig. 7 より $2.1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ で、約 45 日後には 10

Fig. 5 Variations of tritium concentration in air of corridor, laboratory and hood, and in water of air-washer for the duration of two days.

Table 1 Results obtained from environmental monitoring.

Date	Time	Tritium concentration			
		Air-washer ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) _{water}	Corridor ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) _{air}	Laboratory ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) _{air}	Hood ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) _{air}
The 1st day	8.00	6.65×10^{-5}	1.28×10^{-8}	2.52×10^{-8}	3.16×10^{-8}
	9.00				
	10.00				
	11.00				
	12.00	6.90×10^{-5}	3.36×10^{-9}	6.23×10^{-9}	3.34×10^{-9}
	13.00				
	14.00	5.18×10^{-5}	1.93×10^{-9}	4.17×10^{-8}	2.48×10^{-6}
	15.00				
	16.00				
	17.00				
	18.00				
The 2nd day	8.00	3.26×10^{-3}	1.88×10^{-8}	2.01×10^{-7}	3.85×10^{-6}
	9.00				
	10.00				
	11.00				
	12.00	6.90×10^{-3}	1.79×10^{-7}	1.28×10^{-6}	2.61×10^{-4}
	13.00				
	14.00	5.84×10^{-1}	1.84×10^{-8}	4.33×10^{-7}	8.80×10^{-7}
	15.00				
	16.00				
	17.00				
	18.00				
The 14th day	13.00	2.40×10^{-3}	3.80×10^{-8}	1.30×10^{-7}	1.20×10^{-7}

Fig. 6 Comparison of recordings among three monitoring sites measured with tritium monitor on the 2nd day.

Fig. 7 Tritium concentration in urine after tritium inhalation.

分の1の濃度に低下した。また、作業員Bのそれは $1.4 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ で、約40日後に10分の1の濃度になった。両者の有効半減期は作業員A, Bについてそれぞれ14日, 12日で、これと上記の摂取時における尿中トリチウム濃度から、体液を決定臓器として、

$$(DE)_{50Y} = 51.2 \cdot \epsilon \cdot \int_0^{50 \times 365} q_0 \cdot \exp\left(-\frac{0.693}{T_b} \cdot t\right) dt^{6-8)}$$

$(DE)_{50Y}$: 線量当量預託 (rem/50年)

ϵ : 1壊変あたりの有効エネルギー (MeV/dis.)

q_0 : 体内取込み初期の尿中トリチウム濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)

T_b : 有効半減期 (日)

から線量当量預託 (50年) として、作業員Aについては12 mrem, 作業員Bについては7.1 mremを得た。

IV 結 論

(1) トリチウム取扱作業によって生じたトリチウム漏洩の原因は、そのときの作業内容およびトリチウム濃度の測定結果から次のように推定される。作業 [A] [B] において、アンブルを開管した際には、トリチウム水は液体窒素で凍結しており、測定試料として採取する際に融解しなければならないので、この際に水蒸気圧が上ってトリチウム水蒸気として漏洩したと推定される。作業 [C] においては、モノマーと共存していた10 Ciのトリチウム・ガスはすでに排ガスしており、アンブル開管時に、直ちに、フード内においたトリチウム・モニターの吸入口にアンブルを近づけたが、ほとんど感知しない状態であったので、この部分の残留トリチウムはほとんど

なく、よく脱ガスされていたと考えられる。しかし、次にアンブル中に溶媒を加えて、一部重合したモノマーを溶解したところ、直ちにトリチウム・モニターが作動し、トリチウムの漏洩が観測された。このことは、モノマーおよび若干のポリマー中に吸蔵されていたトリチウム・ガスが、溶解とともに気相中に放出されたものと推定される。このことは実験取扱技術上で、今後充分検討されねばならないことである。

(2) トリチウム漏洩は取扱作業時間の極短時間のうちに起こり、フード内から逆流して室内および廊下において検出された。トリチウムによる環境汚染は、空気汚染のみではなく、床および壁面など接触面への fixed contamination となりやすく、完全な除染が困難となる。このことは逆に、トリチウム汚染面から空気中へのトリチウム拡散によって、空気汚染が長期にわたって残ることを示しており、換気によって徐々にトリチウム汚染が低下することになる。

(3) 作業員2名の尿中には、作業終了約1時間後に採取した測定試料中に、トリチウム吸入の影響が現われ、その後は約2カ月間、有効半減期14日および12日で単一指数関数的な減少を示した。

(4) モニタリング法としてコールド・トラップ法とトリチウム・モニターを比較した場合⁹⁾、トリチウム・モニターの信頼しうる最低検出限度は、現状では $\sim 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度でトリチウム最大許容空気濃度 ($5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) と同程度である。これに比してコールド・トラップ法は、最低検出限度が $\sim 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ と、非常に低濃度の測定に適しており、また他核種との弁別測定も可能である。一方、連続モニタリングが可能であることから、トリチウム・モニターは大量漏洩の経時測定に適し、事故対策的な点でコールド・トラップ法よりすぐれていると考えられる。

(5) 空気中のトリチウムは気体または水蒸気として存在しているが、職業上の被曝に対するトリチウムの空気中最大許容濃度 (MPC)_{air}⁴⁾ は、トリチウム・ガスに対して $2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ であり、トリチウム水蒸気に対して $5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ である。空気中の水蒸気を捕集するコールド・トラップ法は、この点においても有効な手段であることを示す。

最後に、本実験に協力をいただいた化学部化学トレーサー研究室各位、および貴重な資料と助言をいただいた池田正道氏にお礼を申し上げます。

参 考 文 献

- 1) K.E. WILZBACH; *J. Am. Chem. Soc.*, **79**, 1013 (1957).
- 2) 井上宇市; 空気調和ハンドブック, p. 10 (1959), 丸善, 東京.
- 3) F.E. BUTLER; *Anal. Chem.*, **33**, 409 (1961).
- 4) M.S. PATTERSON and R.C. GREENE; *Anal. Chem.*, **37**, 854 (1965).
- 5) 石河寛昭, 滝上 誠; *Radioisotopes*, **20**, 90 (1971).
- 6) ICRP; Publication 10: Pergamon Press, London (1968).
- 7) ICRP; Publication 2: Pergamon Press, London (1959).
- 8) Progress report from ICRP: *Health Phys.*, **17**, 389 (1969).
- 9) 穴沢 豊, 国分守信, 藤田久美雄; 保健物理, **7**, 27 (1972).

「会 員 の 頁」投 稿 案 内

「保健物理」は会員皆様の雑誌です。編集委員会では、次のようないくつかのカラムを作って、皆様の寄稿をお待ちしています。ふるってご投稿ください。

1. 諸案内などのカラム

文献・アイデアを求む, 研究会の開催, 職員募集, その他, 会員のための案内など。400 字以内。

2. 随想などのカラム

保健物理または関係あることについての随想など, 写真などの分を含めて 1800 字 (刷上り 1 ページ) 以内。

3. 新技術などの紹介のカラム

保健物理または関連分野の新しい技術・製品・装置あるいは用語などの紹介や解説。写真などの分を含めて 850 字 (刷上り $\frac{1}{2}$ ページ) 以内。

4. 事業所便りのカラム

おのおのの大学や事業所などの現況や, 新しいできごとの紹介など。写真などを含めて 1800

字 (刷上り 1 ページ) 以内。

5. 意見などのカラム

本誌, 本会あるいは保健物理全般についての意見や希望など。850 字以内。

原稿送り先: 日本保健物理協議会編集事務局

〒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

原稿締切: 毎発行月の前月まで。この頃までに到着したものは, その号に掲載できる見込みです。

原稿用紙: 1 行が 25 字あるいは 20 字の横書きのもの。

そ の 他: 氏名, 勤務先, 連絡先 (住所, 電話) を必ず書いてください (意見などのカラムでは, 誌上匿名を認めます)。氏名等のないものは掲載しませんので, ご注意ください。なお採否は, 編集委員会にご一任ください。