



東海村大気中における トリチウムの測定とその挙動

石田 順一郎 渡辺 均 北原 義久
東海事業所安全管理部

資料番号：62-10

Measurement of Atmospheric Tritium around Tokai-mura

Junichiro Ishida Hitoshi Watanabe
Yoshihisa Kitahara
(Health and Safety Division, Tokai Works)

東海事業所再処理施設周辺環境において、大気中トリチウムの測定を開始して10年が経過した。その間、捕集、測定法に検討を加え、現在は大気中の水蒸気状及びガス状トリチウムそれぞれについて、分離、測定することが可能となってきた。
本報では、これまでの検討の経緯を含め、採取頻度が一定してきた1980年以降のデータについて紹介する。

1. まえがき

東海事業所再処理施設周辺環境モニタリングの一環として、雨水、飲料水、河川水及び海水を対象に、トリチウムの定常的なモニタリングを実施している。また、上記の定常的なモニタリングの他に、大気中のトリチウムについても、原子力安全委員会環境放射線モニタリング中央評価専門部会（以下、中評部会という）での審議結果に基づき、採取法及び測定法に検討を加え、補足的なモニタリングを実施している。

本報告書では、これまでに実施したトリチウムに関する検討事項及び測定データのうち、大気中のトリチウムに係る事項を取りまとめるとともに、今後の課題等についても言及する。

2. 経緯

東海村においては発電炉、研究炉、再処理施設等、各種の原子力施設が立地されているが、トリチウム放出の観点からは重水炉である JRR-2 及び JRR-3 並びに再処理施設が考えられ、動燃、原研、放医研

等が、周辺環境におけるトリチウムについて定常的なモニタリングまたは調査研究を実施している。

動燃においては、中評部会での「周辺地域において、大気中の水分を採取し、トリチウムの大気中における水準を把握する」(1975年5月22日、同部会報告)及び「大気中のトリチウムについては、再処理施設周辺地域において採取された大気中の水分等を分析することにより、その水準を把握する」(1982年12月9日、同部会報告)との審議結果に基づき大気中トリチウムのモニタリングを実施している。大気中トリチウムの主な存在形態としては、水蒸気状トリチウム (HTO) とガス状トリチウム (HT) が考えられるが、HTO を対象とした採取、測定については東海事業所敷地内の安全管理棟 (ST-1) において1976年より開始した。当初は HTO の捕集剤としてシリカゲルを用い、必ずしも定期的に採取、測定を実施してきたわけではなかったが、1977年からは敷地内の採取地点に加え、敷地外の北西約4km地点の東海村役場 (ST-2) 及び南西約3km地点の長砂公民館 (ST-3) を、新たなモニタリング地点として

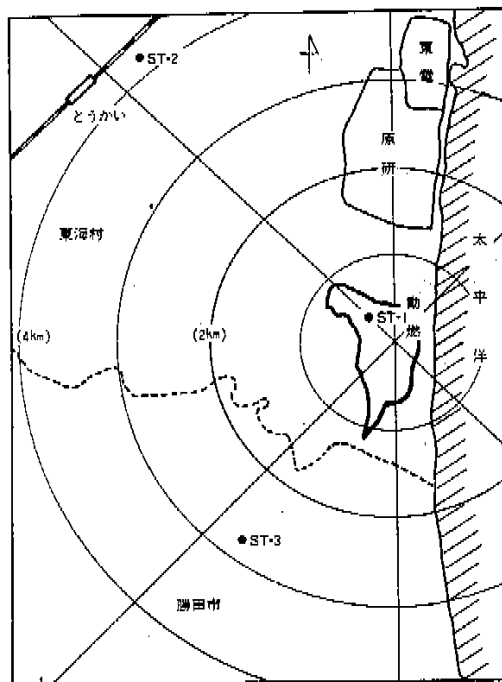


図1 大気中トリチウムのサンプリング点

ST-1: 安全管理棟
ST-2: 東海村役場
ST-3: 長砂公民館

加えた(図1参照)。しかし、シリカゲルによる捕集法には、

- ・シリカゲルの捕集水量が小さいこと、
- ・シリカゲルが繰り返し使用に耐え得ないこと、

等の問題点があり、1980年より捕集剤としてモレキュラシーブ4Aまたは3Aに切り換えた。また、この時期に、HTOとHTとを分離、捕集する方法について検討を加え、1981年より敷地内の1地点でHTの測定も開始した。その後、捕集装置のコンパクト化についても検討し、図2に示すHTO/HT弁別捕集装置を作製した。同装置は1983年にST-1～3に設置後、野外環境における実証試験をかね、HTO及びHTを対象としたモニタリングに用いている。同装置の運転に当たっては、

- ・夏の多湿時にモレキュラシーブの水分保持能力以上の水分を含む大気をサンプリングする恐れがあること、
- ・冬の低温時にパラジウム酸化触媒の酸化効率が低下すること、

等の問題点があったが、前者については、夏の一時期だけ流量を低減すること及び捕集装置の前段に電子冷却装置を設置し過剰の水分を除去するようにしたことにより、また、後者についてはパラジウム酸化触媒をヒータにて50℃程度に加温する処置を施すことにより、四季を通じて、同装置を野外にて連続運転することが可能となった。

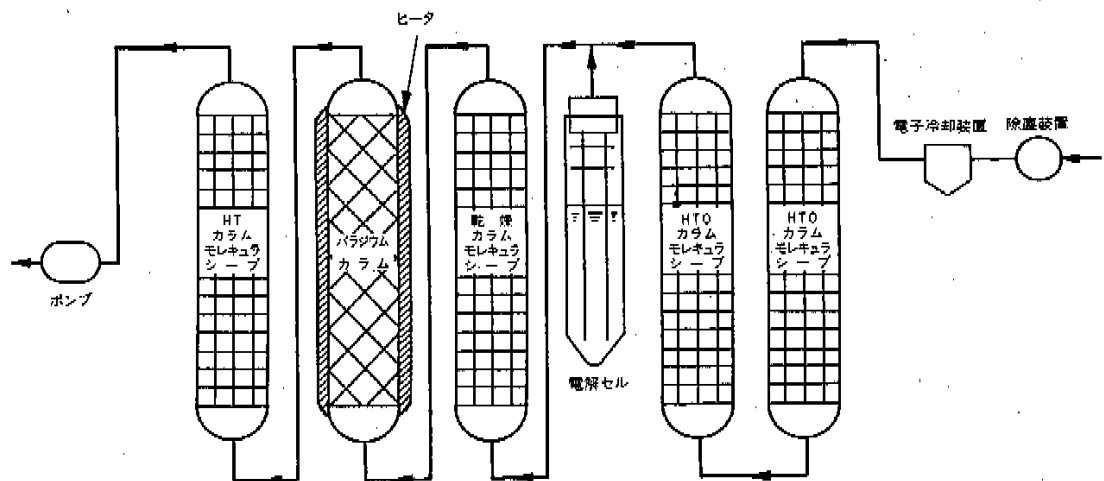


図2 大気中の水蒸気状及びガス状トリチウム捕集装置系統図

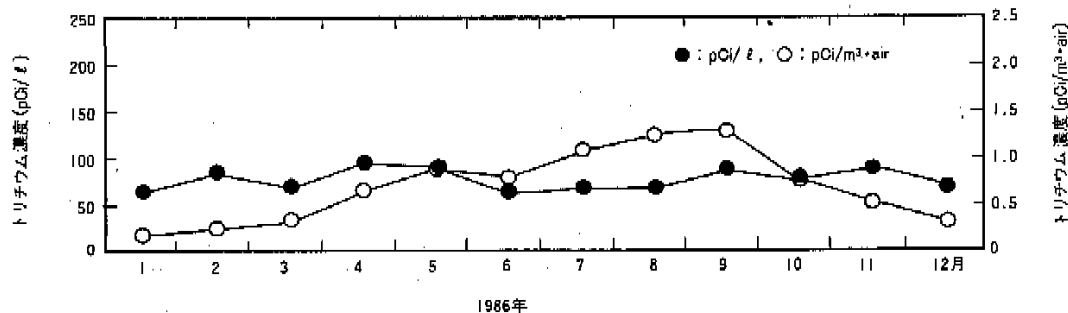


図3 大気中水蒸気状トリチウム濃度の季節変化(東海村役場:ST-2)

3. 採取、測定方法

試料となる大気は、図1に示すST-1～3において、モレキュラシープを捕集剤として1週間毎の連続採取を行った。その後、事業所内に持ち帰ったHTO用及びHT用モレキュラシープを、それぞれ400～450℃の電気炉にて加熱し、捕集した水分を回収した。これらは過酸化ナトリウムを加えて蒸留を行った後、その内の40mℓを液体シンチレーション測定用100mℓバイアル瓶に分取し、液体シンチレータ(アクアゾル-2)60mℓと混合し、加温、冷却後、一晚冷暗所に放置して測定試料とした。測定器としてはAloka社製ISC LB-1型液体シンチレーションカウンタを用い、50分ずつ10回以上の繰り返し測定を実施した。

4. 測定結果

大気中のHTO濃度の四季の変化を示す一例として、1986年にST-2で採取、測定した結果を図3に示す。単位水分当たりのトリチウム濃度(pCi/ℓ)については、季節的な傾向は特に認められないが、単位空気量当たりのトリチウム濃度(pCi/m³)については、夏に高く、冬に低い傾向が現れている。すなわち、大気中のトリチウム濃度は大気中の水分量に起因しているため、湿度の高い夏に濃度(pCi/m³)の高くなる傾向が見られる。また、トリチウム濃度の経年変化を図4に示す。同図では、各年の代表値として幾何平均値(m_g)を採用している。ST-1～3の m_g 同士の比較では、ST-2及びST-3がほぼ同レベルの濃度で若干の減少傾向を示しつつ推移しているのに対し、ST-1での測定結果はST-2及びST-3での測定結果を上まわり、かつ、経年的には余り変動がなく推移している。1980年から1986年にかけてST-2及びST-3において得られたデータを最小二乗法を用いて計算した結果、“pCi/m³”単位のトリチウム濃度減少率は約0.05pCi/(m³・年)、“pCi/ℓ”

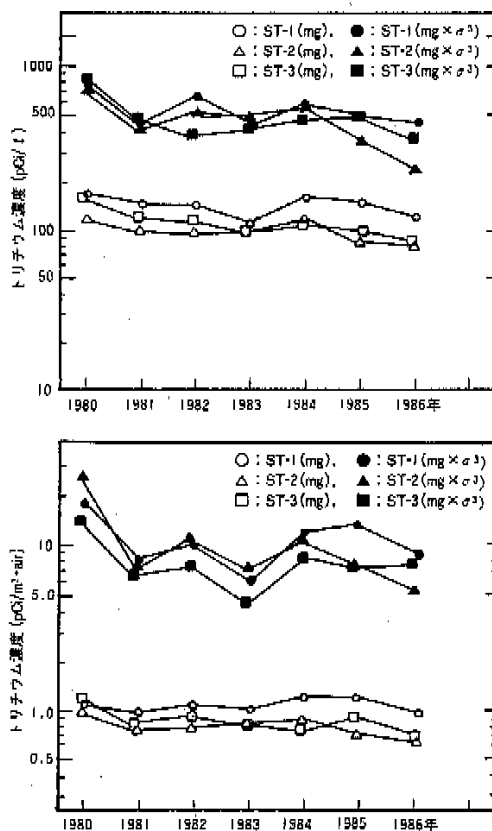


図4 大気中水蒸気状トリチウム濃度の経年変化

単位のトリチウム濃度減少率は約5pCi/(ℓ・年)で、半減期としては、10～11年であり、トリチウムの物理的半減期とほぼ等しい。また、図4には出現頻度が99.7%値である“ $m_g \times \sigma^3$ ”も合わせて示している。

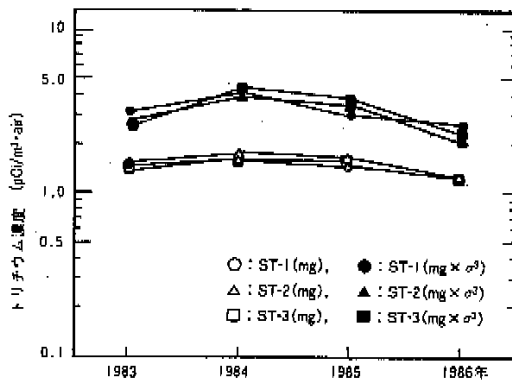


図5 大気中ガス状トリチウム濃度の経年変化

一方、HT 濃度の経年変化は図5に示すように ST-1→3 での測定結果の間に、ほとんど差異が見られず、また、最近の3年間では若干の減少傾向が見られるものの、ほぼ同レベルで推移している。1週間の個々の測定値の傾向についても HTO 濃度のよう な季節的な変動は観測されていない。

HTO 及び HT 濃度について、1984年に ST-3 で測定した結果について対数正規確率紙にプロットしたものを図6に示す。いずれについても年間の代表値として、幾何平均値を用いることの妥当性を示しているが、HTO 濃度については、0.7pCi/m³付近を境とした2つの母集団の集合と見られなくもなく、今後、さらに検討を加えることが必要である。

5. 今後の課題

大気中の HTO については過去10年間、特に1980年以降は、ほぼ毎週、試料を採取しデータの蓄積に努めてきた。また、HT について、調査期間は HTO と比較して短いものの変動傾向が非常に小さいことが判明してきた。これら実績をふまえ、かつ、HTO と HT との被ばく評価上の重要度の差異—HTO の誘導空気中濃度 (DAC) が HT の1/25,000 であること (ICRP Publ.30)—を勘案し、HTO 及

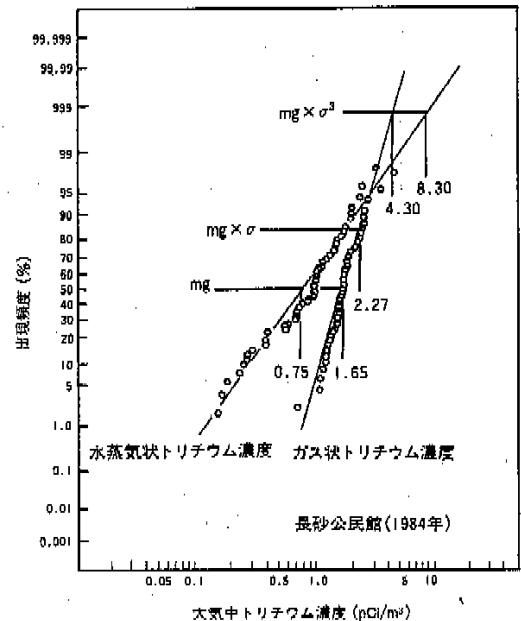


図6 大気中水蒸気状及びガス状トリチウム濃度の対数正規確率分布

び HT のモニタリングについて、採取地点及び地点数、採取頻度、測定対象等の見直しを行い、適度なモニタリングに切り替えていくことが可能と考えられる。当面は採取地点を敷地内 (ST-1) 及び敷地外 (ST-3) の1点ずつとし、HTO を対象としたサンプリングを1回/月、HT については1回/3-月程度で、長期的な観点から変動傾向を把握していくとともに、短期的な対応も可能なよう技術レベルを維持していくことが必要と考える。

参考文献

- 1) 藤原邦彦他：保健物理 18, 231 (1983)
- 2) 石田順一郎他：トリチウム工学・環境動態・水循環環境研究成果報告書, p.79 (1986)
- 3) 石田順一郎他：第2回エネルギー特別研究(核融合)研究成果報告会(昭和58—60年度)予稿集, p.26B26 (1986)