

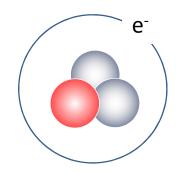
# 環境トリチウムについて

茨城大学 大学院 理工学研究科 鳥 養 祐 二

#### 本日の内容

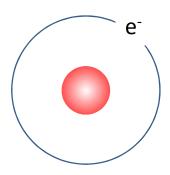
- 1. トリチウムの基礎知識
- 2. 自然界に存在するトリチウム
- 3. トリチウムの人体への影響
- 4. 環境トリチウムの測定法





#### 水素の仲間

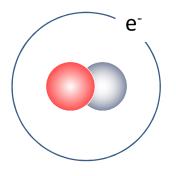
(軽)水素



Protium (H)

質量数:1

陽子 1個 中性子 0個 電子 1個 安定同位体 存在比 99.985% 重水素



Deuterium (D)

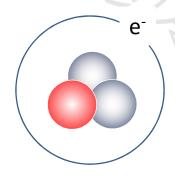
質量数:2

陽子 1個 中性子 1個 電子 1個 安定同位体 存在比 0.015%



:陽子

三重水素



Tritium (T)

質量数:3

陽子 1個 中性子 2個

電子 1個

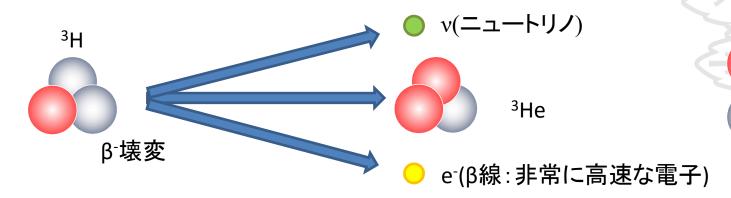
放射性同位体

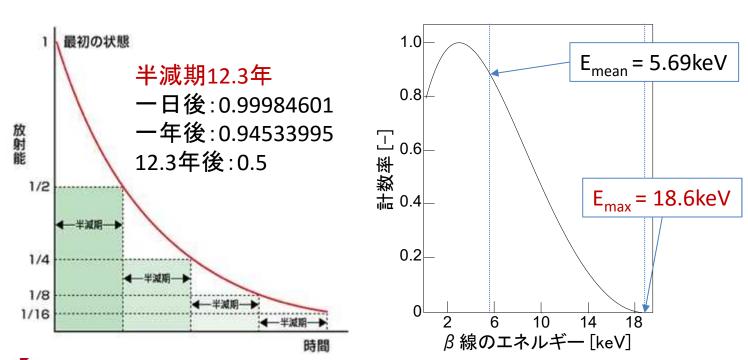
存在比 極微量



: 中性子

#### トリチウムの壊変





放射性核種から 放出される放射線 の中で、最も小さ いエネルギーの放 射線を放出します。

: 陽子

中性子

空気中で5mmぐらいしか透過せず、 皮膚や容器の壁 を通り抜けること はできません。

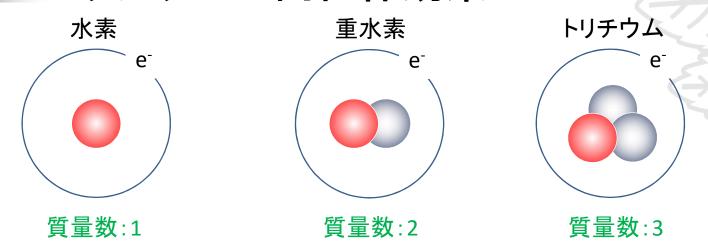
茨城大学 Ibaraki University

大学院理工学研究科 鳥養祐二

: 陽子

中性子

#### トリチウムの同位体効果



- ▶ 水素同位体の化学的性質は同じです。
- ▶ トリチウムの質量は水素の3倍のため、物理的特性に若干の違いがあります(同位体効果)。
- ▶ 水状でも同位体効果があります。

この差を用いてトリチウムを分離できますが、差は非常に小さいので、分離は大変です。

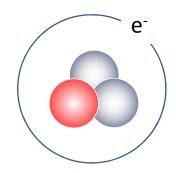
	H₂O	D <sub>2</sub> O	T <sub>2</sub> O
分子量	18.0153	20.0275	22.0315
融点(℃)	0	3.79	4.49
沸点(℃)	100	101.4	101.5
密度(g/ml)	1.000	1.105	1.215



#### 本日の内容

- 1. トリチウムの基礎知識
- 2. 自然界に存在するトリチウム
- 3. トリチウムの人体への影響
- 4. 環境トリチウムの測定法





### 身の回りに存在するトリチウム

- ★天然のトリチウム
  - ・宇宙線(陽子)と大気中の窒素との相互作用により生成
    <sup>14</sup>N + p → <sup>3</sup>H + <sup>12</sup>C
  - ・地殻に含まれる<sup>238</sup>Uや<sup>6</sup>Liからの生成(ごくわずか)
- ★人為起源トリチウム(主に原子力施設)

•235Uの三体核分裂

n 235U

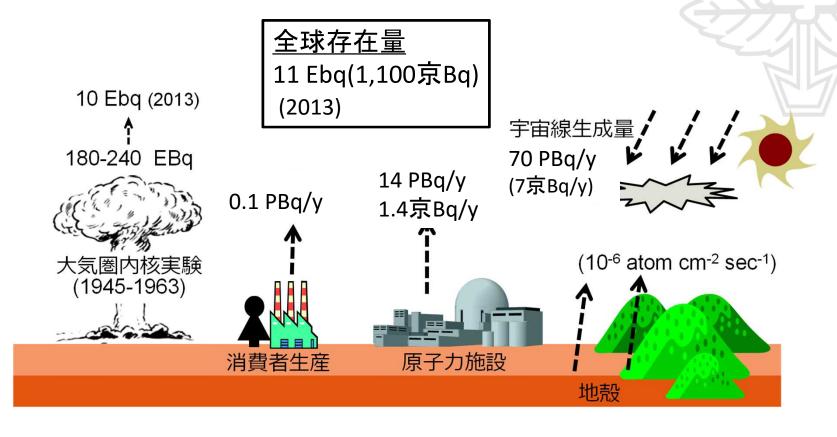
- ・制御棒中ホウ素と中性子の反応
- $^{10}$ B (n,2 $\alpha$ )  $^{3}$ H

・重水素(D)と中性子との反応

- $^{2}H(n,\gamma)^{3}H$
- ★ 環境中に存在するトリチウムのほとんどは水状(HTO)です。

#### 地球上に存在するトリチウム

・原子力施設からの放出量 → 宇宙線起源の20%に相当

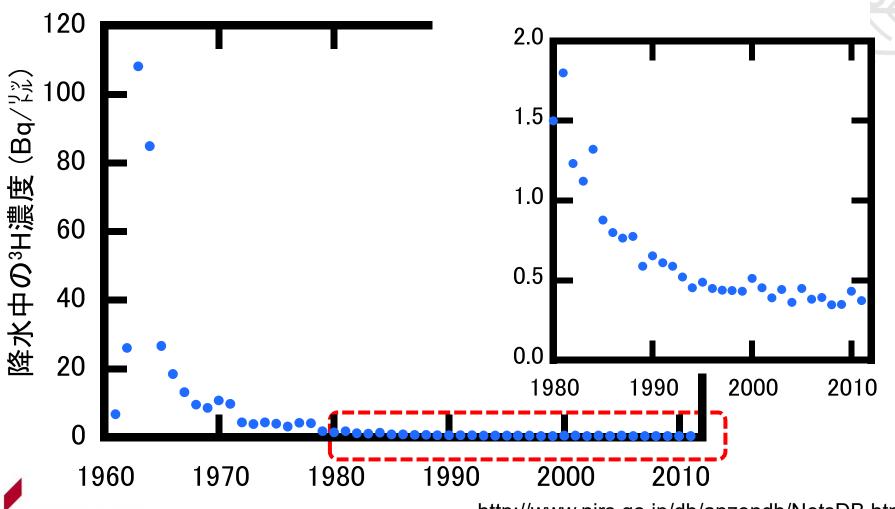


E(エクサ):100京 10<sup>18</sup>

P(ペタ):1,000兆 10<sup>15</sup>

#### 日本における降水中のトリチウム濃度の変遷

東京、千葉における降水中トリチウム濃度の年変化



茨城大学 Nbaraki University 大学院理工学研究科 鳥養祐二 http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html#. http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/

#### 私の趣味: 湧水を訪ねたら採水してトリチウム濃度を調べる



立山に降り積もる清らかな雪が地中に浸み込み、それが200年から300年もの歳月をかけて、 立山の地層に含まれる花崗岩や変成岩によってろ過され、清らかで水温2~5度の非常に冷たい水として湧き出しています。

立山・室堂にある玉殿の湧水のトリチウム濃度は、0.1 Bq/版 (25年以上昔に立山に降った雨水がわき出している)

- ✓ 富山県内の環境トリチウム濃度は、0.45 Bq/ポ 程度です。
- ✓ 15年間にわたり富山市の水道水中のトリチウム を測定したが、大きな変化は観測されていません。
- ✓ 北朝鮮の核実験時や3.11後についても、トリチウム濃度の明確な上昇は認められていません。

### 色々な飲料水中のトリチウム濃度

試料名	トリチウム濃度 (Bq/キボ)
実験室の水道水	0.4
キリンのやわらか天然水	0.3(3年)
Coopおいしい水	0.4(0年)
いろはす	0.04(42年)
クリスタルガイザー	0.03(45年)

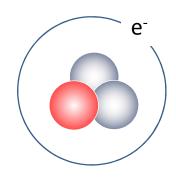
クリスタルカイザーはカリフォ ルニア州にある国立公園シャ スタ・カスケード・リージョンで 採取

SACRAMENTO RIVER HEADWATERS



- 1. トリチウムの基礎知識
- 2. 自然界に存在するトリチウム
- 3. トリチウムの人体への影響
- 4. 環境トリチウムの測定法





## 放射線の主な単位(3つ)

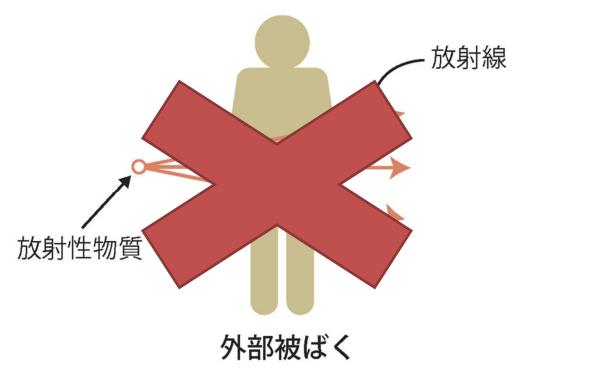
- ❖ 放射性物質が放射線を出す能力(放射能の強さ):「ベクレル(Bq)」
- ❖ 放射線のエネルギーが物質や人体の組織に吸収された量:「グレイ(Gy)」
- ◆ 人体が受けた放射線による影響の度合いを表す :「シーベルト(Sv)」

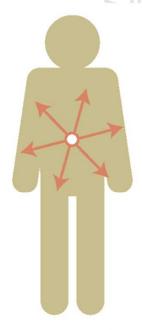


#### トリチウムによる被ばく

トリチウムのβ線の最大エネルギーは18.6keV

このエネルギーは非常に小さく、空気中では最大でも5mm、水中では5µm程度しか透過できません。





内部被ばく

トリチウムでは、内部被曝のみが問題となります。



#### トリチウムの生物影響

#### トリチウムはエネルギーの非常に低いβ線を放出します。

	トリチウム	<sup>137</sup> Cs
β線の最大エネルギー	E <sub>max</sub> = 18.6 keV	E <sub>max</sub> = 514 keV <sup>137</sup> Cs → <sup>137m</sup> Ba → <sup>137</sup> Ba によるγ線(662keV)を出す
経口摂取した場合の 実効線量係数	1.8x10 <sup>-8</sup> mSv/Bq(水) (10,000 Bq:0.00018 mSv)	1.3x10 <sup>-5</sup> mSv/Bq (10,000 Bq:0.13 mSv)

#### トリチウムの放射線の影響(危険性)は137Csの1/1,000以下です。

#### ▶法令上のトリチウム

下限数量•下限濃度*	1x10 <sup>9</sup> Bq, 1x10 <sup>6</sup> Bq/g	1x10 <sup>4</sup> Bq, 1x10 <sup>1</sup> Bq/g
排水中の濃度限度	60 Bq/cm³(60,000Bq/५ँ%)	9x10 <sup>-2</sup> Bq/cm³(90 Bq/หม)

\*健康への影響が無視できるほど小さく、放射性物質として扱う必要がない量



内部被ばく

#### トリチウムの生態への取り込みと排出

- ✓ 環境中に存在するトリチウムのほとんどが、水状 (HTO)です。
- ✓ 福島第一原子力発電所の事故においても、トリチウムのほとんどは水状(HTO)として放出されました。
- ▶ 水状のトリチウムは生物に簡単に取り込まれます。
- 取り込まれたトリチウム水は24時間以内に体液中にほぼ均等に分布します。

継続的にトリチウム水を摂取しなければ、体内に取り込まれたトリチウム水は、

- ※ 約10日間で50%のトリチウムが排出されます。 (生物学的半減期)
- ☞ 100日には1000分の1以下になります。



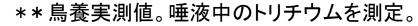
#### 体の中のトリチウム



日本人が1日に摂取する水の量は 2.25 \ 3.25 \ 3.25 \ 4.25 \ 5.6 \ 6.25 \



- \*防災指針によると、日本人は1日に2.25以の水(水として1.65以、その他の食品から0.6以)が必要。
- 私の体の体液のトリチウム濃度は、約0.5 Bq/\\"\*\*。
  - ▶ 摂取する水のトリチウム濃度が一定の場合、体の中のトリチウム濃度は一定になります。
  - 私の体の中ではトリチウム濃縮は観測されていません。





## 有機結合型(OBT)のトリチウムはできるのか?

トリチウム水から有機結合型トリチウムができる反応は、光合成と同位体交換反応が考えられます。

#### ✓ 光合成



(参照: Wikipedia)

海藻や植物プラン クトンへの取り込み

#### 魚、人

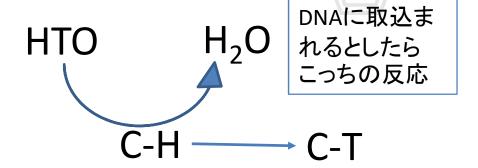
光合成では、水中のトリチウムはセルロースに取り込まれるため、 食べたとしても、ほとんどのトリチウムはそのまま排出されます。

セルロースの様な有機物に含まれたトリチウムが、いきなりDNAの中に取込まれることはありません。

#### 茨城大学 Ibaraki University

大学院理工学研究科 鳥養祐二

#### ✓ 同位体交換反応



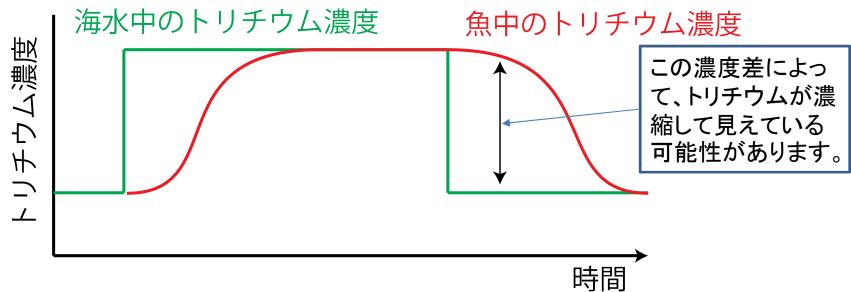
どちらの反応も反応速度は非常 に遅いので、簡単にはトリチウム 水と同じ濃度にはなりません。

東京電力が計画しているトリチウム処理 水中での魚などの飼育により、有機結合 型トリチウムの生成挙動が明らかになる と思われます。

### トリチウムの生体濃縮は起きるのか?

生体へのトリチウムの取り込みに関する研究は、イギリスやカナダで報告されています。

✓ 海水のトリチウム濃度変化に対して、魚のトリチウム濃度変化は遅れます。



◆私の体の中ではトリチウムの 濃縮は観測されていません。

茨城大学 Ibaraki University

大学院理工学研究科 鳥養祐二

東京電力が計画しているトリチウム処理水中での魚などの飼育により、生物におけるトリチウム濃縮挙動が明らかになると思われます。

### 過去に報告されたトリチウムの被ばく事故

#### 表3 ヒトのトリチウム摂取例

症例	年齢(性)	取扱ったトリチウム量	被ばく線量/期間	臨床症状	転帰	尿中トリチウム量 Ba/ml(nCi/ml)
Α1	60(男)	7550Ci/7.4年 (2.8×10 <sup>14</sup> Bq/7.4年)	300~600レム/7.4年 (3~6Sv/7.4年)	正色素性貧血 <sup>a)</sup> → 汎血球減少症 <sup>b)</sup>	死亡	1.9~41×10 <sup>3</sup> (51~1120)
A2	28(女)	3800Ci(?)/6.3年 (1.4×10 <sup>14</sup> Bq/6.3年)	124~278レム/6.4年 (1.2~2.8Sv/6.4年)	正色素性貧血	生存	$0.07\sim6.8\times10^3$ (2.0 $\sim$ 183)
АЗ	61(男)	_	_	無症状	生存	0.37~3.3×10 <sup>3</sup> (10~89)
Α4	35	_	_	無症状	生存	0.04~1.8×10 <sup>3</sup> (1~48)
B1	-	_	_	_	生存	_
B2		数1000Ci/3年	1000~2000レム/3年 (10~20Sv/3年)	高色素性貧血 <sup>c)</sup> → 難治性汎血球減少症	死亡	2~4.3×10 <sup>3</sup> (53~117)
вз	_	_	_	_	生存	_

外国では夜光塗料にトリチウム使われており、夜光塗料を用いた掲示板の工場で被曝事故が起きています。

トリチウムによる死 亡例が2件報告され ているが、共に数Sv から数10Svの被ばく をしています。

- a)正色素性貧血: 赤血球中のヘモグロビンの量は正常であるが、赤血球の数が少ない。溶血性貧血、白血病に伴う 貧血、再生不良性貧血、がんに合併した貧血、腎性貧血などがこれに入る。
- 6)汎血球減少症: 赤血球、白血球、血小板のすべてにおいて数が減少している。
- c)高色素性貧血:赤血球中のヘモグロビン量は正常値より多いが、赤血球数が少ない。悪性貧血、肝疾患による貧血、 再生不良性貧血など。

(参考として)・年間実効線量当量限度:50mSv(5レム)

- ・1 Sv=100レム
- ・尿中トリチウム量が年間を通じて1Bg/mlあった時は0.023mSv/年(ただしQ値を1と仮定)被ばくする。
- \*1 nCi=37Ba

[出所] Seelentag, 1973; 平嶋, 1988

[出典] 沢田 昭三, 岡田 重文: 核融合研究者のためのトリチウムの安全取扱いの目安-1990、8章ヒトのトリチウム 摂取による障害、平成元年度文部省科学研究費補助金報告書



(出典:原子力百科事典ATOMICA)

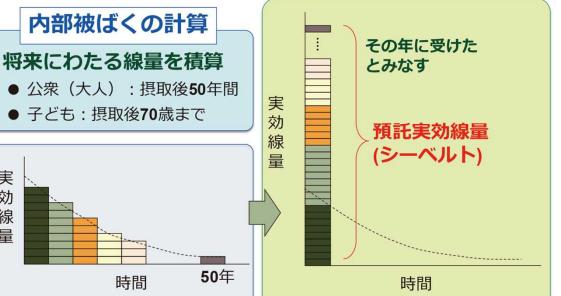
### トリチウムによる内部被ばく線量の計算

内部被曝した場合は、預託線量という考え方で被曝線量を計算します。

預託実効線量(mSv)=実効線量係数(mSv/Bq)×年間の核種摂取量(Bq)

- ✓ トリチウム(水)の実効線量係数: 1.8×10-8 mSv/Bq
- ✓ トリチウム(有機物)の実効線量係数: 4.2×10-8 mSv/Bq

放射性物質を一回だけ摂取した場合に、それ以後の生涯にどれ だけの放射線を被ばくすることになるかを推定した被ばく線量

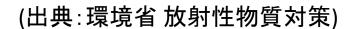


▶ 0.5 Bq/状の水を一年間飲み続 けた場合

0.5 Bq/パル×1.65 パル/日×365 日  $\times$  1.8  $\times$  10<sup>-8</sup> mSv/Bq  $= 5.4 \times 10^{-6} \text{ mSy}$ 

▶ 1 GBqのトリチウムを含む時計を 間違って食べた場合

 $1 \times 10^9 \text{ Bq} \times 4.2 \times 10^{-8} \text{ mSv/Bq}$ =42mSv





時間

実 効

線 量

大学院理工学研究科 鳥養祐二

### 飲料水中のトリチウム濃度と被ばく線量

	トリチウム濃度 (Bq/キボ)	1年間飲み続けたと きの年間被曝線量* (mSv/年)
オーストラリアの飲料水中のトリチウムの濃度限度	76,103	0.82
ICRPがこの濃度未満であれば人体に問題ないとする濃度	60,000	0.65
フィンランドの飲料水中のトリチウムの濃度限度	30,000	0.33
WHOの飲料水のガイドライン	10,000	0.11
スイスの飲料水中のトリチウムの濃度限度	10,000	0.11
ロシアの飲料水中のトリチウムの濃度限度	7,700	0.084
カナダの飲料水中のトリチウムの濃度限度	7,000	0.076
東京電力が海洋放出を検討している濃度	<mark>1,500</mark>	<mark>0.016</mark>
飲料水の連邦基準(USA)	740	0.008
核実験当時の降水中のトリチウム濃度	110	0.0012
ドイツの飲料水中のトリチウムの濃度限度	100	0.0011
大学の水道水	0.4	0.0000043
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000011

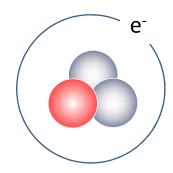


\* 年間被曝線量は、1日に1.65リットルの水を飲用するとして計算 防災指針によると、日本人は1日に2.25以の水(水として1.65以、その他の食品から - 0.6以)が必要。

#### 本日の内容

- 1. トリチウムの基礎知識
- 2. 自然界に存在するトリチウム
- 3. トリチウムの人体への影響
- 4. 環境トリチウムの測定法

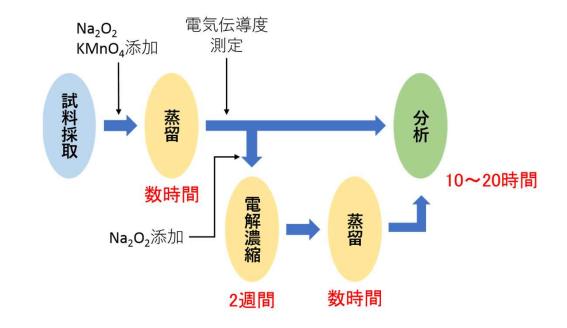




#### トリチウムの測定法



海水試料の場合、1つの試料のトリチウム濃度測定に、最高の技術を使っても1週間、通常は2~4週間の時間が必要です。



#### 環境トリチウム測定

#### ▶ 環境試料のトリチウム測定は、非常に時間が掛かります

```
試料採取
pH,電気伝導度(EC)測定
ろ過・蒸留
電解濃縮(500⇒75)
蒸留
シンチレーターと混合
(Ultima Gold LLT)
LSCで測定(LB-5, Aloka)
(65mL:65mL)
1500分測定
```



固体高分子膜電解濃縮装置 (トリピュア,ペルメレック電極)



低バックグランド 液体シンチレーションカウンター (LB-5, Aloka)



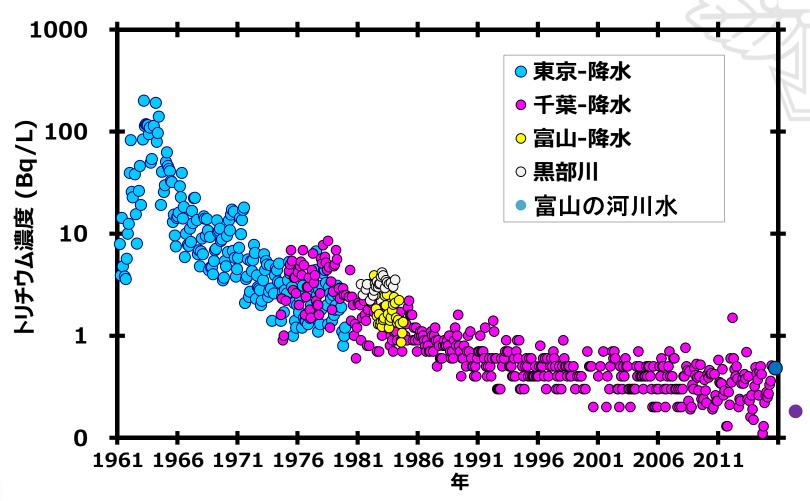
写真提供:核融合科学研究所



2科 鳥養祐二

#### 環境トリチウム濃度のばらつき

→ 環境トリチウムの測定値は、ばらつきます。





### トリチウム測定データのばらつきについて

#### 測定値 = 真の値 ± 測定誤差 ± 季節変動

#### 測定誤差の要因

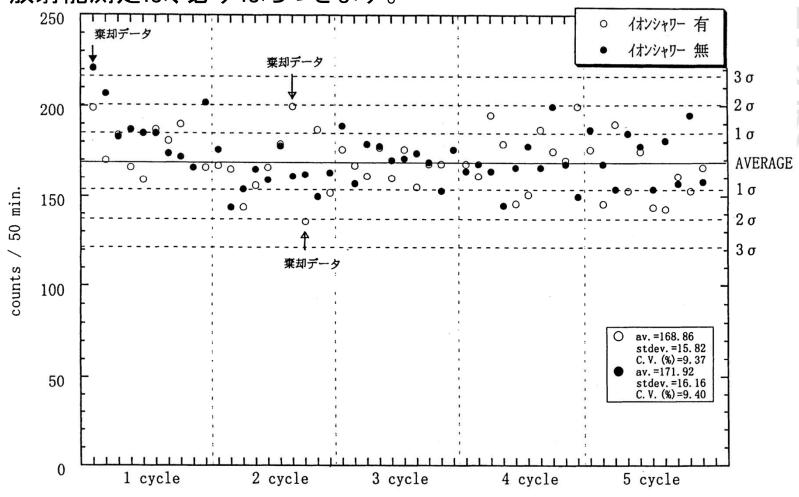
- ▶プラスの要因
  - ✓ 環境レベルの測定では、液体シンチレータが光を吸収する ことによる偽発光で測定値が高くなります。従って、液シン の中で十分に安定化させる必要があります(精密な環境測 定では2週間ぐらい液シンの中で保管します)。
  - ✓ 環境からの汚染・・・海水測定の場合、周りの環境の方がト リチウム濃度が高いので、汚染が起きます。
- ▶ マイナスの要因
  - ✓ろ過において十分に乾固させない。
- 素人が測定すると、高い値が出ます。

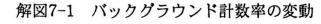


液体シンチレーション

### 測定データのばらつき1

放射能測定は、必ずばらつきます。

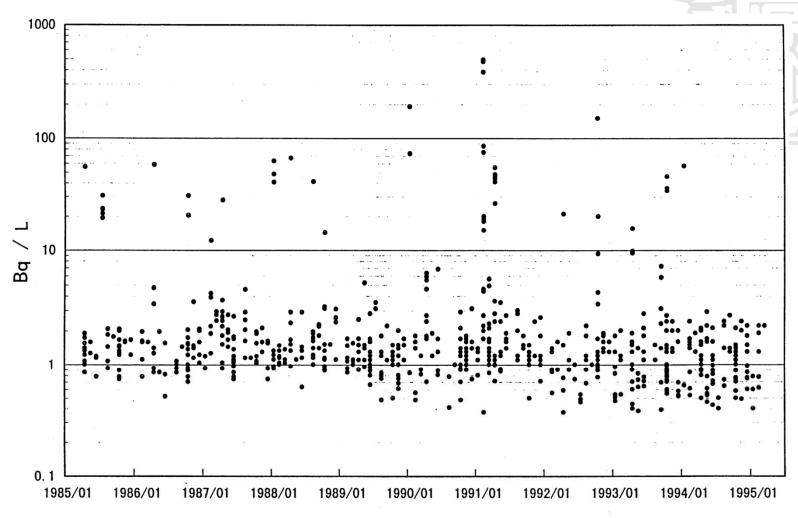


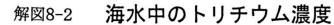




### 測定データのばらつき2

放射能測定は、必ずばらつきます。







大学院理工学研究科 鳥養祐二

#### 降水の季節変動

過去の富山における観測結果(降水中トリチウム濃度)

亀谷寛人(1983)トリチウムおよび安定同位体から見た富山地方の降水,富山大学理学部』地球科学科卒業論文

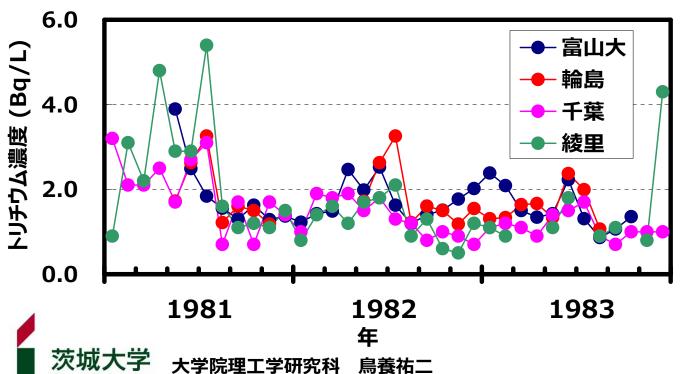
0.9~3.9 Bq/L (輪島[石川県]: 1.1~3.3 Bq/L)

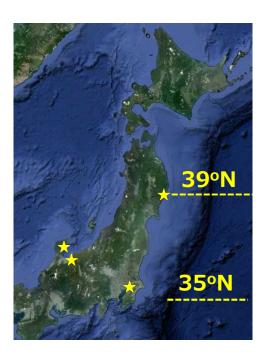
同じ時期の日本の他地点とほぼ同程度

日本海側(富山,輪島)と太平洋側(千葉,綾里)も違いは認められない

一般的な季節変動傾向:冬や春に高く、夏に低くなる

→富山での観測結果にはその傾向が認められる





### 試料の蒸留

海水は必ず蒸留する必要があるが、蒸留法では同位体効果が出るの

140

で、必ず乾個させる必要がある

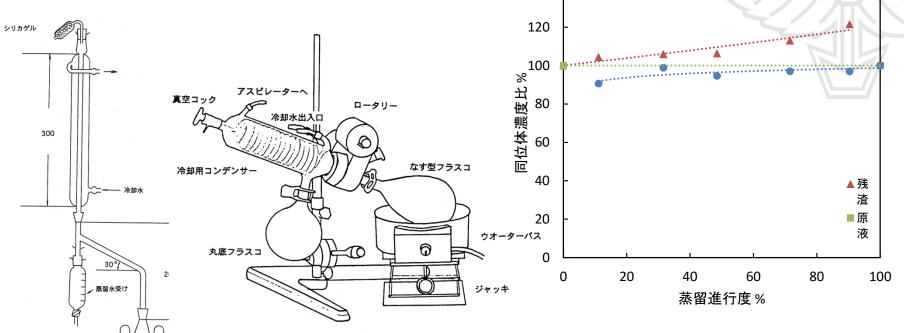


図1-2 減圧蒸留装置の例

図1-1 蒸留装置の例



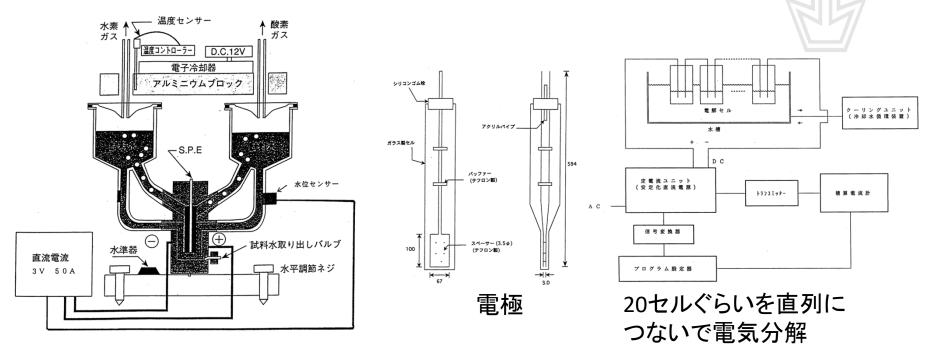
大学院理工学研究科 鳥養祐二

- ✓ 完全に乾固させないと、ろ液 のトリチウム濃度は低くなり ます。
- ✓ 海水の大量蒸留は非常に面倒です。

### 試料の電解濃縮

電解法はとにかく時間がかかる。測定下限値を下げるためには、濃縮度を高くする必要があるため、さらに時間が必要である。

電解時間 : 固体高分子電解質 > アルカリ電解質



固体高分子電解質を用いた電解法 現在、1台600万円ぐらい

アルカリ電解質を用いた電解法過去には爆発事故が起きています



# トリチウム濃度と年間被曝線量(食品+水)

	トリチウム 濃度 (Bq / キズ)	この水を1年間摂取し続 けた時の年間被曝線量* (mSv / 年)
マウスの発がん実験で、発がん頻度が自然発生と同程度となる 境界濃度	139,000,000	2,050
オーストラリアの飲料水中のトリチウムの濃度限度	76,103	0.72
ICRPがこの濃度未満であれば人体に問題ないとする濃度	60,000	0.89
管理区域・原子力施設からの排水基準	60,000	0.89
WHOの飲料水のガイドライン	10,000	0.14
カナダの飲料水中のトリチウムの濃度限度	7,000	0.10
東京電力が海洋放出を検討している濃度	<mark>1,500</mark>	<mark>0.02</mark>
飲料水の連邦基準(USA)	740	0.01
核実験当時の降水中のトリチウム濃度	110	0.0016
ドイツの飲料水中のトリチウムの濃度限度	100	0.0015
現在の降水中のトリチウム濃度	0.5	0.0000074
海水中のトリチウム濃度	0.1	0.0000015

\*年間被曝線量は、1日に2.25リットルの水を摂取する(水として1.65リットル、その他の食品から0.6リットル)として計算



# 付録:トリチウム水濃度と原子比

	Bq / L	T atoms / L	T/H	T/H-%
0.5 Bq/L	0.5	2.81E+08	4.20E-18	4.20E-16
1 Bq/L	1	5.61E+08	8.39E-18	8.39E-16
	10	5.61+E09	8.39E-17	8.39E-15
	100	5.61E+10	8.39E-16	8.39E-14
1,000 Bq/L	1,000	5.61E+11	8.39E-15	8.39E-13
	10,000	5.61E+12	0.0000000000000839	8.39E-12
	100,000	5.61E+13	0.000000000000839	8.39E-11
1 MBq/L	1,000,000	5.61E+14	0.00000000000839	8.39E-10
	10,000,000	5.61E+15	0.0000000000839	8.39E-09
	100,000,000	5.61E+16	0.000000000839	8.39E-08
1 GBq/L	1,000,000,000	5.61E+17	0.0000000839	8.39E-07
	10,000,000,000	5.61E+18	0.000000839	8.39E-06
	100,000,000,000	5.61E+19	0.00000839	8.39E-05
1 TBq/L	1,000,000,000,000	5.61E+20	0.00000839	8.39E-04
	10,000,000,000,000	5.61E+21	0.0000839	0.00839
	100,000,000,000,000	5.61E+22	0.000839	0.0839
1 PBq/L	1,000,000,000,000,000	5.61E+23	0.00839	0.939

