

大気中トリチウム及び¹⁴C濃度

今村 博香 田島 義徳 西原 充貴
内山 芳彬

1 はじめに

トリチウム(T)は水素の同位体で半減期12.4年のβ放射性核種である。そのおもな起源は宇宙線の中性子が大気中の窒素と衝突しておこる核反応¹⁴N(n, T)¹⁴Cによるもの及び核爆発実験等により人為的に放出されたものである。¹⁾原子力発電所等の施設から放出されるトリチウムは宇宙線起源のトリチウムに比べればきわめて少ないが局地的に偏在するので十分な管理が必要である。¹⁴Cは炭素の同位体で半減期5730年のβ放射性核種である。そのおもな起源は宇宙線の中性子が大気中の窒素と衝突しておこる核反応¹⁴N(n, p)¹⁴Cによるもの及び核爆発実験等により人為的に放出されたものである。²⁾原子力発電所から放出される¹⁴Cの化学形は、原子炉の形により異なり沸騰水型では、大部分が二酸化炭素として加圧水型では主に炭化水素として放出される。²⁾二酸化炭素として放出された¹⁴Cは光合成を通して植物に取り込まれる可能性がある。²⁾本研究では、鹿児島県における大気中のトリチウム及び¹⁴Cの濃度を調べ、バックグラウンドデータを得るとともに、呼吸によるトリチウム、¹⁴Cからの内部被ばく線量を推定した。なお本県では、過去に大気中水蒸気状HTOの調査を行っているが³⁾、今回トリチウムは、大気中水蒸気状HTO、HT及びCH₃Tを、¹⁴Cは大気中¹⁴CO₂を調査した。

2 調査方法

2.1 試料採取地点

試料採取地点を図1に示す。小平(川内原子力発電所近辺の川内市久見崎町小平局)と川内市(鹿児島県川内環境監視センター)及び鹿児島市(鹿児島県環境保健センター)の3カ所で採取した。

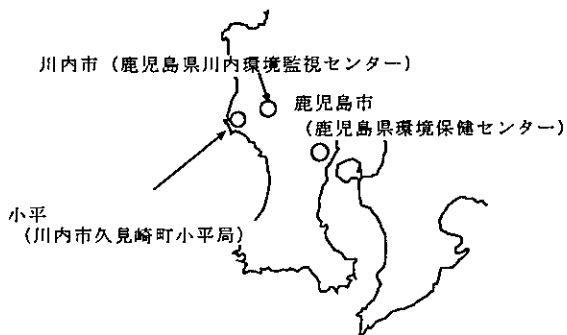


図1 試料採取地点

センター)の3カ所で採取した。

2.2 調査期間及び試料捕集時間

調査期間

1997年度～1999年度 各四半期に1回

試料捕集時間

トリチウムは約6時間捕集

¹⁴CO₂は約72時間捕集

2.3 試料採取方法

水蒸気状HTO: モレキュラー4A (以下MSという。) で捕集

HT: パラジウム触媒でHTOに酸化してMSで捕集

CH₃T: 白金触媒によりHTOに酸化してMSで捕集。

¹⁴CO₂: 水酸化ナトリウム溶液に大気を通し炭酸ガスを捕集

採取方法を図2、図3に示す。

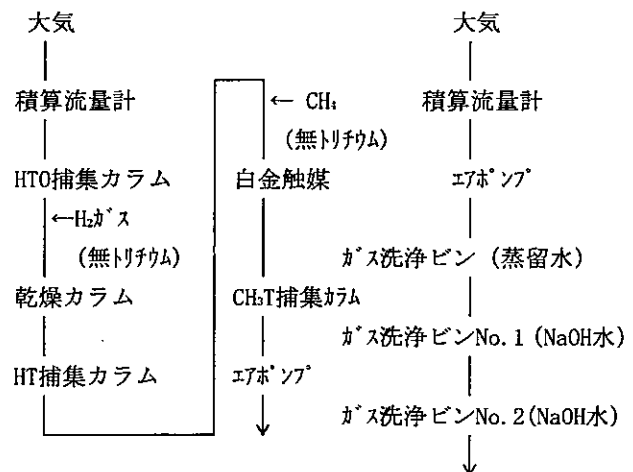


図2 形態別トリチウム採取

図3 CO₂採取

2.4 測定方法

HTO: HTOを吸蔵したMSを約400℃で加熱処理し発生するHTOをコールドトラップで回収した。回収したHTOとシチレターを測定用バイアル中で混合し液体シンチレーションカウンター(以下LSCという。)で測定した。

HT: パラジウム触媒作用でHTから変化したHTOを吸蔵したMSを約400℃で加熱処理して、発生するHTOをコールド

トラップで回収した。回収したHTOをシンチレーターを測定用バイアル中で混合しLSCで測定した。

CH₃T: 白金の触媒作用でCH₃Tから変化したHTOを吸蔵したMSを約400°Cで加熱処理し発生するHTOをコールドトラップで回収した。回収したHTOとシンチレーターを測定用バイアル中で混合しLSCで測定した。

¹⁴CO₂: 炭酸ガスを吸収した水酸化ナトリウム溶液に塩化カルシウムを加え生成した炭酸カルシウムを回収しベンゼン合成装置にてベンゼンを合成した。合成した、ベンゼンをLSCで測定した。

測定機器 LSC ; アロカ社製 LSC-LBIII

シンチレーター パッカーードジャパン製 ピコフロー-LLT

3 結果及び考察

地点別、採取年月別の濃度変化図と、地点別の濃度集計表を図4～8と表1～5に示す。図中の計数誤差は2σで示した。

また、表中にトリチウムの比放射能をトリチウム比 (TR) として示した。

3. 1. 1 HTO/ℓ-H₂O濃度

試料水1ℓあたりのトリチウム濃度を図4、表1に示す。全体の平均値は1.3±0.33Bq/ℓであった。本県で1989年～1991年に調査した離島を除いた調査結果(平均1.2Bq/ℓ、範囲0.6～3.0Bq/ℓ)³⁾とほぼ同様の値であった。

誤差を考慮すると地点間の差はみられなかった。1999年2月16日～17日採取試料は濃度が0.7～0.8Bq/ℓと最低を示した。この期間の気象状況は春の陽気であり、移動性高気圧におおわれていた。1999年11月16日～18日採取試料は濃度が1.8～2.2Bq/ℓと最も高く、気象状況は晴れたり曇ったりで、真冬並の北風が吹きトリチウム濃度がたかくなる傾向があるとされる大陸性気団に覆われていた⁴⁾。

各地点のTR平均値はどの地点もほぼ11程度であった。

3. 1. 2 HTO/m³-air濃度

空気1m³中の濃度を図5、表2に示す。平均濃度は15.7±8.9mBq/m³で濃度範囲は4.8～33.7mBq/m³であった。本県で1989年～1991年に調査した離島を除いた調査結果範囲1.7～51.4mBq/m³の範囲内であった。

これまでも報告されているように³⁾、湿度との相関がみられ夏場にHTO/m³濃度は高く、冬場に低かった。また、地点間の差はみられなかった。

3. 1. 3 HT濃度

HT濃度を図6、表3に示す。全体の平均は24.3±6.3mBq/m³で濃度範囲は16.9～37.9mBq/m³であった。福岡で測定された年平均HT濃度は1985年47mBq/m³ 1995年28mBq/m³

と報告されている⁴⁾が本調査ではそれよりやや低い値であった。地点間の差および季節変動はみられなかった。1997年10月から1998年2月のHT濃度は一時的に高い値をしめしたが発生源は不明であった。このような、現象は岡井らにより報告されている⁴⁾。

TR平均は5.1×10⁵でHTOの4600倍であった。

3. 1. 4 CH₃T濃度

CH₃T濃度を図7、表4に示す。全体の平均は10.2±2.2mBq/m³で濃度範囲は4.0～13.9mBq/m³であった。地点間の濃度差はみられなかった。濃度は岡井らが報告しているようにHT>HTO>CH₃Tの順に高い傾向にあった⁴⁾。

TRは2.8×10⁴でHTOの2500倍であった。

3. 1. 5 ¹⁴CO₂濃度

¹⁴CO₂濃度を、図8、表5に示す。全体の平均は259mBq/g-Cで濃度範囲は216～426mBq/g-Cであった。1999年度の大気中¹⁴CO₂濃度平均249.5±5.4mBq/g-Cと1999年産の米¹⁴Cの平均値241.8±2.6mBq/g-C⁵⁾を比較するとほぼ同程度の値であり、大気中の¹⁴CO₂濃度がかかなり反映されているものと考えられる。経時変化をみると1998年2月と5月に小平で有意に高い値を記録した。また、川内市で1997年12月に有意に低い値を記録した。その他は、どの地点、どの時期も平均値付近の一定の値を示した。

なお、空気中の炭素濃度を0.18g/m³⁵⁾とすると、空気中の¹⁴CO₂濃度は47mBq/m³と推定された。

3. 2 T及び¹⁴CO₂吸入による実効線量

被ばく線量の評価マニュアル⁶⁾に基づき大気中のHTO, HT, CH₃T及び¹⁴CO₂を1年間吸入したときの実効線量を求めると次のとおりとなった。

表6 実効線量

	実効線量 (mSv)	実効線量係数:K (mSv/Bq)	年間摂取量 Bq (A×B×C)	濃度 (Bq/cm ³ -air)	1時間の呼吸量 (cm ³ /h)	1年の時間数 (h)
	K×I	K	I	A	B	C
HTO	3.0E-06	1.8E-08	1.7E+02	1.6E-08	1.2E+06	8760
HT	4.6E-10	1.8E-12	2.6E+02	2.4E-08	1.2E+06	8760
CH ₃ T	1.9E-08	1.8E-10	1.1E+02	1.0E-08	1.2E+06	8760
CO ₂	3.2E-06	6.5E-09	4.9E+02	4.7E-08	1.2E+06	8760

K: 平成12年科学技術庁告示第5号別表1

実効線量はHTO, CO₂が3×10⁻⁶(mSv)で最も高くCH₃Tが2×10⁻⁸(mSv), HTが4.6×10⁻¹⁰(mSv)でもっとも低かった。

4 まとめ

- (1) HTO濃度は平均1.3±0.33Bq/ℓで1989年～1991年に行った調査結果とほぼ同じ濃度であった。地点間の濃度差及び季節変動は認められなかった。1m³あたりの濃度は5.7±8.9mBq/m³で湿度との相

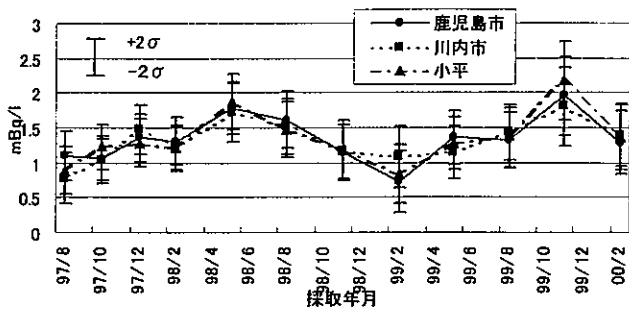


図4 HTO濃度

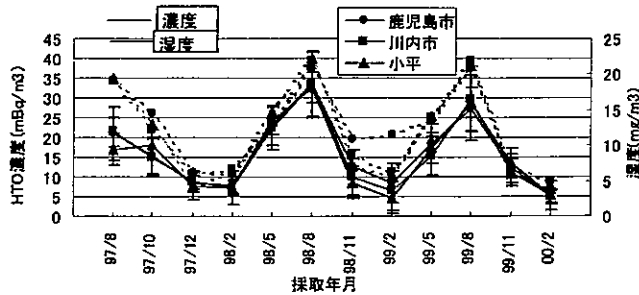


図5 HTO濃度と湿度

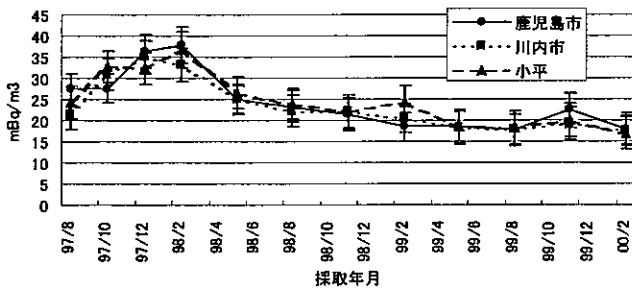


図6 HT濃度

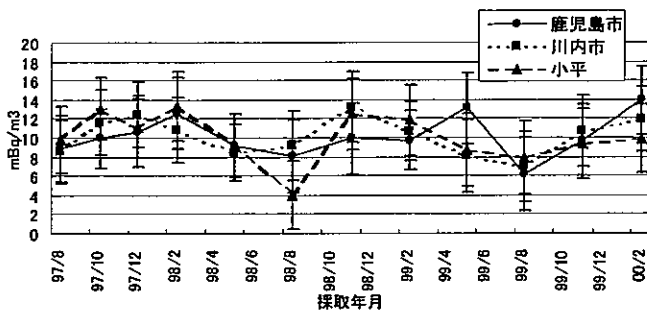


図7 CH3T濃度

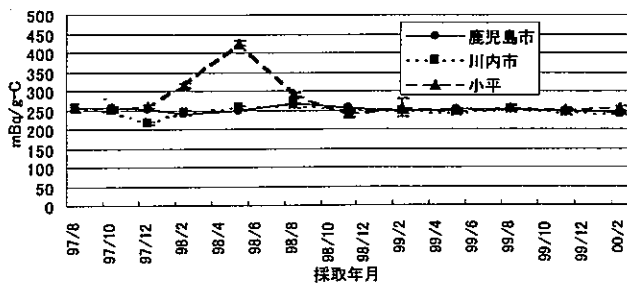


図8 ¹⁴CO₂濃度

表1 HTO濃度 (Bq/l)

	鹿児島市	川内市	小平	全体
平均値	1.3	1.3	1.4	1.3
標準偏差	0.3	0.3	0.4	0.3
最低値	0.7	0.8	0.8	0.7
最大値	2.0	1.8	2.2	2.2
TR	11.1	11.0	11.3	11.1

表2 HTO濃度 (mBq/m³-air)

	鹿児島市	川内市	小平	全体
平均値	16.1	15.6	15.4	15.7
標準偏差	8.8	9.2	9.3	8.9
最低値	5.0	5.4	4.8	4.8
最大値	33.7	33.3	32.6	33.7

表3 HT濃度 (mBq/m³)

	鹿児島市	川内市	小平	全体
平均値	24.5	23.6	24.7	24.3
標準偏差	6.8	6.1	6.3	6.2
最低値	18.0	17.6	16.9	16.9
最大値	37.9	34.8	36.7	37.9
TR(×10 ⁵)	5.1	4.9	5.2	5.1

表4 CH₃T濃度 (mBq/m³)

	鹿児島市	川内市	小平	全体
平均値	10.2	10.2	10.1	10.2
標準偏差	2.2	1.9	2.6	2.2
最低値	6.2	6.9	4.0	4.0
最大値	13.9	13.2	13.3	13.9
TR(×10 ⁴)	2.8	2.9	2.8	2.8

表5 ¹⁴CO₂濃度 (mBq/g-C)

	鹿児島市	川内市	小平	全体
平均値	252	248	276	259
標準偏差	7	12	52	33
最低値	241	216	239	216
最大値	267	264	426	426

関が見られた。

- (2) HT濃度は平均 24.3 ± 6.3 mBq/m³であった。地点間の差、季節変動は見られなかった。
- (3) CH₃T濃度の平均は、 10.2 ± 2.2 mBq/m³で地点間の差は見られなかった。
- (4) ¹⁴C₂濃度の平均は259 mBq/g-Cで季節変動は見られず一部を除きほぼ一定の値であった。
- (5) トリチウムの比放射能(TR)はHTOが 10^4 程度、CH₃Tが 10^4 、HTが 10^5 程度であった。
- (6) 1年間の吸入による実効線量はHTO、¹⁴C₂が 10^{-6} (mSv)オーダーで最も高く、CH₃Tが 10^{-8} オーダー、HTが 10^{-10} オーダーで最も低かった。

なお、本調査の一部は(財)九州環境管理協会に委託して行った。

参考文献

- 1) 高島良正; 環境トリチウム-その挙動と利用, RADIOISOTOPES, 40, 520-530 (1991)
- 2) 百島則幸, 川村秀久, 他; 沸騰水型原子力発電所の周辺に生育した植物中の¹⁴C濃度と発電所からの放出量の推定, 保健物理, 30, 121-126 (1995)
- 3) 四反田昭二, 今村和彦他; 大気中水蒸気状トリチウムの特性, 鹿児島県環境センター所報, 8, 66-69 (1992)
- 4) Okai T. et al; Variation of Atmospheric Tritium Concentrations in Japan, 2nd Sino-Japanese Joint Symposium on Environmental Sciences, 119-125 (1999)
- 5) 川村秀久 松岡信明; 食品中の放射性炭素濃度と炭素安定同位体比-素性検査への応用-, 平成12年度日環協・環境セミナー全国大会要旨集, 技92-95
- 6) 財団法人原子力安全技術センター; 被ばく線量の測定・評価マニュアル (2000)