

環境試料中のトリチウムの測定とその将来的意義

高 島 良 正*

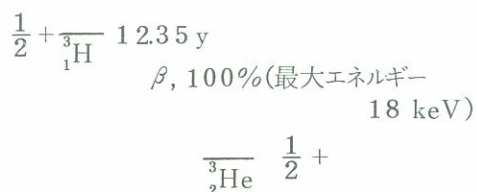
1. 緒 言

第2次世界大戦後人工放射性同位体(R. I.)が入手できるようになり、その利用研究は年増大の一步をたどり、現在全国では3,500個以上のR. I.取扱い事業所があるという。すなわち、今ではR. I.は理、工、農、医、薬学等の学術研究用だけでなく、産業界においてもR. I.の利用なしではすまされない状況にあるといえる。それらの数多くのR. I.の中でもトリチウム(${}^3_1\text{H}$)は、いろいろな意味で注目すべき核種である。約20年前、各方面でR. I.利用が漸く盛んになった折には、 ${}^3_1\text{H}$ はその放出 β 線のエネルギーが低く、測定困難で、利用価値がなく、人体に対する危険性も最も小さいものと考えられていた。しかし、その後液体シンチレーションカウンターが開発され、 ${}^3_1\text{H}$ の放射能を数十%の効率で測定できるようになり、水素が生体の主要構成元素であることと相俟って、現在では最も広く利用されるR. I.の一つになっている。さらに環境問題を考えるとき、 ${}^3_1\text{H}$ は核爆発によって大量に生成し、全世界的放射能汚染源の重要核種になっており、さらにまた将来的には未来の夢のエネルギー源といわれる核融合炉に大きな問題を投げかける核種である。

2. トリチウムとは?

トリチウムはジュウテリウム(重水素, ${}^2_1\text{H}$)

と同様に水素(${}^1_1\text{H}$)の同位体で、次のように12.35年の半減期で壊変し、安定な ${}^3_2\text{He}$ に変わる。



この β 線のエネルギーは他のR. I.と比べて極めて低く、通常のカウンターでは測定することができない程である。自然界における ${}^3_1\text{H}$ の存在は1946年W. F. Libbyによって宇宙線と大気との相互作用で生成される可能性が示唆され、多くの研究者によって大気中の水蒸気中の ${}^3_1\text{H}$ の測定が試みられたが、測定が極めて難かしく、天然における宇宙線起原の ${}^3_1\text{H}$ の分布状態が確認される前に核爆発実験が開始され、大量の核爆発起原の ${}^3_1\text{H}$ と混合してしまった。

${}^3_1\text{H}$ の量(濃度)を表わすには一般にTritium ratio (TR)が用いられ、それは ${}^3_1\text{H}$ 原子数の比で表わし、

$$1 \text{ TR (または Tu)} = \frac{{}^3_1\text{H}}{{}^1_1\text{H}} = 10^{-18}$$

としている。1 TRを水の単位体積当りのpCi(ピコキュリー)および壊変率(disintegration per minute)で表わすと次のようになる。

$$1 \text{ TR} = 3.24 \text{ pCi}/\ell = 7.2 \text{ d.p.m.}/\ell$$

* 九大理学部教授、理博、本協会常任理事

3. 現在の環境中の ${}^3_1\text{H}$ と将来予想される蓄積量

環境中に存在するトリチウムは前述のような宇宙線によって起こる核反応(${}^{14}\text{N} + n \rightarrow {}^{12}\text{C} + {}^3_1\text{H}$)に起因するもののほかに、核爆発に起因するもの、原子燃料再処理を含む原子力発電に起因するもの、加速器のターゲットやR Iのトレーサー利用に起因するものが考えられる。将来はこれに加して核融合炉運転に起因する ${}^3_1\text{H}$ が加わることになる。すでに諸外国では核融合炉関連の基礎研究として、年間数万～数百万 Ci という大量(1万キュリーはトリチウム約1gに相当する)の ${}^3_1\text{H}$ の取扱いをやっているところがある。これらの ${}^3_1\text{H}$ の発生源別の推定量は米国原子力委員会や国連科学委員会によってなされたことがあるが、それによれば、現在環境中に存在する ${}^3_1\text{H}$ の総量は宇宙線起原のもの28 MCi(メガキュリー)、核爆発起原のもの1900 MCi 原子発電その他の起原によるものは1 MCi 以下と推定される。従って現在環境試料中の ${}^3_1\text{H}$ の測定にかかってくるのは、ほとんど全部が核爆発起原によるものといってよい。核爆発実験が行われた以前の天然における ${}^3_1\text{H}$ の分布を、得られるわずかなデータから推測すると、雨水の平均で6 TR、表面海水で0.2～0.3 TR程度と思われる。それに対し現在は核爆発実験の寄与による時間的、地域的変動が大きく一概に云えないが、雨水中で10～1000 TR、表面海水中で6～10 TR程度検出されている。

将来についての予測は、社会的、政治的要因も入ってくるので必ずしも容易でないが、核爆発によるものは、それが停止されれば ${}^3_1\text{H}$ の半減期に従って減少を辿る筈である。原子力発電に起因するものは世界各国の政府が推進している予定通りゆけば紀元2000年には

～400 MCi に達すると試算されるが、これは各国とも大幅に遅れているので、この値より数割低くなるものと考えられる。しかもこの400 MCi というのは大部分が燃料体に保持される蓄積量であって、環境への放出量というわけではない。将来核爆発以外の環境汚染源として留意しなければならないのは核融合炉である。いわゆるDT炉においては ${}^3_1\text{H}$ をその燃料として用いるので炉体からの洩れ、また燃料製造に ${}^6\text{Li} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + {}^4\text{He}$ や ${}^7\text{Li} + n \rightarrow {}^3_1\text{H} + {}^4\text{He}$ の反応を利用するので、その製造過程における洩れに万全を期さなければ、核爆発実験に起因する ${}^3_1\text{H}$ 以上の汚染源となり得る。このような大量のトリチウムの取扱、処理の技術はこれからの重要な研究課題であろう。

4. トリチウムの測定法

前節で述べたように ${}^3_1\text{H}$ は核爆発実験によって大量に生成し環境中に放出されているが、水素の同位体であるので、特定な個所に濃縮したり沈積したりすることもなく、地球全体の水によって希釈されている。そのため、どのような環境試料をとっても ${}^3_1\text{H}$ 含有量の測定には高度な技術と測定装置が必要となる。

一般にこのような微弱放射能の測定において、測定系の性能を表わすのにF値(Figure of Merit)が用いられるが、それは試料の正味の計数率をS(cpm)、バックグラウンド計数率をB(cpm)とすると次のように定義される。

$$F = \frac{S}{\sqrt{B}} \quad \text{または} \quad F = \frac{S^2}{B} \quad (1)$$

ここでSは検出器の計数効率E(%またはcpm/dpm)と試料の量V(gまたはml)の積で表わされるので、(1)式は次のように書き換えられる。

$$F = \frac{E \cdot V}{\sqrt{B}} \quad \text{または} \quad F = \frac{(E \cdot V)^2}{B} \quad (2)$$

F が大きい程すぐれた測定等といえる。F を大きくするには、i) 測定にかける試料の量を多くする。すなわち、内部気体計数法の場合は大きい容積のカウンターを用い、ガス圧を高くして測定する。また液体シンチレーション計数法の場合は大型のバイアルを使用する。ii) 計数効率を大きくする。すなわち気体計数法の場合は気体を精製し、なるべく純粋にし、液体シンチレーションの場合はクエンチングを少なくするため水の蒸留を行って純粋にする。iii) バックグラウンドを小さくする。すなわち検出部を放射性物質を含まない物質で遮蔽したり、逆同時計数回路等を用いて雑音(ノイズ)を少なくする。

また一般に微弱放射能測定では計数率が小さいから測定に長時間を要する。測定等が安定であれば、できるだけ長時間測定すれば精度の高い値が得られることになるが、多数の環境試料を測定する必要のある場合、精度を犠牲にしても短時間で測定しなければならないこともある。どの程度の ${}^3\text{H}$ 濃度の試料をどの程度の精度で測定したい場合、どれ位の測定時間を要するかを決める式は次のように表わされ、この時間 t も測定等の良否を決める場合の相互比較にしばしば用いられる。

$$t = 10^4(FN+B) / p^2 \cdot F^2 \cdot N^2 \quad (3)$$

ここで、F : 1 TR の試料が計数される場合の計数率 (cpm)

B : バックグラウンド計数率 (cpm)

P : 相対精度 (%)

N : 試料中の ${}^3\text{H}$ 濃度 (TR)

同一濃度の試料を同一の相対精度で測定する場合、測定時間が短かければ短い程すぐれた測定装置といえる。

絶対量が数 10 pCi の ${}^3\text{H}$ を測定する手段

として現在考えられるものは、内部気体計数法と液体シンチレーション計数法だけである。いずれの場合も、逆同時計数回路を利用した低バックグラウンド型のものが必要であるが、そのようなカウンターはまだ一般には普及しておらず、九州では九大に内部気体計数装置が1台、九州環境管理協会に液体シンチレーションカウンターが1台あるだけである。

内部気体計数法では試料を水素または有機性ガスにしてGM計数領域または比例計数管領域で計数するものであり、液体シンチレーション計数法では試料を水の形にし、親水性シンチレーター溶液と混合して計数する。このような方法を用いても極低レベルの ${}^3\text{H}$ 測定では困難なことがあるので、しばしば測定にかける前に ${}^3\text{H}/{}^1\text{H}$ の比を高めるため、電解とか熱拡散の濃縮法を適用することがある。しかし濃縮のための時間と労力、濃縮係数の非再現性等を考えると、できれば濃縮しないで測定することが望ましい。そこでわれわれは濃縮法を適用することなく、気体計数法および流体シンチレーション法による ${}^3\text{H}$ の測定を試みてきたが、気体計数法では600分程度の測定で、天然レベルのトリチウムの測定が良い精度で行われるという結論に到達した。

気体計数法と液体シンチレーション法を比較する場合、原理的には気体計数法のほうが極低レベルの ${}^3\text{H}$ 測定にすぐれた特性をもっているが、測定操作に熟練を要するので、一般的にはむしろ液体シンチレーション計数法のほうがより正確な値が得られるように思われる。液体シンチレーション法では、100 ml の大型テフロンバイアルを用いて測定するが、シンチレータ溶液の含水率を高め、さらに計数効率を高めることができれば、測定は一層容易になろう。

5. 結 語

トリチウムはG.M.カウンターにも感じない β 放射体であるため、これまでR.I.実験室等でもやや安易に取扱われる傾向にあったが、その使用量も飛躍的に増大しているので、科学技術庁でもその管理体制の強化を指示している。またそのような研究上の用途だけでなく、将来のエネルギー確保の面からみてもトリチウムは最も留意すべき放射性核種といわなければならない。従って今後は環境試料中の ^3H の簡易迅速精密分析法の研究を一層進

めると共に、室内空気、大気中の水分の保持する ^3H のモニタリング法の研究開発も急がなければならない。トリチウムはその化学形が水であれ水素であれ容易に容器から洩れ易い性質をもっているし、とくにトリチウムガスは高密にある金属壁をも貫く性質をもっているので、環境汚染を避けるには幾多の実験研究がある。終りに、 ^3H の人体への放射能毒性は従来最も軽微なものと考えられてきたが、最近の動物実験では必ずしもそうでなく、今後検討すべき点が多いということを付記しておく。

(文献紹介) 底泥からみた東京湾の汚染の歴史

松 本 英 二, 横 田 節 哉 :
地球化学 11(2)1977 P51

東京湾奥中央部の柱状底泥試料に ^{210}Pb 法を適用し堆積年代を求め、同時に重金属元素、有機物元素の鉛直分布を測定した。これによると、東京湾の汚染は1920年代から徐々に増加し、1950年から1960年にかけて

急激に増加して今日に至っている。1920年以前の非汚染時に比べ最近では3~8倍の重金属元素の負荷がみられる。有機炭素、チッ素では約2倍の増加がある。